



⑫ A **Terinzagelegging** ⑪ **8401583**

Nederland

⑲ NL

- ⑤④ **Stabiel, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar organopolysiloxanpreparaat.**
- ⑤① Int.Cl<sup>3</sup>: C08L 83/04, C08K 5/00.
- ⑦① Aanvrager: General Electric Company te Schenectady, New York, Ver. St. v. Am.
- ⑦④ Gem.: Ir. L.W. Kooy c.s.  
Octrooibureau Vriesendorp & Gaade  
Dr. Kuiperstraat 6  
2514 BB 's-Gravenhage.

- ②① Aanvraag Nr. 8401583.
- ②② Ingediend 17 mei 1984.
- ③② Voorrang vanaf 25 mei 1983.
- ③③ Land van voorrang: Ver. St. v. Am. (US).
- ③① Nummer van de voorrangsaanvraag: 497777 .
- ⑥② --

- ④③ Ter inzage gelegd 17 december 1984.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

Stabiel, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar organopolysiloxan-preparaat.

5 Kortgeleden werd een, bij opslag stabiel, snel uit-  
hardbaar, één-components, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar  
(KTV) preparaat met funktionele alkoxygroepen beschreven in de  
Amerikaanse octrooiaanvraag S.N. 277.524, ingediend op  
26 juni 1981. Wat in hoofdzaak in deze octrooiaanvraag wordt  
geleerd is, dat onder invloed van vocht uithardbare, KTV  
preparaten op basis van organopolysiloxanen met eindstandige  
polyalkoxygroepen kunnen worden bereid door tezamen combineren  
van (1) een polydiorganosiloxan basispolymeer met eindstandige  
10 silanolgroepen, (2) een verknopend (werkend) silaan, (3) een  
effektieve hoeveelheid van bepaalde middelen op silaanbasis  
voor het wegvangen van chemisch gebonden hydroxylgroepen en  
(4) een effektieve hoeveelheid van een condensatiekatalysator.  
Het middel voor het wegvangen van hydroxylgroepen dat hetzij  
15 een afzonderlijke verbinding kan zijn of deel kan uitmaken van  
het verknopingsmiddel met funktionele alkoxygroepen, heeft  
een oximato-, carbamato-, enoxy-, amino, amido-, imidato-,  
ureido-, isocyanato- en/of thioisocyanato functionaliteit.

Andere middelen voor het wegvangen van hydroxyl-  
groepen die toegepast kunnen worden in de ééncomponenten KTV  
preparaten met alkoxyfunktionaliteit volgens de genoemde  
Amerikaanse octrooiaanvraag 277 524 van 26 juni 1981 worden  
5 beschreven in een Amerikaanse octrooiaanvraag van R.T. Swiger  
en J.E. Hallgren ingediend omstreeks 16 maart 1983, de Ameri-  
kaanse octrooiaanvraag S.N. 349 695 van 17 februari 1982,  
een Amerikaanse octrooiaanvraag<sup>van</sup>/G. M. Lucas ingediend omstreeks  
4 februari 1983, de Amerikaanse octrooiaanvraag S.N. 428.038  
10 van 29 september 1982, de Amerikaanse octrooiaanvraag  
S.N. 338.518 van 11 januari 1982 en een Amerikaanse octrooi-  
aanvraag T.D. Mitchell, ingediend omstreeks 30 januari 1983.  
Gewezen kan ook worden op de Nederlandse octrooiaanvraag

In de genoemde Amerikaanse octrooiaanvraag S.N.  
15 277.524 van 26 juni 1981 wordt aan de vakman geleerd dat een  
middel voor het wegvangen van hydroxylgroepen met de algemene  
formule 1, waarin  $R_1$  een alifatische organische groep voorstelt  
met 1 tot circa 8 koolstofatomen, gekozen uit de groep bestaande  
uit alkylresten, alkyletherresten, alkylesterresten, alkyl-  
20 ketonresten en alkylcyanoresten of een aralkylrest voorstelt  
met 7 tot 13 koolstofatomen,  $R_2$  een eenwaardige organische  
groep met 1 tot 13 koolstofatomen voorstelt en X een hydroly-  
seerbare, afsplitsbare amido-, amino-, carbamato-, enoxy-,  
imidato-, isocyanato-, oximato-, thioisocyanato- en/of ureido-  
25 groep voorstelt, indien deze wordt gecombineerd met een  
diorganopolysiloxanbasispolymeer, met een effectieve hoeveelheid  
condensatiekatalysator en, indien de hydrolyseerbare afsplitsbare  
groep een enoxygroep is, een hardingsversneller, een één-  
pakket, stabiel, onder invloed van vocht uithardbaar KTV  
30 preparaat oplevert. Voorts wordt in die octrooiaanvraag geleerd  
dat de groep  $R_2$  waaraan de voorkeur wordt gegeven wordt gekozen  
uit methyl, fenyl en vinyl en liefst methyl is of een mengsel  
van een grote hoeveelheid methylresten en een kleinere hoeveel-  
heid fenyl- en/of vinylresten en dat de groepen X waaraan de  
35 voorkeur wordt gegeven zijn amido-, amino- en enoxygroepen

8401583

waarbij in het bijzonder aan amidogroepen de voorkeur wordt gegeven.

5                   Eén tekortkoming van een voorkeurssamenstelling volgens de genoemde Amerikaanse octrooiaanvraag, namelijk een samenstelling waarin  $R_2$  methyl voorstelt en X enoxy is, is dat die samenstelling doorschijnende (doorzichtige) typen KTV's oplevert die bij uitharding geel van kleur worden. Met het oog op de wensen op de markt en om esthetische redenen is het zeer gewenst dat de uitgeharde KTV preparaten kleurloos zijn.

10                  De uitvinding heeft derhalve ten doel te voorzien in een één pakkeets, stabiel, onder invloed van vocht uithardbaar organopolysiloxanpreparaat dat bij uitharding doorschijnende of doorzichtige en kleurloze produkten oplevert.

15                  Volgens de uitvinding wordt daartoe voorzien in een stabiel, één pakket's KTV preparaat dat kan worden omgezet in een doorschijnend of doorzichtig, kleurloos niet kleverig elastomeer, welk preparaat omvat:

20                  (A) een polydiorganosiloxan basis polymeer waarin het siliciumatoom aan elk keteneinde wordt afgesloten met tenminste twee alkoxyresten,

                  B) een effectieve hoeveelheid condensatiekatalysator,

                  C) een stabiliserende hoeveelheid van een middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen, dat beantwoordt aan de formule 1, waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkyl-  
25                  ester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een  $C_{(1-13)}$  eenwaardige gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt, X een cyclo-  
alifatische enoxyrest is, a een geheel getal van 1 tot 4  
30                  voorstelt, b een geheel getal van 0 tot 3 voorstelt en de som van  $a+b$  gelijk is aan 1 tot 4 en

                  D) een effectieve hoeveelheid hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan.

35                  Volgens een ander aspect van de uitvinding is het basis-

8401583

polymeer een polymeer met eindstandige silanolgroepen en dus het silaanbestanddeel (C) zowel een middel op basis van silaan voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen en polyalkoxy-verknopingsmiddel voor het afsluiten van het siliciumatoom en het uiteinde van elke organopolysiloxanketen met tenminste twee alkoxygroepen, waarbij het silaan de formule 2 heeft waarin  $R_1$ ,  $R_2$  en X de hiervoor genoemde betekenissen hebben.

Volgens één aspect van de uitvinding wordt voorzien in een stabiel, één-pakket, praktisch watervrij praktisch zuurvrij, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar organopolysiloxanpreparaat dat onder ambiente omstandigheden als vocht praktisch afwezig is over langere tijd stabiel is en omgezet kan worden in een doorschijnend of doorzichtig, kleurloos en niet kleverig elastomeer, omvattende:

(A) een polydiorganosiloxanbasispolymeer waarin het siliciumatoom aan het uiteinde van elke keten wordt afgesloten door tenminste twee alkoxygroepen,

(B) een effectieve hoeveelheid condensatiekatalysator,

(C) een stabiliserende hoeveelheid van een middel op silaانبasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen, met de formule 1, waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep is,  $R_2$  een  $C_{(1-13)}$  eenwaardige, gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, a een geheel getal van 1 tot 4 is, b een geheel getal van 0 tot 3 is en de som van a+b gelijk is aan 1 tot 4 en

(D) een effectieve hoeveelheid hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan.

Volgens een ander aspect van de uitvinding omvat het KTV preparaat dat omgezet kan worden in een doorschijnend of doorzichtig en kleurloos, niet kleverig of kleefvrij elastomeer:

(A) een basispolymeer met eindstandige silanolgroepen,

(B) een effectieve hoeveelheid condensatiekatalysator,

8401583

(C) een silaan met de formule 2 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep is,  $R_2$  een  $C_{(1-13)}$  eenwaardige, gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, waarbij dit silaan zowel als middel voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen dient en als polyalkoxysilaanverknopingsmiddel voor het afsluiten van het siliciumatoom aan het uiteinde van elke organopolysiloxanketen met tenminste twee alkoxygroepen dient, en

(D) een effectieve hoeveelheid hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan.

Aan de KTV preparaten die zijn beschreven in de Amerikaanse octrooiaanvraag S.N. 277 524 ingediend op 26 juni 1981 wordt in hoge mate de voorkeur gegeven boven KTV preparaten volgens de stand van de techniek, omdat die preparaten over langere tijd stabiel zijn en praktisch vrij zijn van zuur. Een tekortkoming van de preparaten volgens de genoemde Amerikaans octrooiaanvraag is dat enkele van de uitvoeringen waaraan de voorkeur wordt gegeven leiden tot doorschijnende of doorzichtige KTV preparaten die uitharden tot een elastomeer dat geel van kleur is, dat wil zeggen als het middel op silaanbasis voor het wegvangen van ongewenste groepen de formule 1 heeft waarin  $R_2$  methyl voorstelt of een mengsel van een grote hoeveelheid methylgroepen en een kleinere hoeveelheid fenyl- en/of vinylgroepen voorstelt en X een enoxygroep is.

Verrassenderwijze werd echter gevonden dat, door toepassing, als middel voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen of als middel voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen en verknopingsmiddel, van een silaan met een cycloalifatische enoxyfunktionaliteit, niet slechts de in de genoemde Amerikaanse octrooiaanvraag genoemde gunstige eigenschappen worden bereikt, maar het verkregen produkt ook doorschijnend of doorzichtig en praktisch kleurloos is.

8401583

Het polydiorganosiloxanbasispolymeer kan hetzij eindstandige silanolgroepen of eindstandige alkoxygroepen bezitten, beide produkten die algemeen in de techniek bekend zijn en die gemakkelijk bereid kunnen worden door de geschoolde vakman. Voor meer gedetailleerde informatie wordt verwezen naar de bovengenoemde Amerikaanse octrooiaanvraag 277 524 van 26 juni 1981 en de daarin genoemde literatuurplaatsen.

Wat de condensatiekatalysator betreft geldt dat dergelijke katalysatoren in de techniek algemeen bekend zijn en dat een vrijwel uitputtende opsomming wordt gegeven in de genoemde Amerikaanse octrooiaanvraag 277 524 van 26 juni 1981. Opgemerkt wordt dat tinverbindingen de bij voorkeur gebruikte condensatiekatalysatoren zijn en dat liefstdibutyltin diacetaat wordt toegepast.

De uitvinding is gelegen in de verrassende vondst dat, als een middel op silaanbasis voor het wegvangen van ongewenste groepen wordt gebruikt dat een cycloalifatische enoxyfunktionaliteit bezit, het daarmee verkregen KTV preparaat uithardt tot een doorschijnend of doorzichtig en praktisch kleurloos elastomeer.

Zoals hiervoor vermeld kan het basispolymeer eindstandige silanolgroepen of eindstandige alkoxygroepen bezitten maar de beperkingen die worden gesteld aan het middel op silaanbasis voor het wegvangen van ongewenste groepen hangen af van de functionaliteit van het basispolymeer. Als het basispolymeer vooraf wordt afgesloten met twee of meer eindstandige alkoxygroepen, funktioneert het silaan slechts als een middel voor het wegvangen van ongewenste groepen. Er behoeven dan minder beperkingen te worden gesteld aan dit middel voor het wegvangen van ongewenste groepen dat kan worden weergegeven met de algemene formule 1 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon of alkylcyano, of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een  $C_{(1-13)}$  eenwaardige gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, a een geheel getal is van 1 tot 4, b een geheel getal is van 0 tot 3 en de som van a+b

8401583

gelijk is aan 1 tot 4.

Een andere mogelijkheid is dat het basispolymeer eindstandige silanolgroepen heeft zodat een geïntegreerd middel voor het wegvangen van ongewenste groepen -verknopingsmiddel kan worden toegepast dat voldoet aan de formule 2 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een  $C_{(1-13)}$  eenwaardige gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt en X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt. In dergelijke gevallen heeft het gevormde polymeer de algemene formule 3 waarin R een  $C_{1-13}$  eenwaardige gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt en  $R_1$  en  $R_2$  de hiervoor genoemde betekenissen hebben.

Hoewel aan een basispolymeer dat is afgesloten door eindstandige methyldialkoxagroepen de voorkeur wordt gegeven, waarbij aan een basispolymeer dat is afgesloten door eindstandige methyldimethoxagroepen in het bijzonder de voorkeur wordt gegeven, zal het aan de vakman duidelijk zijn dat er ook allerlei andere variaties mogelijk zijn die eveneens KTV preparaten opleveren die uitharden tot doorschijnende of doorzichtige, praktisch kleurloze elastomeren. Als voorbeeld kan worden vermeld dat, als het basispolymeer is afgesloten door eindstandige silanolgroepen, het toelaatbaar is om, in plaats van een middel voor het wegvangen van ongewenste groepen -verknopingsmiddel dat valt onder de omvang van de formule 2, een middel voor het wegvangen van ongewenste groepen te gebruiken dat de algemene formule 4 heeft waarin  $R_1$ ,  $R_2$  en X de hiervoor genoemde betekenissen hebben, c een geheel getal is van 0 tot 3, d een geheel getal is van 1 tot 4 en de som van c+d gelijk is aan 3 of 4, in combinatie met een als verknopingsmiddel werkend silaan met de formule 5 waarin  $R_1$  en  $R_2$  de hiervoor genoemde betekenissen hebben en e gelijk is aan 0 of 1. Uiteraard kunnen dergelijke als verknopingsmiddel werkende silanen worden opgenomen in alle samenstellingen volgens de onderhavige uitvinding.

8401583

In de formules (1), (2) en (3) is elk van de resten R, R<sub>1</sub> en R<sub>2</sub> bij voorkeur methyl, ethyl, propyl, vinyl en/of fenyl en liefst methyl. In de formules (1) en (2) is de hydrolyseerbare, afsplitsbare groep X bij voorkeur een cyclische enoxygroepen met 5 tot 8 koolstofatomen in de ring en liefst een cyclische enoxygroep met 5 of 6 koolstofatomen in de ring.

Enkele voorbeelden van cyclische enoxysilanen die vallen binnen het kader van de onderhavige uitvinding zijn derhalve methyldimethoxycyclohexenoxysilaan, methyldimethoxycyclopentenoxysilaan, methyldimethoxy (3.3.5-trimethyl-1.5-cyclohexadien-1-oxy) silaan, vinyl-diethoxycyclohexenoxysilaan, fenylethoxymethoxycyclopentenoxysilaan, enz.

Naast de hiervoor genoemde zijn middelen voor het wegvangen van ongewenste groepen die worden toegepast bij basispolymeren met eindstandige polyalkoxygroepen, ook nog trimethylcyclopentenoxysilaan, dimethylvinylcyclohexenoxysilaan en dergelijke.

Hardingsversnellers die worden gebruikt in de praktijk van de onderhavige uitvinding worden gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan. Voor aanvullende informatie betreffen deze verbindingen wordt verwezen naar de hiervoor genoemde Amerikaanse octrooiaanvraag 277.524 van 26 juni 1981 en naar de Amerikaanse octrooischriften 4.180.642 en 4.248.993.

Er kunnen allerlei vulstoffen in de preparaten volgens de uitvinding worden opgenomen bijvoorbeeld titaandioxyde, zirkoniumsilicaat, siliciumdioxyde-aerogel, ijzeroxyde, diatomeeënaarde, door pyrolyse gevormd siliciumdioxyde, roet, geprecipiteerd siliciumdioxyde,

glasvezels, polyvinylchloride, gemalen kwarts en calciumcarbonaat. De hoeveelheid vulstof die wordt gebruikt kan binnen wijde grenzen worden gevarieerd afhankelijk van het beoogde gebruik. In bepaalde toepassingen waarbij het preparaat dient als afdichtingsmiddel kan het hardbare preparaat bijvoorbeeld worden gebruikt zonder vulstoffen terwijl bij andere toepassingen,

8401583

bijvoorbeeld het gebruik van de hardbare preparaten voor het maken van een bindmateriaal wel hoeveelheden van 700 of meer gewichtsdelen vulstof per 100 gew.delen orgaanpolysiloxan kunnen worden toegepast. Bij voorkeur is de vulstof aanwezig in een hoeveelheid variërend van 10 tot 300 gew.delen per 100 gew.delen organopolysiloxan. Daarnaast kunnen hechting bevorderende middelen, uitzakken regelende middelen, weekmakers en dergelijke binnen het kader van de uitvinding in de preparaten worden opgenomen.

De uitvinding wordt hier nader toegelicht aan de hand van de volgende voorbeelden die slechts dienen ter illustratie en geen enkele beperking inhouden. In de voorbeelden zijn alle delen gewichtsdelen tenzij anders is vermeld.

#### Voorbeeld I

Methyldimethoxycyclohexenoxysilaan werd bereid door in een geschikte hoge druk reaktor te brengen 98 g methylchloro-dimethoxysilaan, 86 g cyclohexanon, 81 g triethylamine, 60 g acetonitrile en 0,7 g zinkchloride. Het reaktiemengsel werd geleidelijk verwarmd op 100°C en 6 uren op die temperatuur gehouden. Na afkoelen tot kamertemperatuur werd aminehydrochloride verwijderd door filtreren over een zuigfilter en werd dit uitgewassen met hexaan. Daarna werden oplosmiddelen verwijderd in een roterende "flash" verdamper bij 40°C en 13,3 kPa. Het ruwe materiaal werd gedestilleerd bij 61-63°C/0,53 kPa hetgeen 81 g methyldimethoxycyclohexenoxysilaan met een zuiverheid van 95 % opleverde.

Het methyldimethoxycyclohexenoxysilaan werd vervolgens onder watervrije omstandigheden in een Semkit<sup>R</sup> menger in twee trappen innig gemengd (gecompoundeerd) met polymeer met eindstandige silanolgroepen, butylguanidine en dibutyltindi-acetaat en wel als volgt:

0401583

- 5
- |                                                                            |   |                          |
|----------------------------------------------------------------------------|---|--------------------------|
| 100 g polymeer afgesloten met eindstandige silanolgroepen                  | } | Eerst 15 min.            |
| 0,32 g n-butylguanidine                                                    |   | mengen bij               |
| 3,5 g methyldimethoxycyclohexenoxysilaan                                   |   | kamertemperatuur         |
| 0,25 g $\text{Bu}_2\text{Sn}(\text{OAc})_2$                                | } | tweede maal              |
| 1,0 g siliconen dragervloeistof met eindstandige trimethyl (silaan)groepen |   | mengen gedurende 15 min. |
|                                                                            |   | bij kamertemperatuur     |

10 Na mengen werden de KTV preparaten verpakt in afgesloten aluminium buizen en 24 uren bewaard bij kamertemperatuur, 33 uur bij 100°C en 72 uur bij kamertemperatuur. De hardings-snelheid en mate van harding werden bepaald door bepaling van de tijd waarna het produkt bij harden kleefvrij was (tack free time; TFT). de resultaten van deze proef zijn vermeld in tabel A.

15

|                  | <u>Tabel A</u>   |                  |
|------------------|------------------|------------------|
| <u>begin TFT</u> | <u>100°/33 h</u> | <u>K.T./72 h</u> |
| 10 min.          | 40 min.          | 15 min.          |

20 De preparaten gaven geschikte hardingstijden te zien en de geharde produkten waren doorschijnend of doorzichtig en praktisch kleurloos.

Voorbeeld II

25 Er werd een meer complex silaan met funktionele cycloenoxygroepen bereid, namelijk methyldimethoxy(3.3.5-trimethyl-1.5-cyclohexadien-1-oxy)silaan, door toepassing van de werkwijze beschreven in voorbeeld I, behalve dat de volgende bestanddelen werden gebruikt:

- 30
- 98 g methylchlorodimethoxysilaan
  - 97 g isoforon
  - 81 g triethylamine
  - 0,7 g zinkchloride
  - 60 g  $\text{CH}_3\text{CN}$

Het produkt werd gedestilleerd bij 48-59°C/0,27 kPa. De bereiding van het preparaat vond op dezelfde wijze plaats als beschreven in voorbeeld I, namelijk:

8401583

- 5      100 g polymeer afgesloten met eind-standige silanolgroepen, } eerst mengen  
0,32 g n-butylguanidine } gedurende 15 min.  
3,5 g methyldimethoxy (3.3.5-tri- } bij kamertempe-  
methyl-1.5-cyclohexadieen-1-oxy)silaan } ratuur  
0,25 g  $\text{Bu}_2\text{Sn}(\text{OAc})_2$  } tweede maal mengen  
0,7 g silicon-dragervloeistof } 15 min. bij  
kamertemperatuur

De proefresultaten zijn vermeld in tabel B.

10

| <u>Tabel B</u>   |                   |                  |
|------------------|-------------------|------------------|
| <u>begin TFT</u> | <u>100°C/24 h</u> | <u>K.T./30 h</u> |
| 10 min.          | 15 min.           | 10 min.          |

- 15      Ook ditmaal had het preparaat uitstekende hardings-tijd en waren de geharde produkten doorschijnend of doorzichtig en praktisch kleurloos, zij het misschien met een heel licht-gele kleurzweem.

Voorbeeld III

- 20      Dit voorbeeld / illustreert een uitvoeringsvorm van deonderhavige uitvinding als middel voor het wegvangen van hydroxylgroepen in een polydimethylsiloxanpolymeer afgesloten met methyl dimethoxygroepen.

Onder toepassing van de mengmethode van voorbeeld I werd op de volgende wijze een preparaat bereid:

- 25      100 g polymeer afgesloten met methyldimethoxygroepen } mengen in één  
0,3 g n-hexylamine } trap, 15 min.  
1,5 g methyldimethoxycyclohexenoxysilaan } bij kamertempe-  
0,25 g  $\text{Bu}_2\text{Sn}(\text{OAc})_2$  } ratuur  
1,0 g silicon-dragervloeistof

- 30      De resultaten zijn vermeld in tabel C.

| <u>Tabel C</u>   |                  |                   |
|------------------|------------------|-------------------|
| <u>begin TFT</u> | <u>K.T./24 h</u> | <u>100°C/24 h</u> |
| 45 min.          | 60 min.          | 50 min.           |

8401583

Ook dit voorbeeld laat weer zien dat volgens de uitvinding KTV preparaten met een uitstekende hardingssnelheid worden verkregen welke preparaten uitharden tot doorschijnende of doorzichtige en praktisch kleurloze elastomeren.

8401583

### C o n c l u s i e s

1. Stabiel, één-pakket, praktisch watervrij en praktisch zuurvrij, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar organopolysiloxanpreparaat dat onder ambiente omstandigheden bij afwezigheid van praktisch elk vocht gedurende langere tijd stabiel is en omgezet kan worden in een doorschijnend of doorzichtig, kleurloos, kleefvrij elastomeer, gekenmerkt doordat het omvat:

(A) een polydiorganosiloxanbasispolymeer waar van het siliciumatoom aan het einde van elke keten is afgesloten door tenminste twee alkoxygroepen, (B) een effectieve hoeveelheid condensatiekatalysator,

(C) een stabiliserende hoeveelheid van een middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen, met de formule 1 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt, X een cycloalifatische enoxygroep is, a een geheel getal is van 1 tot 4 en b een geheel getal is van 0 tot 3 en de som van a+b gelijk is aan 1 tot 4 en

(D) een effectieve hoeveelheid hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan.

2. Preparaat volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polydiorganosiloxan basispolymeer is afgesloten door eindstandige silanolgroepen en dat het silaan de formule 2 heeft, waarin  $R_1$  een  $C_{1-8}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, welk silaan zowel fungeert als middel voor het wegvangen van funktio-

8401583

nele hydroxylgroepen en een polyalkoxysilaanverknopingsmiddel is voor het afsluiten van het siliciumatoom aan het uiteinde van elke organopolysiloxanketen met tenminste twee alkoxygroepen.

5           3. Preparaat volgens conclusie 1, met het kenmerk,  
dat het een effectieve hoeveelheid verknopend silaan bevat met de formule 5 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep voorstelt en  $e$  gelijk is aan 0 of 1.

10           4. Preparaat volgens conclusie 2, met het kenmerk,  
dat het silaan de formule 4 heeft waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is,  $X$  een cycloalifatische enoxygroep voorstelt,  $c$  een geheel getal van 0 tot 3 is,  $d$  een geheel getal van 1 tot 4 is en de som  $c + d$  gelijk is aan 3 of 4, en dat het tevens een effectieve hoeveelheid van een  
15           verknopend silaan met de formule 5 bevat waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is en  $e$  gelijk is aan 0 of 1.

20           5. Preparaat volgens een der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de groepen  $R_1$  en  $R_2$  van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen methyl, ethyl, propyl, vinyl en/of fenyl zijn,

30           6. Preparaat volgens een der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de groepen  $R_1$  en  $R_2$  van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen methylgroepen zijn.

35           7. Preparaat volgens conclusie 1-6, met het kenmerk, dat de cycloalifatische enoxygroep van het middel op silaanbasis

8401583

voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen 5 tot 8 koolstofatomen in de ring bezit.

8. Preparaat volgens conclusie 1-7, met het kenmerk, dat de cycloalifatische enoxygroep van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen 5 of 6 koolstofatomen in de ring bezit.

9. Preparaat volgens conclusie 1-8, met het kenmerk, dat het funktionele cycloalifatische enoxysilaan bestaat uit methyldimethoxycyclohexanoxysilaan, methyldimethoxycyclopentenoxysilaan en/of methyldimethoxy(3.3.5-trimethyl-1.5-cyclohexadien-1-oxy)silaan.

10. Preparaat volgens een der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat het tot 700 gew.delen vulstof bevat.

11. Preparaat volgens conclusie 10, met het kenmerk, dat de vulstof bestaat uit titaandioxyde, zirkoniumsilicaat, siliciumdioxyde-aerogel, ijzeroxyde, diatomeeënaarde, door pyrolyse gevormd siliciumdioxyde, roet, geprecipiteerd siliciumdioxyde, glasvezels, polyvinylchloride, gemalen kwarts en/of calciumcarbonaat.

12. Preparaat volgens conclusie 1-11, met het kenmerk, dat het ook een effectieve hoeveelheid hechttingspromotor bevat.

13. Preparaat volgens conclusie 1-12, met het kenmerk dat het ook een effectieve hoeveelheid van een uitzakken regelend middel bevat.

14. Preparaat volgens conclusie 1-13, met het kenmerk dat het ook een werkzame hoeveelheid weekmaker bevat.

15. Preparaat volgens een der voorgaande conclusies met het kenmerk, dat de condensatiekatalysator een tinverbinding is.

16. Preparaat volgens conclusie 15, met het kenmerk, dat de tinverbinding dibutyltindiacetaat is.

17. Werkwijze voor de bereiding van een één-paks, praktische watervrij en praktisch zuurvrij, bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar preparaat dat gehard kan worden tot een vaste elastomere toestand, met het kenmerk, dat onder praktisch

8401583

watervrije omstandigheden bij een temperatuur in het traject van 0°C tot 180°C, een bij kamertemperatuur vulcaniseerbaar materiaal wordt omgeroerd (dooreen gemengd), gekozen uit

(i) een mengsel omvattende:

5           (a) 100 delen van een polydiorganosiloxan met eindstandige silanolgroepen, in hoofdzaak bestaande uit chemisch gebonden eenheden van de formule 6,

(b) een effectieve hoeveelheid van een condensatiekatalysator,

10           (c) een stabiliserende hoeveelheid van een middel op basis van silaan voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen, met de formule 2,

(d) 0-10 delen van een als verknopingsmiddel werkend silaan met de formule 5 en

15           (e) 0-5 delen van een hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidines, amines en mengsels daarvan en

(ii) een mengsel omvattende:

20           (a) 100 delen van een polydiorganosiloxanbasispolymeer waarvan het siliciumatoom aan elk uiteinde van een keten wordt afgesloten door tenminste twee alkoxygroepen,

(b) een effectieve hoeveelheid van een condensatiekatalysator,

25           (c) een stabiliserende hoeveelheid van een middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen met de formule 1,

(d) 0-10 delen van een als verknopingsmiddel werkend silaan met de formule 5 en

30           (e) 0-5 delen van een hardingsversneller gekozen uit de groep bestaande uit gesubstitueerde guanidinen, aminen en mengsels daarvan,

35           waarin R een eenwaardige C<sub>(1-13)</sub> gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, R<sub>1</sub> een C<sub>(1-8)</sub> alifatische organische groep voorstelt gekozen uit de groep bestaande uit alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano, of een

8401583

5  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, a een geheel getal van 1 tot 4 is, b een geheel getal van 0 tot 3 is, de som van a+b gelijk is aan 1 tot 4 en e gelijk is aan 0 of 1.

10 18. Werkwijze volgens conclusie 17, met het kenmerk, dat het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen uit mengsel (i), (c) de formule 4 heeft waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit de groep van alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano, of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt,  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerde of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is, X een cycloalifatische enoxygroep voorstelt, c een geheel getal van 0 tot 3 is, d een geheel getal van 1 tot 4 is en de som van c+d gelijk is aan 3 of 4 en dat het voorts een als verknopingsmiddel werkend silaan bevat van de formule 5 waarin  $R_1$  een  $C_{(1-8)}$  alifatische organische groep voorstelt gekozen uit de groep van alkyl, alkylether, alkylester, alkylketon en alkylcyano, of een  $C_{(7-13)}$  aralkylgroep voorstelt  $R_2$  een eenwaardige  $C_{(1-13)}$  gesubstitueerd of niet gesubstitueerde koolwaterstofgroep is en e gelijk is aan 0 of 1.

20 19. Werkwijze volgens conclusie 17 of 18, met het kenmerk, dat de condensatiekatalysator een tinverbinding is.

25 20. Werkwijze volgens conclusie 19, met het kenmerk, dat de tinverbinding dibutyltindiacetaat is.

30 21. Werkwijze volgens conclusie 17-20, met het kenmerk dat de groepen  $R_1$  en  $R_2$  van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen methyl-, ethyl-, propyl-, vinyl en/of fenylgroepen zijn.

22. Werkwijze volgens conclusie 17-21, met het kenmerk, dat de groepen  $R_1$  en  $R_2$  van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen methylgroepen zijn.

35 23. Werkwijze volgens conclusie 17-22, met het kenmerk, dat de cycloalifatische enoxyrest van het middel op silaanbasis

8401583

voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen 5 tot 8 koolstofatomen in de ring bezit.

5           24. Werkwijze volgens conclusie 17, met het kenmerk, dat de cycloalifatische enoxyrest van het middel op silaanbasis voor het wegvangen van funktionele hydroxylgroepen 5 of 6 koolstofatomen in de ring bezit.

10           25. Werkwijze volgens conclusie 24, met het kenmerk, <sup>het</sup> dat/funktionele cycloalifatische enoxy-silaan middel voor het wegvangen van funktionele groepen bestaat uit methyldimethoxy-cyclopentenoxysilaan en/of methyldimethoxy (3.3.5-trimethyl-1.5-cyclohexadien-1-oxy)silaan.

26. Werkwijze volgens conclusie 17-25, met het kenmerk, dat ook tot 700 gewichtsdelen vulstof worden opgenomen.

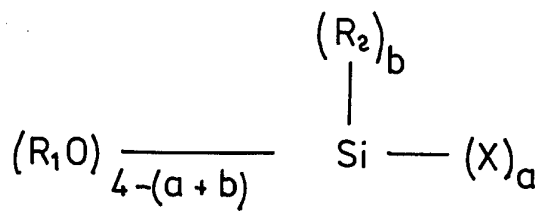
15           27. Werkwijze volgens conclusie 26, met het kenmerk, dat de vulstof bestaat uit titaandioxyde, zirkoniumsilicaat, siliciumdioxyde-aerogel, ijzeroxyde, diatomeeënaarde, door pyrolyse gevormd siliciumdioxyde, roet, geprecipiteerd siliciumdioxyde, glasvezels, polyvinylchloride, gemalen kwarts en/of calciumcarbonaat.

20           28. Werkwijze volgens conclusie 17-27, met het kenmerk, dat ook een effectieve hoeveelheid hechtingspromotor wordt opgenomen.

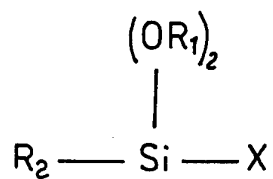
25           29. Werkwijze volgens conclusie 17-28, met het kenmerk, dat ook een effectieve hoeveelheid uitzakken regelend middel wordt opgenomen.

30           30. Werkwijze volgens conclusie 17-29, met het kenmerk, dat ook een effectieve hoeveelheid weekmaker wordt opgenomen.

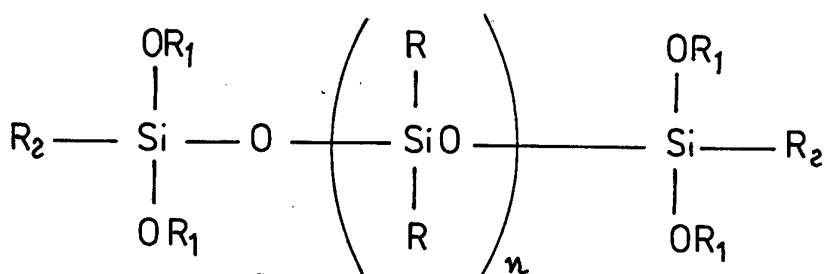
8401583



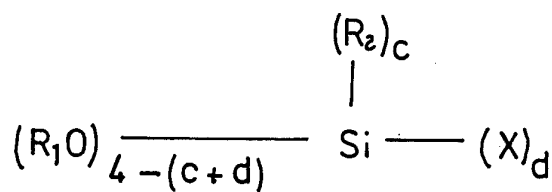
1



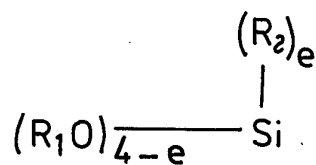
2



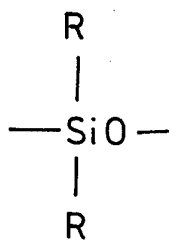
3



4



5



6

8401583