

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号
特表2025-512293
(P2025-512293A)

(43)公表日 令和7年4月17日(2025.4.17)

(51)国際特許分類		F I		テーマコード (参考)	
C 0 8 L	71/00 (2006.01)	C 0 8 L	71/00	B	4 J 0 0 2
C 0 8 L	83/05 (2006.01)	C 0 8 L	83/05		4 J 0 3 1
C 0 8 G	81/00 (2006.01)	C 0 8 G	81/00		
C 0 8 K	5/541(2006.01)	C 0 8 K	5/541		
C 0 8 K	5/5415(2006.01)	C 0 8 K	5/5415		
		審査請求	未請求	予備審査請求	未請求 (全16頁) 最終頁に続く
(21)出願番号	特願2024-558209(P2024-558209)		(71)出願人	590001418	
(86)(22)出願日	令和5年1月18日(2023.1.18)			ダウ シリコーンズ コーポレーション	
(85)翻訳文提出日	令和6年10月1日(2024.10.1)			アメリカ合衆国 4 8 6 8 6 - 0 9 9 4	
(86)国際出願番号	PCT/US2023/010994			ミシガン州 ミッドランド ウェスト サ	
(87)国際公開番号	WO2023/200497			ルツバーク ロード 2 2 0 0	
(87)国際公開日	令和5年10月19日(2023.10.19)		(74)代理人	100092783	
(31)優先権主張番号	63/330,348			弁理士 小林 浩	
(32)優先日	令和4年4月13日(2022.4.13)		(74)代理人	100095360	
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)			弁理士 片山 英二	
(81)指定国・地域	AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,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,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV		(74)代理人	100120134	
	最終頁に続く			弁理士 大森 規雄	
			(74)代理人	100156476	
				弁理士 潮 太朗	
			(72)発明者	グラスマン、マーティン	
				アメリカ合衆国 4 8 6 8 6 - 0 9 9 4	
				最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 ヒドロシリル硬化型ポリエーテル配合物

(57)【要約】

(a) 1分子当たり平均1.4個以上の不飽和炭素-炭素結合を有するポリエーテルと、(b)フェニル基を含まず、かつ、90モルパーセント以上の次のシロキサン単位の組み合わせ： $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 、 $SiO_{4/2}$ 、及び任意選択で $(R^3)_3SiO_{1/2}$ ($H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 単位の1分子当たりの平均数は2以上であり、 $SiO_{4/2}$ 単位の1分子当たりの平均数は1以上であり、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の1分子当たりの平均数は、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の数を $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 及び $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の合計で除した数が0.7未満になるような数である)を含む1つ以上のシリルヒドリド官能性ポリシロキサン架橋剤(式中、 R^3 は、各出現時に独立して、1~8個の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択される)と、(c)ヒドロシリル化触媒と、を含有する組成物であって、当該組成物中の $SiH/C=C$ のモル比が、0.3~10の範囲である、組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物であって、

a. 1 分子当たり平均 1.4 個以上の不飽和炭素－炭素結合を有するポリエーテルと、

b. フェニル基を含まず、かつ、90 モルパーセント以上の次のシロキサン単位の組み合わせ： $\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_{1/2}$ 、 $\text{SiO}_{4/2}$ 、及び任意選択で $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 、 $\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_{1/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は 2 以上であり、 $\text{SiO}_{4/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は 1 以上であり、 $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は、 $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位の数を $\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_{1/2}$ 及び $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位の合計で除した数が 0.7 未満になるような数である）を含む 1 つの又は 1 つを超える組み合わせのシリルヒドリド官能型ポリシロキサン架橋剤（式中、 R^3 は、各出現時に独立して、1～8 個の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択される）と、

10

c. ヒドロシリル化触媒と、

を含み、

前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物中の $\text{SiH}/\text{C}=\text{C}$ のモル比が、0.3～1.0 の範囲である、付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

【請求項 2】

1 分子当たり平均 2 個のシリルヒドリド基を含有し、かつ $\text{SiO}_{4/2}$ シロキサン単位を含まない鎖延長剤成分を更に含む、請求項 1 に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

20

【請求項 3】

前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物が、ヒドロシリル化触媒阻害剤を更に含む、請求項 1 又は 2 に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

【請求項 4】

前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物中の $\text{SiH}/\text{C}=\text{C}$ のモル比が、0.4～5 の範囲である、請求項 1～3 のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

【請求項 5】

前記ポリエーテルの前記不飽和炭素－炭素結合がアリル基又はメタリル基の一部である、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

30

【請求項 6】

前記ポリエーテルが、以下のポリエーテルのうちのいずれか 1 つ又は 1 つ超の任意の組み合わせである、請求項 1～5 のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物：

(i) 平均化学構造 (I) を有する三分岐ポリプロピレンオキシド：

$(\text{H}_2\text{C}=\text{CHCH}_2-\text{[OCH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)]_m-\text{O})_3-\text{R}^2$ (I)

(m の値は、所与のポリエーテルセグメント中のプロピレンオキシド単位の平均数であり、3 つのポリエーテルセグメントのそれぞれについて同じであっても異なってもよいが、但し、m の値は、3 つのセグメントのそれぞれにおいて 0 超であり、3 つ全ての m の値の合計の平均値は、60 以上であると同時に 1000 以下であり、 R^2 は、三価ヒドロカルビル基である)

40

(ii) 平均化学構造 (II) を有するジアリル末端保護ポリプロピレンオキシド：

$\{\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{O}-[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)\text{O}]_n\}_2-\text{R}^4$ (II)

(式中、 R^4 は、二価ヒドロカルビルであり、下付き文字 n は、 R^4 から離れて延びる 2 つのポリプロピレンオキシド基のそれぞれにおけるプロピレンオキシド単位の平均数であり、各出現時に独立して、10 以上の平均値を有すると同時に 1600 以下の平均値を有する)、及び

(iii) 平均化学構造 (III) を有するジメタリル末端保護ポリプロピレンオキシド：

$\{\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{CH}_2\text{O}-[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)\text{O}]_o\}_2-\text{R}^4$ (III)

50

(式中、 R^4 は、二価ヒドロカルビルであり、下付き文字 o は、 R^4 から離れて延びる2つのポリプロピレンオキシド基のそれぞれにおけるプロピレンオキシド単位の平均数であり、各出現時に独立して、10以上の平均値を有すると同時に1600以下の平均値を有する)。

【請求項7】

前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物が、追加のシリルヒドリド官能性架橋剤を更に含む、請求項1～6のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

【請求項8】

前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物が、フェニル官能基も有するシリルヒドリド官能性ポリシロキサンを含まない、請求項1～7のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

10

【請求項9】

前記シリルヒドリド官能性架橋剤が、1分子当たり平均5～6個の $SiO_4/2$ 単位、1分子当たり4～10個の $H(R^3)_2SiO_1/2$ 、及び1分子当たり0～5個の $(R^3)_3SiO_1/2$ 単位を含有し、各 R^3 が、各出現時に独立して、1～8個の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択される、請求項1～8のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物。

【請求項10】

請求項1～9のいずれか一項に記載の付加反応硬化型ポリエーテル組成物を使用するプロセスであって、別の材料上に前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物を配置することと、次いで、80℃以上に加熱することによって前記付加反応硬化型ポリエーテル組成物を硬化させることを含む、プロセス。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、相溶化架橋剤としてのフェニル官能化シリコーン架橋剤を必要としない付加反応硬化型ポリエーテル組成物に関する。

【0002】

序論

シラン変性ポリマー (Silane modified polymer、SMP) は、シラン基で終端した有機ポリマー骨格からなる材料のクラスである。SMPは、硬化のためにシラン末端基の反応性を利用して、室温加硫性 (room temperature vulcanizable、RTV) シーラントなどの接着剤及びシーラントを配合するのに有用である。現在利用可能なSMPの2つのタイプは、シラン終端ポリエーテル (silane terminated polyether、STPE) 及びシラン変性ポリウレタン (silane modified polyurethane、STPU) である。シラン終端ポリエーテルは、シラン終端ポリウレタンよりも低い弾性率及び良好な耐久性を提供する傾向があるので、特にシーラント用途において、より望ましい場合が多い。

30

【0003】

SMP組成物は、重縮合によって硬化するので、硬化するために水分を必要とする。典型的には、SMP組成物の重縮合硬化は、硬化のために大気水分を利用する。これは、硬化を達成するためには大気水分が存在しなければならないことを意味する。更に、貫通硬化を行うためには、水分がSMP組成物中に浸透しなければならないことを意味する。結果として、SMP組成物の硬化速度は、利用可能な水分及びその水分がSMP材料に浸透し得る速度に依存する。大気水分が少ない場合 (乾燥した地域など)、硬化を達成するのは困難である。大気水分が存在する場合であっても、通常水分のSMP材料への浸透は遅いので、貫通硬化はどこであろうと達成するのに数時間から数日かかる可能性がある。水分の浸透は、大気水分が長い拡散経路を通して配合物に到達することを必要とする位置にSMPベースの配合物が位置する場合に更に大きな問題となる。重縮合硬化性SMP組成物の更なる問題点は、硬化する際にメタノールなどの揮発性有機化合物 (volatile org

40

50

anic compound、VOC)を生成することである。

【0004】

水分の必要性及びVOC副生成物の生成を回避するために、重縮合以外の機構によって硬化する現在入手可能なSMP組成物の代替物を発見することが望ましい。特に、重縮合以外の機構によって硬化する付加硬化シラン変性ポリエーテル組成物を特定することが望ましい。1つの代替物の選択肢は、ヒドロシリル化などの付加硬化化学反応を使用して硬化することである。ポリエーテル組成物のヒドロシリル化化学反応に関する課題は、いずれも組成物中に存在するポリエーテル成分及びシリコーン架橋剤成分が混和性になるようにそれらとの相溶性を達成することである。この課題は、従来技術において、シリコーン架橋剤にフェニル基を組み込んで相溶性を増大させることによって対処されてきた。しかしながら、フェニル含有シリコーン材料は、製造が複雑であることから高価である。したがってフェニル官能化シリコーン架橋剤を必要としないが、互いに相溶性であり、摂氏80度(°C)で90分以内、好ましくは25°Cで24時間以内に硬化する成分を有する付加反応硬化型ポリエーテル組成物を特定することが望ましい。

10

【発明の概要】

【0005】

本発明は、フェニル官能化シリコーン架橋剤を必要としないが、互いに相溶性である成分を有する付加反応硬化型ポリエーテル組成物を提供する。付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、摂氏80度(°C)で90分以内、場合によっては25°Cで24時間以内に硬化することができる。実際、組成物全体は、フェニル官能化シリコーン架橋剤を含んでいなくてもよく、更にはフェニル官能化成分を全く含んでいなくてもよい。

20

【0006】

本発明は、 $\text{SiO}_4/2$ 、 $\text{H}(\text{R}^1)_2\text{SiO}_1/2$ 及び任意選択で $(\text{R}^1)_3\text{SiO}_1/2$ シロキサン単位の組み合わせを樹脂中の全てのシロキサン単位に対して90モルパーセント(モル%)以上含み、95モル%以上、更には99モル%以上、更には100モル%含むことができる(モル%はSiH官能性ポリシロキサン中の全シロキサン単位、好ましくは全ての共重合単位に対するモル%である)シリルヒドリド官能性シリコーン樹脂が、アルケニル官能性ポリエーテル、及び重縮合ではなく付加化学反応によって硬化するフェニル不含シラン変性ポリエーテル組成物中の好適な架橋剤と相溶性であるという発見の結果である。

30

【0007】

第1の態様において、本発明は、(a)1分子当たり平均1.4個以上の不飽和炭素-炭素結合を有するポリエーテルと、(b)フェニル基を含まず、かつ、90モルパーセント以上の次のシロキサン単位の組み合わせ： $\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_1/2$ 、 $\text{SiO}_4/2$ 及び任意選択で $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_1/2$ ($\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_1/2$ 単位の1分子当たりの平均数は2以上であり、 $\text{SiO}_4/2$ 単位の1分子当たりの平均数は1以上であり、 $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_1/2$ 単位の1分子当たりの平均数は、 $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_1/2$ 単位の数を $\text{H}(\text{R}^3)_2\text{SiO}_1/2$ 及び $(\text{R}^3)_3\text{SiO}_1/2$ 単位の合計で除した数が0.7未満になるような数である)を含む1つの又は1つを超える組み合わせのシリルヒドリド官能性ポリシロキサン架橋剤(式中、 R^3 は、各出現時に独立して、1~8個の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択される)と、(c)ヒドロシリル化触媒と、を含む、付加反応硬化型ポリエーテル組成物であって、当該付加反応硬化型ポリエーテル組成物中のSiH/C=Cのモル比が、0.3~10の範囲である、付加反応硬化型ポリエーテル組成物である。

40

【0008】

第2の態様において、本発明は、前述の態様の付加反応硬化型ポリエーテル組成物を使用するプロセスであって、別の材料上に当該付加反応硬化型ポリエーテル組成物を配置することと、次いで、80°C以上に加熱することによって当該付加反応硬化型ポリエーテル組成物を硬化させることとを含むプロセスである。

【0009】

50

本発明の付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、例えば、シーラント又は接着剤として使用することができる組成物として有用である。

【発明を実施するための形態】

【0010】

試験方法は、日付が試験方法の番号とともに示されていない場合、本文書の優先日に直近の試験方法を指す。試験方法への言及は、試験の協会及び試験方法番号への参照の両方を含む。以下の試験方法の略語及び識別名が本明細書に適用される：ASTMは米国試験材料協会（American Society for Testing and Materials）を指し、ENは、欧州規格（European Norm）を指し、DINは、ドイツ規格協会（Deutsches Institut für Normung）を指し、ISOは、国際標準化機構（International Organization for Standards）を指す。

10

【0011】

「複数の」は、2つ以上を意味する。「及び／又は」は、「及び、又は代替として」を意味する。全ての範囲は、特に指示しない限り、終点を含む。

【0012】

本明細書における化学構造は、プロピレンオキシド単位を $[\text{OCH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)]$ として示すが、化学構造がプロピレンオキシドのその配向に限定されるわけではないことが理解されるべきであり、意図される。例えば、プロピレンオキシド単位は、 $[\text{OCH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)]$ 、 $[\text{OCH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2]$ 、又は2つの配向の組み合わせであり得る。

20

【0013】

シロキサン単位は、M、D、T、及びQの表記によって特徴付けることができる。Mは、式 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ を有するシロキサン単位を指す。Dは、式 $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ を有するシロキサン単位を指す。Tは、式 $(\text{CH}_3)\text{SiO}_{3/2}$ を有するシロキサン単位を指す。Qは、式 $\text{SiO}_{4/2}$ を有するシロキサン単位を指す。M単位、D単位、及びT単位中のケイ素原子に結合した非酸素基は、別段の記載又は指示がない限り、メチル基である。特に、「1/2」の下付き文字の倍数を持つ酸素原子は、その酸素が指定された原子を第2の原子に架橋することを示し、第2の原子も「1/2」の倍数の下付き文字を持つ酸素で指定される。例えば、 $((\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2})(\text{SiO}_{4/2})$ 又はMQは、M単位のケイ素原子とQ単位のケイ素原子との間で酸素原子が共有されている、Q単位に結合したM単位を指す。下付き文字1/2の乗数は、いくつの酸素原子がシロキサン単位のケイ素原子とこのような共有されている結合配置にあるかを示す。

30

【0014】

接尾辞「型」を有するシロキサン単位の表記に対する言及は、任意の1つ又は1つを超えるメチル基が実際にはR基である（Rは、ヒドロキシル、アルコキシル、又はヒドロカルビルなどのメチル以外の基である）シロキサン単位を指す。ヒドロカルビルは、典型的には、1～8個の炭素原子を含有する。例えば、Rは、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、又はオクチルであり得る。

【0015】

シロキサン単位は、上付き文字として、アルキル基の代わりにそのケイ素原子に結合した基の表示を含み得る。例えば、「M^H型」単位は、1つのR基が水素で置換されたM単位： $(\text{R}^1)_2\text{HSiO}_{1/2}$ を指す。「M^H」単位は、1つのメチルが水素原子で置換されたM単位 $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ を指す。T^{P^h}単位は、メチル基がフェニル基で置換されたT単位を指す。

40

【0016】

M、D、T、Qの略記を用いたポリシロキサンの化学式表記は、典型的には、分子中の全てのシロキサン単位に対するそのシロキサン単位の平均モル比、又は分子中の関連するシロキサン単位の平均数のいずれかを指し得る単位識別子に付随する下付き文字を有する。シロキサン単位に付随する下付き文字が1以上である場合、下付き文字は、分子中のそ

50

これらのシロキサン単位の平均数を指す。シロキサン単位に付随する下付き文字が1未満である場合、下付き文字は、分子中の全てのシロキサン単位のモル数に対するそのシロキサン単位の平均モル比を指す。下付き文字がないことは、下付き文字の値が1であることを意味する。

【0017】

本発明の付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、不飽和炭素-炭素結合を、好ましくはアリル及び／又はメタリル官能基の形態で有するポリエーテルを含む。ポリエーテルは、直鎖若しくは分岐鎖であってもよく、又は直鎖ポリエーテル及び分岐鎖ポリエーテルの組み合わせであってもよい。ポリエーテルはフェニル基を含んでいなくてもよい。ポリエーテルは、1分子当たり平均1.4個以上、好ましくは1.6個以上、1.7個以上、更には1.8個以上の不飽和炭素-炭素結合を有し、1分子当たり平均2.0個以上の不飽和炭素-炭素結合を有し得るが、同時に、典型的には1分子当たり平均5個以下、4個以下、3個以下、更には2個以下の不飽和炭素-炭素結合を有する。典型的には、不飽和炭素-炭素結合は、炭素-炭素二重結合 ($C=C$) である。

10

【0018】

ポリエーテルは、特に限定されず、種々のポリエーテルを用いることができる。その典型例としては、反復する ($-R^1-O-$) 単位 (式中、 $-R^1-$ は二価のアルキレン基を表す) の主鎖を有するポリエーテルが挙げられる。ポリエーテルは、1種の反復単位を有していてもよく、複数種の反復単位を有していてもよい。すなわち、反復単位における R^1 は、同一であっても異なってもよい。ポリエーテルは、直鎖ポリマー又は分岐鎖ポリマーであってもよい。ポリエーテルは、ポリマー鎖に沿って反復していてもしていなくてもよい少量の他の単位を含有していてもよく、典型的には含有する。他の単位は、例えば、ポリマーを合成するために使用される開始剤に由来し得る。開始剤は、ポリエーテル前駆体を重合させるために触媒され得る任意の化学種であり得る。好適な開始剤の例としては、グリセロール及び1,4-ブタンジオールが挙げられる。

20

【0019】

ポリエーテルの主鎖は、ポリオキシプロピレン (すなわち、上記 $-R^1-$ が $-CH_2CH(CH_3)-$ である) であることが好ましい。商業的入手可能性及び加工性の点から、主鎖としてポリオキシプロピレンを有するポリエーテルが好ましい。不飽和炭素-炭素結合基以外のポリエーテルの領域は全てポリオキシアルキレン骨格を有することが好ましいが、当該領域は、他の構造単位も含有してよい。このような場合、ポリマー中のポリエーテル骨格の合計量は、ポリエーテルの重量に対して好ましくは80重量%以上、より好ましくは90重量%以上である。ポリエーテルの数平均分子量は、室温での加工性及び接着特性の観点から、好ましくは3000以上、更には5000以上であるが、同時に、典型的には5000以下、好ましくは4000以下である。数平均分子量が3000未満であるポリエーテルは、多くの場合、得られる硬化生成物がより脆くなるが、数平均分子量が5000を超えるポリエーテルは、より粘性になり、加工性が低下する。付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、異なる分子量を有するポリエーテルの組み合わせを含むことができ、これは、広い分子量分布の特性が必要であるか又は望ましいときに望ましい場合がある。上記分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー (gel permeation chromatography、GPC) によって求められるポリスチレン換算の数平均分子量である。不飽和炭素-炭素二重結合基のポリエーテルへの結合は、特に限定されず、その例としては、アルケニル基エーテルの直接結合、エステル結合、カーボネート結合、ウレタン結合、ウレア結合などが挙げられる。

30

40

【0020】

ポリエーテルは、例えば、直鎖若しくは分岐鎖のアリル若しくはメタリルで保護されたポリプロピレンオキシド又はそれらの組み合わせであり得る。望ましくは、ポリマーは、以下の3つの例示的なポリエーテルのうちのいずれか1つ又は1つを超える任意の組み合わせから選択される。

第1に、平均化学構造 (I) を有する三分岐ポリプロピレンオキシド：

50



(式中、

mの値は、所与のポリエーテルセグメント中のプロピレンオキシド単位の平均数であり、3つのポリエーテルセグメントのそれぞれについて同じであっても異なってもよいが、但し、mの値は、3つのセグメントのそれぞれにおいて0超であり、3つ全てのmの値の合計の平均値は、60以上、80以上、100以上、125以上、150以上、200以上、250以上、300以上、350以上、375以上、385以上、更には400以上であるが、同時に1000以下、750以下、700以下、600以下、500以下、400以下、又は更には385以下であり、

R²は、三価ヒドロカルビル基である、すなわち、3本のポリエーテル鎖が結合しているヒドロカルビル基である。例えば、R²は、各「-」でポリエーテル鎖が結合している化学構造-CH(CH₂-)-を有し得る)。

10

【0021】

第2に、平均化学構造(II)を有するジアリル末端保護ポリプロピレンオキシド：

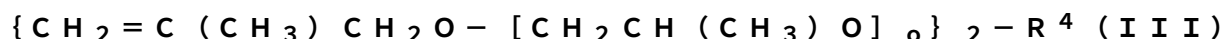


(式中、R⁴は、好ましくは1個以上の炭素原子を含有する二価ヒドロカルビルであり、2個以上、3個以上、4個以上、5個以上、6個以上、7個以上、更には8個以上であると同時に、典型的には10個以下、9個以下、8個以下、7個以下、6個以下、5個以下、4個以下、更には3個以下の炭素原子を含有し得、下付き文字nは、R⁴から離れて延びる2つのポリプロピレンオキシド基のそれぞれにおけるプロピレンオキシド単位の平均数であり、各出現時に独立して、10以上、20以上、50以上、60以上、75以上、100以上、更には125以上の平均値を有し得るが、同時に、典型的には1600以下、1400以下、1200以下、1000以下、750以下、500以下、250以下、200以下の平均値を有し、175以下、150以下、100以下、75以下、70以下、更には65以下の平均値を有し得る。1つの特に望ましいR⁴二価ヒドロカルビルは、-CH(CH₃)CH₂-である)。

20

【0022】

第3に、平均化学構造(III)を有するジメタリル末端保護ポリプロピレンオキシド：



(式中、R⁴は、好ましくは1個以上の炭素原子を含有する二価ヒドロカルビルであり、2個以上、3個以上、4個以上、5個以上、6個以上、7個以上、更には8個以上であると同時に、典型的には10個以下、9個以下、8個以下、7個以下、6個以下、5個以下、4個以下、更には3個以下の炭素原子を含有し得、下付き文字oは、R⁴から離れて延びる2つのポリプロピレンオキシド基のそれぞれにおけるプロピレンオキシド単位の平均数であり、各出現時に独立して、10以上、20以上、50以上、60以上、65以上、75以上、100以上、更には125以上の平均値を有し得るが、同時に、典型的には1600以下、1400以下、1200以下、1000以下、750以下、500以下、250以下、200以下の平均値を有し、175以下、150以下、100以下、75以下、70以下、更には70以下の平均値を有し得る。1つの特に望ましいR⁴二価ヒドロカルビルは、-CH(CH₃)CH₂-である)。

30

40

【0023】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物はまた、1つの又は1つを超えるシリル-ヒドリド(SiH)官能性ポリシロキサン架橋剤の組み合わせも含む。特に、SiH官能性ポリシロキサン架橋剤は、フェニル基を含まない。

【0024】

SiH官能性ポリシロキサン架橋剤は、シロキサン単位の組み合わせ、すなわち、SiO₄/2、H(R³)₂SiO₁/2、及び任意選択で(R³)₃SiO₁/2を90モルパーセント(モル%)以上含み、95モル%以上、更には99モル%以上、更には100モル%含んでもよく、モル%は、SiH官能性ポリシロキサン架橋剤中の全シロキサン単

50

位、好ましくは全ての共重合単位に対するものである。各 R^3 は、各出現時に独立して、1 個以上の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択され、2 個以上、3 個以上、4 個以上、5 個以上、6 個以上、更には 7 個以上であるが、同時に、典型的には 8 個以下、7 個以下、6 個以下、5 個以下、4 個以下、3 個以下、又は更には 2 個以下の炭素原子を有し得る。各 R^3 は、同一であってもよく、又は同じ分子中に異なる R^3 基が存在していてもよい。望ましくは、各 R^3 は、メチル基である。

【0025】

一般に、 SiH 官能性ポリシロキサン架橋剤は、1 分子当たり平均 1 個以上、2 個以上、3 個以上、4 個以上、5 個以上、6 個以上、10 個以上 15 個以上、更には 20 個以上であるが、同時に、典型的には 40 個以下、30 個以下、25 個以下、20 個以下、更には 15 個以下の $SiO_4/2$ シロキサン単位を含有する。

10

【0026】

一般に、 SiH 官能性ポリシロキサン架橋剤は、 $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 単位を 1 分子当たり平均 2 個以上含有し、3 個以上、4 個以上、5 個以上、6 個以上、10 個以上、15 個以上、更には 20 個以上であるが、同時に、典型的には 40 個以下、30 個以下、25 個以下、20 個以下、15 個以下、10 個以下、8 個以下、7 個以下、6 個以下、更には 5 個以下含有してもよい。

【0027】

一般に、 SiH 官能性ポリシロキサン架橋剤は、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位を 1 分子当たり平均 0 個以上、1 個以上含有し、2 個以上、3 個以上、4 個以上、5 個以上、6 個以上、10 個以上、更には 20 個以上であるが、同時に、典型的には 30 個以下、20 個以下、15 個以下、10 個以下、8 個以下、7 個以下、6 個以下、更には 5 個以下含有してもよく、但し、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の数を $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 及び $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の合計で除した数が、0.7 未満であるような数であり、0.6 以下、0.5 以下、0.4 以下、0.3 以下、0.2 以下、0.1 以下、又は更には 0 であり得るような数であってもよい。

20

【0028】

シロキサン「樹脂」は、T 型及び Q 型シロキサン単位を含有し、典型的には、「 $-OZ$ 」基（式中、Z は、H、又は 1 個以上若しくは 2 個以上であるが、同時に、8 個以下、典型的には 6 個以下の炭素原子を有するアルキル基から選択される）を有する非完全縮合 Q 型、T 型、及び時には D 型のシロキサン単位を含有する。一般に、シロキサン樹脂中の $-OZ$ 基の濃度は、樹脂中のシロキサン単位のモル数に基づいて 5 モルパーセント（モル%）以下である。本明細書において、「樹脂」は、樹脂の式において $-OZ$ 成分が特定されていない場合であっても、樹脂中のシロキサン単位のモル数に基づいて最大 5 モル%を含有すると推定される。

30

【0029】

アリル及び／又はメタリル官能基を有するポリエーテル及び SiH 官能性ポリシロキサン架橋剤の相対濃度は、付加反応硬化型ポリエーテル組成物中の $SiH/C=C$ 結合のモル比が 0.3 以上、好ましくは 0.4 以上であり、0.5 以上、0.6 以上、0.7 以上、0.8 以上、0.9 以上、1 以上、更には 1.5 以上であり得るが、同時に、望ましくは 10 以下、好ましくは 9 以下、8 以下、7 以下、6 以下、更には 5 以下、4 以下、又は更には 3 以下になるような濃度である。

40

【0030】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、ヒドロシリル化触媒を更に含む。典型的には、ヒドロシリル化触媒は、白金系ヒドロシリル化触媒である。白金系ヒドロシリル化触媒としては、化合物及び錯体、例えば、白金(0)-1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン（カルステット触媒）、白金-カルボニル錯体、白金シクロビニルメチルシロキサン錯体、白金アセチルアセトネート（acac）、シクロペンタジエニルアルキル白金、白金黒、白金化合物、例えば、塩化白金酸、塩化白金酸六水和物、塩化

50

白金酸と一価アルコールとの反応生成物、白金ビス（エチルアセトアセテート）、白金ビス（アセチルアセトナート）、二塩化白金、及び白金化合物とオレフィン若しくは低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体、又はマトリックス若しくはコアシェル型構造でマイクロカプセル化された白金化合物が挙げられる。触媒は、炭素又はアルミナなどの担体材料上にPt金属粒子又は化合物が吸着又は吸収された担持Pt触媒であってもよい。ヒドロシリル化触媒は、白金との1, 3-ジエチニル-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン錯体を含む、白金と低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体を含む溶液の一部であり得る。これらの錯体は、樹脂マトリックス中にマイクロカプセル化されていてもよい。他の遷移又は貴金属化合物、例えば、ジ-μ-カルボニルジ-π-シクロペンタジエニルジニッケルもヒドロシリル化触媒として使用することができる。

10

【0031】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、1分子当たり平均2個のSiH基を含有し、 $\text{SiO}_4/2$ シロキサン単位を含まない鎖延長剤成分を更に含んでいてもよく、又は含んでいなくてもよい。鎖延長剤は、フェニル基を含んでいてもよく、又は含んでいなくてもよい。一例として、鎖延長剤は、平均化学組成： $\text{HR}^3_2\text{SiOPh}_2\text{SiOSiR}^3_2\text{H}$ （式中、「Ph」はフェニル基を指し、 R^3 は上で定義されたとおりであり、好ましくはメチルである）を有し得る。鎖延長剤の濃度は、典型的には付加反応硬化型ポリエーテルの重量の2重量%以下であり、1.8重量%以下、1.6重量%以下、1.4重量%以下、1.2重量%以下、1.0重量%以下、0.8重量%以下、0.6重量%以下、0.3重量%以下、0.1重量%以下、又は更には0重量%であり得る。

20

【0032】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、ヒドロシリル化触媒阻害剤を更に含んでいてもよく、又は含んでいなくてもよい。好適なヒドロシリル化触媒阻害剤の例としては、次の化合物のうちのいずれか1つ又は1つを超える任意の組み合わせが挙げられる：2-メチル-3-ブチン-2-オール、3-メチル-1-ブチン-3-オール、3, 5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール、2-フェニル-3-ブチン-2-オール、3-フェニル-1-ブチン-3-オール、1-エチニル-1-シクロヘキサノール、1, 1-ジメチル-2-プロピニル（オキシ）トリメチルシラン、及びメチル（トリス（1, 1-ジメチル-2-プロピニルオキシ））シランなどのアセチレン系化合物；3-メチル-3-ペンテン-1-イン、及び3, 5-ジメチル-3-ヘキセン-1-インなどのエン-イン化合物；ベンゾトリアゾールなどのトリアゾール；ヒドラジン系化合物；ホスフィン系化合物；メルカプタン系化合物；1, 3, 5, 7-テトラメチル-1, 3, 5, 7-テトラビニルシクロテトラシロキサン及び1, 3, 5, 7-テトラメチル-1, 3, 5, 7-テトラヘキセニルシクロテトラシロキサンなどのメチルビニルシクロシロキサンを含むシクロアルケニルシロキサン。

30

【0033】

触媒からの白金に対するモル比としてのヒドロシリル化触媒阻害剤の濃度は、0以上、0.5以上、1.0以上、5.0以上、10以上、20以上、30以上、40以上、50以上、更には100以上であり得るが、同時に、典型的には200以下、100以下、50以下、40以下、30以下、20以下、10以下、5以下であり、1.0以下であってもよい。

40

【0034】

付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、1分子当たり平均2個以上、好ましくは3個以上のSiH官能基を含有する「追加の」SiH官能性架橋剤であって、上記のSiH官能性ポリシロキサン架橋剤の適格性を満たさない、追加のSiH官能性架橋剤、を更に含んでいてもよく、又は含んでいなくてもよい。追加のSiH官能性架橋剤は、Ph基を含有していてもよく、又はPh基を含んでいなくてもよい。更に、SiH官能性架橋剤は、 $\text{SiO}_4/2$ シロキサン単位を含んでいてもよく、又は $\text{SiO}_4/2$ シロキサン単位を含んでいなくてもよい。

【0035】

50

付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、フェニル官能基を有するS i H官能性ポリシロキサンを含んでいなくてもよい。S i H官能性架橋剤は、環状であっても非環状であってもよい。追加のS i H官能性架橋剤はまた、非環状であってもよい。付加反応硬化型ポリエーテル組成物は、環状S i H官能性架橋剤を含んでいなくてもよい。

【0036】

本発明は更に、付加反応硬化型ポリエーテル組成物を使用するプロセスを含む。プロセスは、付加反応硬化型ポリエーテル組成物を別の材料、例えば基材上に配置し、次いで、好ましくは摂氏80度(°C)以上の温度に加熱することによって付加反応硬化型ポリエーテル組成物を硬化させることを含む。

【実施例】

【0037】

表1に、以下の実施例において使用した成分を特定する。Meはメチルを指し、Phはフェニルを指す。

【0038】

10

20

30

40

50

【表 1】

表 1

構成成分	説明	供給元
ポリエーテル 1	平均化学構造： $\text{[H}_2\text{C=CHCH}_2\text{-[OCH}_2\text{CH(CH}_3\text{)]}_m\text{-OCH}_2\text{]}_2\text{-CH-O-[CH(CH}_3\text{)CH}_2\text{O]}_p\text{-C H}_2\text{CH=CH}_2$ （式中、各 m 及び p の合計は 385 の平均値を有する）を有するポリエーテル。	製品名 HMS-752M で Huang Ma から入手可能な材料。
ポリエーテル 2	平均化学構造： $\text{CH}_2\text{=CHCH}_2\text{O-[CH}_2\text{CH(CH}_3\text{)O]}_{63}\text{-CH(CH}_3\text{)CH}_2\text{-[O(CH}_3\text{)CHCH}_2\text{]}_{63}\text{-OCH}_2\text{CH=CH}_2$ を有するポリエーテル。	UNISAFE PKA-5230 の名称で NOF から入手可能。
ポリエーテル 3	$\text{CH}_2\text{=C(CH}_3\text{)CH}_2\text{O-[CH}_2\text{CH(CH}_3\text{)O]}_{68}\text{-CH(CH}_3\text{)CH}_2\text{-[O(CH}_3\text{)CHCH}_2\text{]}_{68}\text{-OCH}_2\text{C(CH}_3\text{)=CH}_2$ 。	塩化アリルの代わりに塩化メタリルを使用することを除いて、米国特許第 8901255 号の実施例 1 の教示に従って調製。
SiH 架橋剤 1	平均化学構造： $\text{Me}_3\text{SiO-[HMeSiO]}_{3.7}\text{-[Me}_2\text{SiO]}_{8.7}\text{-SiMe}_3$	DOWSIL (商標) 1-3502 ポリマーとして The Dow Chemical Company から入手可能。
SiH 架橋剤 2	平均化学構造： $\text{Me}_3\text{SiO-[HMeSiO]}_{56}\text{-[Me}_2\text{SiO]}_{34}\text{-SiMe}_3$	SYL-OFF (商標) 12-7672 架橋剤として The Dow Chemical Company から入手可能。
SiH 架橋剤 3	平均化学構造： $\text{Me}_3\text{SiO-[HMeSiO]}_{50}\text{-SiMe}_3$	DOWSIL (商標) MH1107 流体 20cSt として The Dow Chemical Company から入手可能。
SiH 架橋剤 4	45～50% メチルヒドロシロキサン-フェニルメチルシロキサンコポリマー-ヒドリド末端、75～110 センチストーク (cSt)、平均化学式： $\text{[HMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2\text{[PhMeSiO}_{2/2}]_{20}\text{[HMeSiO}_{2/2}]_{15}$	HPM 502 として Gelest から入手可能。
SiH 架橋剤 5	メチルトリス (ジメチルシロキシ) シラン。平均化学構造： $\text{[HMe}_2\text{SiO]}_3\text{MeSi}$	Gelest から入手可能。
SiH 架橋剤 6	フェニルトリス (ジメチルシロキシ) シラン。平均化学構造： $\text{[HMe}_2\text{SiO]}_3\text{PhSi}$	ABCR から入手可能
SiH 架橋剤 7	最大 5 モル % の $\text{Ph(OZ)SiO}_{2/2}$ を含む平均化学式： $\text{[HMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_6\text{[PhSiO}_{3/2}]_4$ （式中、Z は水素及び 1～8 個の炭素原子を有するアルキル基から選択される）。	米国特許第 7625986 号に記載のとおり調製。
SiH 架橋剤 8	最大 5 モル % の一般に $\text{(OZ)}_a\text{SiO}_{(4-a)/2}$ で表される不完全縮合 Q 成分を含む平均化学式： $\text{[HMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_{9.83}\text{[SiO}_{4/2}]_{5.65}$ （式中、下付き文字 a は 1 又は 2 であり、Z は水素及び 1～8 個の炭素原子を有するアルキル基から選択される）。	米国特許第 3884866 号に記載のとおり調製。
SiH 架橋剤 9	最大 5 モル % の一般に $\text{(OZ)}_a\text{SiO}_{(4-a)/2}$ で表される不完全縮合 Q 成分を含む平均化学式： $\text{[HMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_{3.22}\text{[Me}_3\text{SiO}_{1/2}]_{4.98}\text{[SiO}_{4/2}]_{5.72}$ （式中、下付き文字 a は 1 又は 2 であり、Z は水素及び 1～8 個の炭素原子を有するアルキル基から選択される）。	米国特許第 4774310 号に記載のとおり調製。
鎖延長剤 1	1, 1, 5, 5-テトラメチル-3, 3-ジフェニルトリスロキサン、平均化学構造： $\text{[HMe}_2\text{SiO]}_2\text{Ph}_2\text{Si}$ を有する	製品番号 T3832 として TCI から入手可能。
ヒドロシリル化触媒 1	白金 (0)-1, 3-ジビニル-1, 1, 3, 3-テトラ、エチルジシロキサン	Sigma-Aldrich から入手可能 (CAS #68478-92-2)。

10

20

30

40

50

DOWSIL は、The Dow Chemical Company の商標である。
 SYL-OFF は、Dow Corning Corporation の商標である。
 【0039】

試料組成物の調製

試料組成物の成分を以下の表に示す。ポリエーテル成分を真空下、摂氏 110 度 (°C) で 12 時間乾燥させ、グローブボックス内で保管する。2500 回転/分 (revolution per minute、RPM) で 30 秒間、Flacktec Speed Mixer (商標) (Flacktec Speed Mixer は Flacktec, Inc. の商標である) を使用して、グローブボックス内でポリエーテルを触媒成分と合わせる。グローブボ

ックス内にある間に S i H 架橋剤成分を添加し、F l a c k t e k S p e e d M i x e r (商標)を用いて 2 5 0 0 R P M で 3 0 秒間混合する。

【0040】

以下の表に示すように、試料を開放カップ内において 8 0 °C で 3 0 分間又は 9 0 分間硬化させる。

【0041】

試料組成物の特徴付け

相溶性。ガラスバイアル内の組成物混合物を目視検査することによって、組成物の成分の相溶性を評価する。「透明」又は「T」混合物は、完全な相溶性を示す。「曇り」又は「H」混合物は、粒子相溶性を示す。「不透明」又は「O」混合物は、非混和性で不相溶性であることを示す。

10

【0042】

硬化結果。硬化状態を判定するために、8 0 °C で 3 0 分間及び 9 0 分間硬化させた後に各組成物について硬化評価を行う。「1」の値は、スパチュラで表面を突いたことから確かな固化した表面を有し、上から下まで視覚的に均一である材料の固体片に「十分に硬化した」試料に割り当てられる。「2」の値は、粘着性表面を有する硬化組成物である、「硬化しているが粘着性」である試料に割り当てられる。「3」の値は、粘度は増加するが、材料の固体片には硬化していない試料に割り当てられる。「4」の値は、粘度の著しい変化なく流体のままである (remail) 試料に割り当てられ、「非硬化」試料と見なされる。

20

【0043】

試料及び結果

以下の表 2 及び表 3 に、各試料の成分をグラム (ヒドロシリル化触媒は組成物 1 0 0 万重量部当たりの重量部) で、並びに相溶性及び硬化の評価結果を列挙する。

【0044】

8 0 分間であっても相溶性及び完全硬化を達成する表 2 中の唯一の組成物は、フェニル官能基を含む S i H 官能性架橋剤のみを含有する組成物である。

【0045】

表 3 中の各組成物は、相溶性成分及び 8 0 分以内の完全硬化を示し、一部はわずか 3 0 分で完全硬化に達する。表 3 中の各組成物は、フェニル官能基を含有せず、9 0 モルパーセント以上の次のシロキサン単位の組み合わせ: $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 、 $SiO_{4/2}$ 、及び任意選択で $(R^3)_3SiO_{1/2}$ ($H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は 2 以上であり、 $SiO_{4/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は 1 以上であり、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の 1 分子当たりの平均数は、 $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の数を $H(R^3)_2SiO_{1/2}$ 及び $(R^3)_3SiO_{1/2}$ 単位の合計で除した数が 0.7 未満になるような数である) を含む S i H 官能性架橋剤を使用する (式中、 R^3 は、各出現時に独立して、1 ~ 8 個の炭素原子を有するヒドロカルビル基から選択される)。特に、表 3 は、表 2 から相溶性及び／又は硬化を達成しなかったが、表 3 から架橋剤とブレンドした場合には相溶性及び／又は硬化を達成する架橋剤とともに、そのような架橋剤の組み合わせを含む相溶性組成物を含む。

30

40

【0046】

50

【表 2】

表 2

構成成分	試料						
	CE1	CE1	CE3	CE4	CE5	CE6	CE7
SiH架橋剤1	0.2223						
SiH架橋剤2		0.0863					
SiH架橋剤3			0.0506				
SiH架橋剤4				0.132			
SiH架橋剤5					0.0717		
SiH架橋剤6						0.0883	
SiH架橋剤7							0.1286
ポリエーテル1	4	4	4	4	4	4	4
ヒドロシリル化触媒1(ppm)	5	5	5	5	5	5	5
特性評価							
相溶性	H	O	O	T	T	T	T
30分で硬化	4	4	4	3	4	4	2
80分で硬化	3	3	3	1	4	4	2

10

【0047】

【表 3】

表 3

構成成分	試料								
	IE1	IE1	IE3	IE4	IE5	IE6	IE7	IE8	IE9
SiH架橋剤1				0.111					
SiH架橋剤2					0.043				
SiH架橋剤3						0.025			
SiH架橋剤7			0.064						
SiH架橋剤8	0.081	0.041	0.041	0.041	0.041	0.041		0.163	0.185
SiH架橋剤9							0.182		
鎖延長剤1		0.067							
ポリエーテル1	4	4	4	4	4	4	4		
ポリエーテル2								4	
ポリエーテル3									5
ヒドロシリル化触媒1(ppm)	5	5	5	5	5	5	5	5	5
特性評価									
相溶性	T	T	T	T	T	H	H	H	T
30分で硬化	1	1	1	1	1	3	3	3	3
80分で硬化	1	1	1	1	1	1	1	1	1

20

30

40

50

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2023/010994

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. C08G77/38 C08G77/46

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)

C08G 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	WO 2021/126516 A1 (DOW SILICONES CORP [US]; DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC [US]) 24 June 2021 (2021-06-24) pages 3,13 - pages 3,13; claims 1,5; example Sample 21 -----	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ 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

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"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)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"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

"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

"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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

2 May 2023

Date of mailing of the international search report

10/05/2023

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Adigbli, Francis

INTERNATIONAL SEARCH REPORT				International application No PCT/US2023/010994	
Information on patent family members					
Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
WO 2021126516 A1		24-06-2021	CN	114729126 A	08-07-2022
			EP	4077484 A1	26-10-2022
			JP	2023505954 A	14-02-2023
			US	2022363837 A1	17-11-2022
			WO	2021126516 A1	24-06-2021

フロントページの続き

(51)国際特許分類		F I		テーマコード (参考)	
C O 8 K	5/05 (2006.01)	C O 8 K	5/05		
	,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(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,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT, JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,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,ZW				
	ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード 2 2 0 0				
(72)発明者	デュケーヌ、エマニュエル				
	ベルギー国 7 1 8 0 スヌッフ リュ ジュール ボルデ パルク アンデュストリエル ゾーン シー				
(72)発明者	チュー、ビジョン				
	アメリカ合衆国 4 8 6 8 6 - 0 9 9 4 ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード 2 2 0 0				
(72)発明者	ハークネス、ブライアン				
	アメリカ合衆国 4 8 6 8 6 - 0 9 9 4 ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード 2 2 0 0				
F ターム (参考)	4J002	CH051 CP042 DE196 EA017 EC047 EU177 EV017 EW137 EX038 EX057			
		FD146 FD148 FD207 GJ01 GJ02			
	4J031	AA53 AA59 AB04 AC11 AD01 AE15 AF13			