(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2025-521891
(P2025-521891A)
(43)公表日　令和7年7月10日(2025.7.10)

(51)国際特許分類		FI			テーマコード（参考）
C08G 18/00 (2006.01)		C08G	18/00	L	4J034
C08G 101/00 (2006.01)		C08G	101:00		

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全29頁）

(21)出願番号　特願2025-500064(P2025-500064)
(86)(22)出願日　令和5年7月5日(2023.7.5)
(85)翻訳文提出日　令和7年2月27日(2025.2.27)
(86)国際出願番号　PCT/US2023/026882
(87)国際公開番号　WO2024/010779
(87)国際公開日　令和6年1月11日(2024.1.11)
(31)優先権主張番号　63/358,640
(32)優先日　令和4年7月6日(2022.7.6)
(33)優先権主張国・地域又は機関
米国(US)
(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
最終頁に続く

(71)出願人　508229301
モメンティブ パフォーマンス マテリアルズ インコーポレイテッド
Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ Ｐｅｒｆｏｒｍａｎｃｅ Ｍａｔｅｒｉａｌｓ Ｉｎｃ．
アメリカ合衆国 ニューヨーク州 １２３０９ ニスカユナ ボールタウン ロード ２７５０
(74)代理人　100087642
弁理士　古谷 聡
(74)代理人　100082946
弁理士　大西 昭広
(74)代理人　100195693
弁理士　細井 玲
(72)発明者　ステンジェル，ジェイソン
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　ポリウレタンフォームポリオールブレンド用添加剤及びそれを含むポリウレタンフォーム

(57)【要約】
本技術は、低い熱伝導率を有する硬質ポリウレタンフォームを、ポリオール、イソシアネート、ポリウレタン触媒、界面活性剤、及び相溶性添加剤を含むフォーム組成物から製造する方法を提供する。相溶性添加剤は、フォーム形成性組成物中の１つまたはより多くの成分と、ポリオール成分との相溶性を向上させる。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
ポリウレタンまたはポリイソシアヌレートフォーム組成物であって：
ポリオールまたはその混合物；
イソシアネート；
相溶性添加剤；
界面活性剤；及び
ポリウレタン用触媒またはその混合物を含み；
ここで相溶性添加剤は式：
$M^1D^1_mD^2_nM^2$　　（Ｉ）
の化合物から選択され、ここで：
M^1は（R^1）（R^2）（R^3）$Si-O_{1/2}$
M^2は（R^4）（R^5）（R^6）$Si-O_{1/2}$
D^1は（R^7）（R^8）$Si-O_{2/2}$
D^2は（R^9）（R^{10}）$Si-O_{2/2}$
R^{10}は$-CH_2-CH(R^{11})-CH_2-O-[CH_2CH(CH_3)O]_p-[CH_2CH_2O]_q-R^{12}$
R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、及びR^6は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルまたはR^{10}から選択され；
R^7、R^8、及びR^9は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルから選択され、
R^{11}はＨまたはＣ１－Ｃ１０アルキル；
R^{12}はＨ、Ｃ１－Ｃ１０アルキル、またはアセチル基；
ｍは０から１００；
ｎは１から５０；
ｐは０から３５；
ｑは０－４５；そして
ｐ＋ｑ≧１である、組成物。
【請求項２】
組成物は（ｉ）イソシアネートを含む第１成分、及び（ｉｉ）ポリオールと相溶性添加剤を含む第２成分を含有する２成分型組成物である、請求項１の組成物。
【請求項３】
ｍは０及びｎは１である、請求項１または２の組成物。
【請求項４】
ｐは１から１０である、請求項３の組成物。
【請求項５】
ｑは０である、請求項４の組成物。
【請求項６】
ｑは１から１０である、請求項３の組成物。
【請求項７】
ｐは０である、請求項６の組成物。
【請求項８】
ｍ≧０、そしてｎは≧１であり、ここでｍ：ｎは≦６：１である、請求項１または２の組成物。
【請求項９】
ｍ：ｎの比率は約０.１：１から６：１である、請求項８の組成物。
【請求項１０】
０＜ｍ≦１５及び１＜ｎ≦５である、請求項８または９の組成物。
【請求項１１】
R^{11}はＨである、請求項１から１０のいずれかの組成物。
【請求項１２】

Ｒ^{11}はＣ１－Ｃ１０アルキルである、請求項１から１０のいずれかの組成物。
【請求項１３】
Ｒ^{11}はメチルである、請求項１２の組成物。
【請求項１４】
式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の２５重量％未満のケイ素含有量を有する、請求項１から１３のいずれかの組成物。
【請求項１５】
式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の２０重量％未満のケイ素含有量を有する、請求項１から１３のいずれかの組成物。
【請求項１６】
式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の約１重量％から２５重量％のケイ素含有量を有する、請求項１から１３のいずれかの組成物。
【請求項１７】
相溶性添加剤はポリオール１００部に対して約０.５から約２０部の量で存在する、請求項１から１６のいずれかの組成物。
【請求項１８】
相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量に等しい量で存在する、請求項１から１７のいずれかの組成物。
【請求項１９】
相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量を超える量で存在する、請求項１から１７のいずれかの組成物。
【請求項２０】
相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量の約１.２倍から６倍の量で存在する　　、請求項１９の組成物。
【請求項２１】
さらに発泡剤を含む、請求子１から２０のいずれかの組成物。
【請求項２２】
請求項１から２１のいずれかによる組成物を反応させることを含む、フォームの形成方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
関連出願に対するクロスリファレンス
この出願は、２０２２年７月６日に出願された米国仮特許出願第６３／３５８,６４０号の優先権及び利益を主張し、その開示内容は参照によって全体が本願に取り込まれる。
【０００２】
本技術は全般にポリウレタンフォーム組成物及びそうした組成物から作成されるフォームに関する。より具体的には、本技術はポリウレタンフォーム組成物における成分の相溶性を向上させる、特に成分とポリオールとの相溶性を向上させる添加剤に関する。この技術はまた、そうした組成物及び添加剤を用いて形成されたポリウレタンフォームに関する。
【背景技術】
【０００３】
硬質ポリウレタンフォーム及びポリイソシアヌレートフォームは、建築業界において断熱材料として広く使用されている。こうしたフォーム（発泡体）は、優れた断熱特性を示す。
【０００４】
断熱用途に使用されることのできる従来の硬質ポリウレタンフォームは一般に、適切な触媒、界面活性剤、水、及び発泡剤の存在下に、少なくとも１つのポリオールと少なくとも１つのイソシアネートとの反応によって調製されている。ポリオールとの混合物におい

ては、２成分型組成物における別個のポリオール成分としてであろうと、または成分のそれぞれを含む１成分型組成物であろうと、それぞれの成分は経時的に分離し、及び／または十分に相溶しておらず、かくして組成物は曇りを生ずる（すなわち透明性を失う）。

【発明の概要】

【０００５】

本技術は、ポリウレタンフォーム組成物に用いられるポリオールのための添加剤を提供する。この添加剤は、例えば硬質ポリウレタンフォームのようなポリウレタンフォーム組成物に使用するのに適したポリオールにおける相溶化剤として機能する。この添加剤はポリオールに安定性をもたらす。１つの実施形態において、添加剤はポリオールプリブレンドに対して提供されて、ポリオールプリブレンドに安定性及び透明性をもたらす。これはポリオールの外観において見て取ることができ、そこではプリブレンド中の成分の分離が低減または回避され、及び／またはポリオールプリブレンドの透明性において見て取ることができる。

【０００６】

この添加剤はまた、ポリウレタンフォームの製造中に発泡剤を保持するのを助けるように作用する。

【０００７】

加えて、この添加剤の使用が、本添加剤を使用して製造されるフォームの物性に対して与える悪影響は、最小限であるかまたは存在しない。

【０００８】

１つの実施態様において、本技術は、ポリオール、イソシアネート、ポリウレタン触媒、界面活性剤、本技術による相溶性添加剤、水、任意選択的に物理的発泡剤、任意選択的に化学的発泡剤、任意選択的にに難燃性添加剤またはその混合物、そして任意選択的に他の処理用添加剤を含む、ポリウレタンフォーム組成物を提供する。相溶性添加剤はシリコーン系化合物であってペンダントのポリオール基を含み、ポリオール組成物、例えばポリウレタンフォーム用ポリオールプリブレンドまたは１成分型ポリウレタンフォーム組成物において、成分の分離を低減または防止することが見出されている。

【０００９】

１つの実施態様において提供されるのは、ポリウレタンまたはポリイソシアヌレートフォーム組成物であり：ポリオールまたはその混合物；イソシアネート；相溶性添加剤；界面活性剤；及びポリウレタン用触媒またはその混合物を含み；

ここで相溶性添加剤は式：

$M^1D^1_mD^2_nM^2$　　（Ｉ）

の化合物から選択され、ここで：

M^1は（R^1）（R^2）（R^3）$Si-O_{1/2}$

M^2は（R^4）（R^5）（R^6）$Si-O_{1/2}$

D^1は（R^7）（R^8）$Si-O_{2/2}$

D^2は（R^9）（R^{10}）$Si-O_{2/2}$

R^{10}は$-CH_2-CH(R^{11})-CH_2-O-[CH_2CH(CH_3)O]_p-[CH_2CH_2O]_q-R^{12}$

R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、及びR^6は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルまたはR^{10}から選択され；

R^7、R^8、及びR^9は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルから選択され、

R^{11}はＨまたはＣ１－Ｃ１０アルキル；

R^{12}はＨ、Ｃ１－Ｃ１０アルキル、またはアセチル基；

ｍは０から１００；

ｎは１から５０；

ｐは０から３５；

ｑは０－４５；そして

ｐ＋ｑ≧１である。

【００１０】
１つの実施形態において、組成物は（ｉ）イソシアネートを含む第１成分、及び（ｉｉ）ポリオールと相溶性添加剤を含む第２成分を含有する２成分型組成物である。
【００１１】
１つの実施形態において、ｍは０及びｎは１である。
【００１２】
１つの実施形態において、ｐは１から１０である。１つの実施形態において、ｑは０である。
【００１３】
１つの実施形態において、ｑは１から１０である。１つの実施形態において、ｐは０である。
【００１４】
１つの実施形態において、ｍ≧０、そしてｎは≧１であり、ここでｍ：ｎは≦６：１である。
【００１５】
１つの実施形態において、ｍ：ｎの比率は約０.１：１から６：１である。
【００１６】
１つの実施形態において、０＜ｍ≦１５及び１＜ｎ≦５である。
【００１７】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、R^{11}はＨである。
【００１８】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、R^{11}はＣ１－Ｃ１０アルキルである。１つの実施形態において、R^{11}はメチルである。
【００１９】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の２５重量％未満のケイ素含有量を有する。
【００２０】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の２０重量％未満のケイ素含有量を有する。
【００２１】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、式（Ｉ）の化合物は式（Ｉ）の重量の約１重量％から２５重量％のケイ素含有量を有する。
【００２２】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、相溶性添加剤はポリオール１００部に対して約０.５から約２０部の量で存在する。
【００２３】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量に等しい量で存在する。
【００２４】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量を超える量で存在する。
【００２５】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、相溶性添加剤は組成物中に存在する界面活性剤の量の約１.２倍から６倍の量で存在する。
【００２６】
上記の実施形態のいずれかによる１つの実施形態において、組成物はさらに発泡剤を含む。
【００２７】
さらに別の実施態様においては、上記の実施形態のいずれかによる組成物を反応させることを含む、フォームの形成方法が提供される。

【発明を実施するための形態】
【００２８】
本技術は、フォーム形成組成物中の成分の相溶性を向上させる添加剤、こうした添加剤を含むフォーム形成組成物、及びこうしたフォーム形成組成物から作成されたフォームを提供する。この組成物は硬質フォームを提供するように使用されてよい。このフォーム組成物は：（ａ）ポリオール成分；（ｂ）イソシアネート成分；（ｃ）相溶性添加剤；（ｄ）界面活性剤；及び（ｅ）触媒成分を含む。ポリオール成分とイソシアネート成分は、２成分型組成物の各成分の別個の成分として、または１成分型混合物として提供されることができる。相溶性添加剤は、例えば、フォーム形成組成物に用いられる成分とポリオールとの相溶性を向上させることが見出されている。
【００２９】
相溶性添加剤シリコーン系化合物であり、ペンダントのポリオール基を含む。１つの実施形態において、相溶性添加剤は式（Ｉ）：
$M^1D^1_mD^2_nM^2$　　（Ｉ）
の化合物から選択され、ここで：
M^1は（R^1）（R^2）（R^3）Ｓｉ－$O_{1/2}$
M^2は（R^4）（R^5）（R^6）Ｓｉ－$O_{1/2}$
D^1は（R^7）（R^8）Ｓｉ－$O_{2/2}$
D^2は（R^9）（R^{10}）Ｓｉ－$O_{2/2}$
R^{10}は$-CH_2-CH(R^{11})-CH_2-O-[CH_2CH(CH_3)O]_p-[CH_2CH_2O]_q-R^{12}$
R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、及びR^6は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルまたはR^{10}から選択され；
R^7、R^8、及びR^9は独立してＣ１－Ｃ１０アルキルから選択され、
R^{11}はＨまたはＣ１－Ｃ１０アルキル；
R^{12}はＨ、Ｃ１－Ｃ１０アルキル、またはアセチル基；
ｍは０から１００；
ｎは１から５０；
ｐは０から３５；
ｑは０－４５；そして
ｐ＋ｑ≧１である。
【００３０】
１つの実施形態において、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6、R^7、R^8、及びR^9は独立して、Ｃ１－Ｃ１０アルキル、Ｃ２－Ｃ８アルキル、またはＣ４－Ｃ６アルキルから選択される。１つの実施形態において、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6、R^7、R^8、及びR^9は独立して、Ｃ１－Ｃ４アルキルまたはＣ１－Ｃ２アルキルから選択される。１つの実施形態において、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6、R^7、R^8、及びR^9は独立して、メチル、エチル、プロピル、ブチル、イソブチル、ｔｅｒｔ－ブチル、ペンチル、イソペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、またはデシルから選択される。１つの実施形態において、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6、R^7、R^8、及びR^9の各々はメチルである。
【００３１】
１つの実施形態において、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、及びR^6は独立して、Ｃ１－Ｃ１０アルキルまたはR^{10}から選択され、ここでR^1、R^2、R^3、R^4、R^5、及び／またはR^6の少なくとも１つはR^{10}基である。１つの実施形態において、R^1、R^2、またはR^3の少なくとも１つはR^{10}基であり、そしてR^4、R^5、またはR^6の少なくとも１つはR^{10}基である。
【００３２】
R^{11}はＨまたはＣ１－Ｃ１０アルキルから選択される。１つの実施形態において、R^{11}はＨである。１つの実施形態において、R^{11}はＣ１－Ｃ１０アルキル、Ｃ２－Ｃ８

アルキル、またはＣ４－Ｃ６アルキルから選択される。１つの実施形態において、R^{11}は-CH_3である。

【００３３】

R^{10}基はポリエチレン及びポリプロピレン単位を含み、また水素であるR^{12}基を備えて形成されたポリエチレングリコール及び／またはポリプロピレングリコール単位を含む。R^{10}基においては、ｐは０から３５、１から３０、５から２５、または１０から２０；そしてｑは０から４５、１から４０、５から３５、１０から３０、または１５から２５、ここでｐ＋ｑ≧１である。１つの実施形態において、ｑは０及びｐは≧１である。１つの実施形態において、ｑは０、そしてｐは１から１０、２から８、または３から５である。１つの実施形態において、ｐは０及びｑは≧１である。１つの実施形態において、ｐは０及びｑは１から１０、２から８、または３から５である。

【００３４】

R^{10}基は、約８５から約４０００、約２００から約２０００、または約４００から約１５００の数平均分子量を有することができる。R^{10}単位の分子量は、末端基の分析、特に滴定によって得られる水酸基価及び不飽和価によって決定することができ、さらにＮＭＲ分析を通じて裏付けることができる。

【００３５】

相溶性添加剤は少なくとも１つのD^2基を含み、すなわちｎは少なくとも１である。１つの実施形態において、相溶性添加剤はトリシロキサンであり、ここでｍは０及びｎは１である。実施形態において、相溶性添加剤はD^1基及びD^2基を含み、ここでｎは１から５０、２から４０、５から３５、１０から３０、または１５から２５；そしてｍは１から１００、５から９０、１０から８０、１５から７５、２０から６５、２５から６０、３０から５０、または４０から４５である。ｍが１を超える実施形態においては、ｍ：ｎの比率は≦６：１、≦５：１、≦４：１、≦３：１である。ｍが１を超える１つの実施形態において、ｍ：ｎの比率は約０.１：１から６：１、約０.５：１から約５：１、約１：１から約４：１、または約２：１から約３：１である。

【００３６】

１つの実施形態において、式（Ｉ）の化合物において、０＜ｍ＜１５及び１＜ｎ≦５；１≦ｍ≦１２及び２≦ｎ≦４；または５≦ｍ≦１０及び３≦ｎ≦４である。

【００３７】

２つまたはより多くの相溶性添加剤をフォーム形成性組成物に、そして特にフォーム形成性組成物のポリオール成分と共に用いることができる。１つの実施形態において、組成物は式（Ｉ）の少なくとも１つの相溶性添加剤を含み、ここでｍは０及びｎは１である。１つの実施形態において、ポリオール組成物は式（Ｉ）の第１の相溶性添加剤を含み、ここでｍは０及びｎは１、また式（Ｉ）の第２の相溶性添加剤を含み、ここでｍは０及びｎは１であり、そこにおいて第１の相溶性添加剤と第２の相溶性添加剤は、R^1－R^9基のいずれか、それらのR^{10}基、及び／またはR^{10}基におけるｐ：ｑの比率に関して相互に異なる。

【００３８】

１つの実施形態において、組成物は式（Ｉ）の第１の相溶性添加剤を含み、ここでｍは０及びｎは１、また第２の相溶性添加剤を含み、ここでｍは≧１及びｎは≧１、そしてｍ：ｎの比率は≦９：１、≦７.５：１、≦６：１、≦５：１、または≦４：１である。１つの実施形態において、ｍ：ｎの比率は約１：１から約９：１、約２：１から約８：１、約３：１から約７：１、または約４：１から約６：１である。

【００３９】

式（Ｉ）の相溶性添加剤は、実施形態において、式（Ｉ）の添加剤の２５重量％未満、２０重量％未満、１７.５重量％未満、１５重量％未満、または１０重量％未満のケイ素含有量を有する。式（Ｉ）の相溶性添加剤は１つの実施形態において、式（Ｉ）の添加剤の重量に基づいて約１重量％から約２５重量％、約３重量％から約２０重量％、約５重量％から約１７.５重量％、または約１０重量％から約１５重量％のケイ素含有量を有する。

【００４０】
相溶性添加剤は、ポリオール組成物の重量に基づいて、ポリオールの１００部当たり約０.５部から約２０部（ｐｐｈｐ）の量、約１ｐｐｈｐから約１５ｐｐｈｐ、約２.５ｐｐｈｐから約１０ｐｐｈｐ、または約５ｐｐｈｐから約７.５ｐｐｈｐの量において存在することができる。１つの実施形態において、ポリオール添加剤は、ポリオール組成物の合計重量に基づいて、約１.５ｐｐｈｐから約７ｐｐｈｐ、約２ｐｐｈｐから約６ｐｐｈｐ、または約２.５ｐｐｈｐから約５ｐｐｈｐの量で存在する。
【００４１】
ｍが０及びｎが１である第１の相溶性添加剤を含み、またｍが≧１でありｎが≧１である第２の相溶性添加剤を含む、１つの実施形態において、第１の相溶性添加剤は約１ｐｐｈｐから約１５ｐｐｈｐ、約１.５ｐｐｈｐから約１２ｐｐｈｐ、約３ｐｐｈｐから約１０ｐｐｈｐ、または約４ｐｐｈｐから約ｐｐｈｐの量で存在し、そして第２の相溶性添加剤は約０.５重量％から約６重量％、約１ｐｐｈｐから約５ｐｐｈｐ、または約２ｐｐｈｐから約４ｐｐｈｐの量で存在する。
【００４２】
１つの実施形態において、相溶性添加剤は界面活性剤の量の約１.２から約６倍の量で存在し、界面活性剤の量の約１.５から約５.５倍の量で存在し、界面活性剤の量の約２から約５倍の量で存在し、または界面活性剤の量の約２.５から約４倍の量で存在する。
【００４３】
ポリオール成分は特に限定されるものではなく、特定の目的または意図する用途により所望に応じて選択されてよい。種々の実施形態において、ポリオールはポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、ポリカーボネートポリオール、ヒドロキシル末端ポリオレフィンポリオールその他、またはこれらの２つまたはより多くの組み合わせから選択されてよい。ポリオールは例えば、ポリエステルジオール、ポリエステルトリオール、ポリエーテルジオール、ポリエーテルトリオール、その他である。或いはまた、ポリオールは、ポリチオエーテルポリオール、ポリカプロラクトン、臭素化ポリエーテルポリオール、アクリルポリオールその他、またはこれらの２つまたはより多くの組み合わせからなる群より選択されてよい。官能性の高いポリエーテルポリオールが使用される場合には、高い官能性のポリエーテルポリオールは約３から約６の官能性を有していてよい。スクロースまたはソルビトール開始剤のようなポリオールは官能性の少ないグリコールまたはアミンと混合されて、ポリオールの官能性を約３.５から約５の範囲としてよい。
【００４４】
適切なポリオールには、限定するものではないが、分子当たり２から８のヒドロキシル基と２００から１０,０００、好ましくは５００から７,５００の数平均分子量を有するものが含まれる。適切なポリオールの例には、限定するものではないが、ポリエーテルジオール及びトリオール並びにポリオール、ポリエステルジオール及びトリオール並びにポリオール、そしてヒドロキシル末端ポリオレフィンポリオール、例えばポリブタジエンジオールが含まれる。適切なポリオールの他の例には、スクロース及びアミン出発（開始された）ポリオール、ポリマーポリオール（グラフトポリマーポリオール、グラフトポリオール、またはコポリマーポリオールとも言い、これらはすべてベースポリオールにおけるビニルモノマー（通常はスチレン及び／またはアクリロニトリル）の現場での重合によって製造されるポリオール中のビニルポリマー分散物を記述するために使用される名称である）、ヒマシ油、化学変性された大豆油、または他の化学変性された脂肪酸油のような、天然に産生する物質から誘導されるポリオール、並びにヒマシ油や大豆油のような天然に産生する物質のアルコキシル化から得られるポリオールが含まれる。
【００４５】
加えて、他の特に適切なポリオールには、芳香族ポリエステルポリオールが含まれる。芳香族ポリエステルポリオールは、実質的に純粋な反応物質材料またはより複雑な出発物質から調製されてよく、例えばポリエチレンテレフタレートが使用されてよい。加えて、ジメチルテレフタレート（ＤＭＴ）プロセスの残渣を使用して、芳香族ポリエステルポリ

オールを形成してよい。

【００４６】

芳香族ポリエステルポリオールは、ハロゲン原子を含んでいてよい。それは飽和または不飽和であってよい。芳香族ポリエステルポリオールは、化合物の合計重量に基づいて少なくとも約３０重量％、３５重量％、さらには約４０重量％である、芳香族環含有量（分子当たり少なくとも１つの芳香族環を含む基の重量％として表現される）を有していてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。少なくとも約３０重量％のフタル酸残渣、またはその異性体残渣を有利に含む酸成分を有するポリエステルポリオールは、特に有用である。

【００４７】

芳香族ポリエステルポリオールは、約５０ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約１００ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約１５０ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約２００ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約２５０ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約３００ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、約３５０ｍｇＫＯＨ／ｇを超える、そしてさらには約４００ｍｇＫＯＨ／ｇを超える水酸基価を有していてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００４８】

１つの実施形態において、芳香族ポリエステルポリオールは、約１を超える、約２を超える、約３を超える、約４を超える、約５を超える、約６を超える、約７を超える、そしてさらには約８を超える官能性を有する。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００４９】

例示的なポリオールは、ポリエーテルジオール、トリオール、テトラオール、及びポリウレタンフォームの製造にこれまで用いられてきたより大きなヒドロキシル官能性のポリオールである。ポリエーテルポリオールは典型的には、ポリヒドロキシル化合物のような出発化合物、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、スクロースその他、または、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、スチレンオキシド、テトラヒドロフラン等のような１つまたはより多くのアルキレンオキシド、フェニル置換アルキレンオキシド、及び／または環状エーテルを備えた、エチレンジアミンその他のようなポリアミンを反応させることによって調製される。選択されるポリエーテルポリオール（単数または複数）は有利には、２００から１０,０００、そして好ましくは２５０から８,０００の数平均分子量（Ｍｎ）を有する。異なるポリエーテルポリオールの混合物も考慮されている。幾つかの有用なポリエーテルポリオールの例には、Ｖｏｒａｎｏｌ２２０－０２８、Ｖｏｒａｎｏｌ２２０－０９４、Ｖｏｒａｎｏｌ２２５、Ｖｏｒａｎｏｌ２７０、Ｖｏｒａｎｏｌ４９０、及びＶｏｒａｎｏｌ８００（ダウケミカル社の製品）、並びにＡｒｃｏｌ　１　１－３４（バイエルマテリアルサイエンス社）、及びその他が含まれる。

【００５０】

フォーム組成物はまた、イソシアネート組成物を含んでいる。イソシアネートは少なくとも１つのイソシアネートを含んでいてよく、そして１つよりも多いイソシアネートを含んでいてよい。イソシアネートは、芳香族イソシアネート、脂肪族イソシアネート、またはこれらの任意の組み合わせから選択されてよい。イソシアネート組成物は、ポリマーＭＤＩのような芳香族イソシアネートを含んでいてよい。イソシアネート組成物が芳香族イソシアネートを含む場合、芳香族イソシアネートは式$R^5(NCO)_z$に対応するものであってよく、ここでR^5は多価の有機ラジカルすなわち芳香族であり、そしてｚはR^5の価数に対応する整数である。一般には、ｚは少なくとも２である。

【００５１】

イソシアネート組成物は、限定するものではないが、１,４－ジイソシアネートベンゼ

ン、１,３－ジイソシアネート－ｏ－キシレン、１,３－ジイソシアネート－ｐ－キシレン、１,３－ジイソシアネート－ｍ－キシレン、２,４－ジイソシアネート－１－クロロベンゼン、２,４－ジイソシアネート－１－ニトロベンゼン、２,５－ジイソシアネート－１－ニトロベンゼン、ｍ－フェニレンジイソシアネート、ｐ－フェニレンジイソシアネート、２,４－トルエンジイソシアネート、２,６－トルエンジイソシアネート、２,４－及び２,６－トルエンジイソシアネートの混合物、１,５－ナフタレンジイソシアネート、１－メトキシ－２,４－フェニレンジイソシアネート、４,４'－ジフェニルメタンジイソシアネート、２,４'－ジフェニルメタンジイソシアネート、４,４'－ビスフェニレンジイソシアネート、３,３'－ジメチル－４,４'－ジフェニルメタンジイソシアネート、及び３,３'－ジメチルジフェニルメタン－４,４'－ジイソシアネート、トリイソシアネート例えば４,４',４''－トリフェニルメタントリイソシアネート、ポリメチレンポリフェニレンポリイソシアネート、及び２,４,６－トルエントリイソシアネート、テトライソシアネート例えば４,４'－ジメチル－２,２'－５,５'－ジフェニルメタンテトライソシアネート、トルエンジイソシアネート、２,２'－ジフェニルメタンジイソシアネート、２,４'－ジフェニルメタンジイソシアネート、４,４'－ジフェニルメタンジイソシアネート、ポリメチレンポリフェニレンポリイソシアネート、これらに対応する異性体混合物、並びにこれらの任意の組み合わせを含んでいてよい。

【００５２】

フォーム組成物はまた、１つまたはより多くの触媒、例えばゲル化触媒、発泡剤触媒、または３量化触媒を含んでいる。触媒は一般に、ポリオール（主たるポリオール成分及び／または変性または未変性フェノール樹脂）とイソシアネート組成物の反応を触媒する。具体的には、ゲル化触媒はヒドロキシルとイソシアネートの反応を触媒して、ウレタン結合を生成してよい。発泡剤触媒は水とイソシアネートの反応を促進して、尿素結合を生成してよい。３量化触媒は３つのイソシアネート基の反応を促進して、イソシアヌレート結合を形成する。本技術の触媒は１つまたはより多くの触媒を含んでいてよく、典型的には触媒の組み合わせを含んでいる。これらの触媒は、樹脂組成物とイソシアネート組成物の間の発熱反応を触媒してよい。これらの触媒は一般に、発熱反応において消費されない。触媒は、この技術分野において知られている任意の適切な触媒または触媒の混合物を含んでいてよい。適切な触媒の例には、限定するものではないが、適切な希釈剤中のアミン触媒、例えばビス（ジメチルアミノエチル）エーテルジプロピレングリコール；及び金属触媒、例えばスズ、ビスマス、鉛、その他が含まれる。含まれている場合、触媒はさまざまな量で含まれていてよい。１つの実施形態において、触媒は、Ｎ,Ｎ－ジメチルシクロヘキシルアミン（ＤＭＣＨＡ）、Ｎ,Ｎ,Ｎ',Ｎ',Ｎ''－ペンタメチルジエチレントリアミン（ＰＭＤＥＴＡ）、アミジン例えば２,３－ジメチル－３,４,５,６－テトラヒドロピルミジン、３級アミン例えばトリエチルアミン、トリブチルアミン、ジメチルベンジルアミン、Ｎ－メチルモルホリン、Ｓ－エチルモルホリン、Ｎ－シクロヘキシルモルホリン、Ｎ,Ｎ,Ｎ',Ｎ'－テトラメチルエチレンジアミン、Ｎ,Ｎ,Ｎ',Ｎ'－テトラメチルブタンジアミン、Ｎ,Ｎ,Ｎ',Ｎ'－テトラメチルヘキサン－１,６－ジアミン、ペンタメチルジエチレントリアミン、ビス（ジメチルアミノエチル）エーテル、ビス（ジメチルアミノプロピル）ウレアジメチルピペラジン、１,２－ジメチルイミダゾール、１－アザビシクロ［３.３.０］オクタン及び典型的には１,４－ジアザビシクロ［２.２.２］オクタン、アルカノールアミン化合物例えばトリエタノールアミン、トリイソプロパノールアミン、Ｎ－メチルジエタノールアミン、Ｎ－エチルジエタノールアミン、ジメチルエタノールアミン、トリス（Ｎ,Ｎ－ジメチルアミノプロピル）－ｓ－ヘキサヒドロトリアジンなどのトリス（ジアルキルアミノアルキル）－ｓ－ヘキサヒドロトリアジン、テトラメチルアンモニウムヒドロキシドなどのテトラアルキルアンモニウムヒドロキシド、水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムなどのアルカリ金属ヒドロキシド、ナトリウムメトキシド及びカリウムイソプロポキシドなどのアルカリ金属アルコキシド、１０から２０の炭素原子及び／または側鎖ヒドロキシル基を有する長鎖脂肪酸のアルカリ金属塩、スズ、鉄、鉛、ビスマス、水銀、チタン、ハフニウム、ジルコニウム、塩化鉄（ＩＩ）、塩化亜鉛、オクチル酸鉛安定化オ

クチル酸スズ、有機カルボン酸のスズ（ＩＩ）塩、例えば酢酸スズ（ＩＩ）、オクチル酸スズ（ＩＩ）、エチルヘキサン酸スズ（ＩＩ）、及びラウリン酸スズ（ＩＩ）、並びに有機カルボン酸のジアルキルスズ（ＩＶ）塩、例えばジブチルスズジラウレート、ジブチルスズジアセテート、ジブチルスズマレエート、及びジオクチルスズジアセテート、カリウム塩、オクタン酸カリウム、酢酸カリウム、及びこれらの任意の組み合わせの群より選択される。種々の実施形態において、触媒はフォーム組成物の０.５から３重量％の量、０.５から８重量％の量、１から７重量％の量、３から５.５重量％の量、さらには３.５から４.５重量％の量において含有されていてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００５３】

触媒には、例えば、フォーム形成性有機金属触媒、例えばニッケルアセトアセトネート、鉄アセトアセトネート、スズ系触媒、ビスマス系触媒、及び亜鉛系触媒が含まれる。他の有用なウレタン触媒には、アルカリ金属カルボキシレート、例えばオクチル酸カリウム、酢酸カリウム、酢酸ナトリウム、及びオクチル酸ナトリウム、水銀系や鉛系などの重金属系触媒、トリエチレンジアミンやビス（ジメチルアミノエチル）エーテルなどの３級アミンウレタン触媒、カルボン酸４級アンモニウムなどの４級アンモニウム塩触媒、例えば：エアプロダクツ社製ＤＡＢＣＯ（登録商標）ＴＭＲ触媒が含まれる。フォーム組成物はまた、界面活性剤を含んでいてよい。

【００５４】

界面活性剤は、シリコーン界面活性剤、非シリコーン界面活性剤、または両者の組み合わせであってよい。技術的に知られた任意の界面活性剤を、本発明において使用してよい。１つの実施形態において、界面活性剤はシリコーン界面活性剤の群から選択される。一般に、シリコーン界面活性剤は、樹脂組成物及びイソシアネート組成物の反応から生成される硬質フォームにおける気泡径、独立気泡の含有量、及び形状を制御してよい。

【００５５】

１つの実施形態において、界面活性剤は、ノニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤、アニオン界面活性剤、両性界面活性剤、及びこれらの組み合わせを含んでいてよい。種々の実施形態において、界面活性剤には、限定されるものではないが、ポリオキシアルキレンポリオール界面活性剤、アルキルフェノールエトキシレート界面活性剤、及びこれらの組み合わせが含まれていてよい。１つの実施形態において、スルホン酸その他の塩、例えばオレイン酸、ステアリン酸、ドデシルベンゼンジスルホン酸、またはジナフタレンメタンジスルホン酸、及びリシノレイン酸のアルカリ金属塩及び／またはアンモニウム塩は、シロキサンオキシアルキレンコポリマーおよびその他のオルガノポリシロキサン、オキシエチル化アルキルフェノール、オキシエチル化脂肪アルコール、パラフィン油、ヒマシ油、ヒマシ油エステル、リシノール酸エステル、および細胞調節剤、例えば脂肪族アルコール、ジメチルポリシロキサン、およびそれらの組み合わせのような発泡安定剤を形成する。１つの実施形態において、フォーム組成物はＮｉａｘ（登録商標）Ｌ－６９００を含んでいてよい。

【００５６】

界面活性剤が樹脂組成物中に含まれている場合には、界面活性剤は任意の適切な量で存在していてよい。種々の実施形態において、界面活性剤はフォーム組成物の０.５から３重量％の量、１から３重量％の量、または約２重量％の量で存在する。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００５７】

フォーム組成物はまた、非シリコーン界面活性剤を含んでいてよい。非シリコーン界面活性剤は、シリコーン界面活性剤と共に、または単独で使用されてよい。当技術分野で知られた任意の界面活性剤を、本発明において使用してよい。かくして界面活性剤は、ノニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤、アニオン界面活性剤、両性界面活性剤、及びこれ

らの組み合わせを含んでいてよい。種々の実施形態において、界面活性剤は、限定するものではないが、ポリオキシアルキレンポリオール界面活性剤、アルキルフェノールエトキシレート界面活性剤、及びこれらの組み合わせを含んでいてよい。界面活性剤が樹脂組成物に含まれる場合、界面活性剤は任意の適切な量で存在してよい。

【００５８】

フォーム組成物はまた、限定するものではないが、物理的発泡剤、化学的発泡剤、またはこれらの任意の組み合わせである、１つまたはより多くの発泡剤を含んでいてよい。１つの実施形態において、発泡剤は物理的発泡剤及び共化学的発泡剤の両者を含んでいてよく、また発泡剤はフォーム組成物中に含まれていてよい。物理的発泡剤は典型的には、樹脂組成物及び／またはイソシアネートと化学的に反応して発泡ガスをもたらすものではない。物理的発泡剤は、気体または液体であってよい。液体の物理的発泡剤は加熱された場合に蒸発してガス化してよく、また冷却時には液体に戻ってよい。物理的発泡剤は、硬質ポリウレタンフォームの熱伝導率を低減させてよい。この発泡剤には、限定するものではないが、塩化メチレン、アセトン、及び液体二酸化炭素、ハロゲン化炭化水素及びアルカンのような脂肪族及び／または脂環式炭化水素、アセタール、水、アルコール、グリセリン、ギ酸、及びこれらの任意の組み合わせが含まれていてよい。実施形態においては、組成物は、水、ギ酸、またはこれらの組み合わせから選択される化学的発泡剤を含んでいる。

【００５９】

種々の実施形態において、発泡剤は、ペンタン異性体、ハイドロフルオロカーボン、ハイドロフルオロオレフィン、揮発性の非ハロゲン化Ｃ２－Ｃ７炭化水素、例えばＮ－ペンタンなどのアルカン、アルケン、６までの炭素原子を有するシクロアルケン、ジアルキルエーテル、シクロアルキレンエーテル及びケトン、並びにハイドロフルオロカーボン、Ｃ１－Ｃ４ハイドロフルオロカーボン、揮発性の非ハロゲン化炭化水素、例えばブタン、イソブタン、２,３－ジメチルブタン、ｎ－ペンタン及びイソペンタン、ｎ－ヘキサン及びイソヘキサン、ｎ－ヘプタン及びイソヘプタン、ｎ－オクタン及びイソオクタン、ｎ－ノナン及びイソノナン、ｎ－デカン及びイソデカン、ｎ－ウンデカン及びイソウンデカン、並びにｎ－ドデカン及びイソドデカンのような直鎖または分岐鎖アルカン、１－ペンテン、２－メチルブテン、３－メチルブテン、及び１－ヘキセンのようなアルケン、シクロブタン、シクロペンタン、及びシクロヘキサンのようなシクロアルカン、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル、ビニルメチルエーテル、ビニルエチルエーテル、ジビニルエーテル、テトラヒドロフラン、及びフランのような直鎖及び／または環状エーテル、アセトン、メチルエチルケトン、シクロペンタノン、及びこれらの異性体のようなケトン、ジフルオロメタン（ＨＦＣ－３２）、１,１,１,２－テトラフルオロエタン（ＨＦＣ－１３４ａ）、１,１,２,２－テトラフルオロエタン（ＨＦＣ－１３４）、１,１－ジフルオロエタン（ＨＦＣ－１５２ａ）、１,２－ジフルオロエタン（ＨＦＣ－１４２）、トリフルオロメタン、ヘプタフルオロプロパン（Ｒ－２２７ａ）、ヘキサフルオロプロパン（Ｒ－１３６）、１,１,１－トリフルオロエタン、１,１,２－トリフルオロエタン、フルオロエタン（Ｒ－１６１）、１,１,１,２,２－ペンタフルオロプロパン、ペンタフルオロプロピレン（Ｒ－２１２５ａ）、１,１,１,３－テトラフルオロプロパン、テトラフルオロプロピレン（Ｒ－２１３４ａ）、ジフルオロプロピレン（Ｒ－２１５２ｂ）、１,１,２,３,３－ペンタフルオロプロパン、１,１,１,３,３－ペンタフルオロ－ｎ－ブタン、及び１,１,１,３,３－ペンタフルオロペンタン（２４５ｆａ）、その異性体、１,１,１,２－テトラフルオロエタン（ＨＦＣ－１３４ａ）、その異性体、及びこれらの組み合わせのようなハイドロフルオロカーボンから選択されてよい。種々の実施形態において、発泡剤はさらに、１,１,１,３,３－ペンタフルオロペンタン（２４５ｆａ）またはＨＦＣ２４５ｆａ、３６５ＭＦＣ、２２７ｅａ、及び１３４ａの組み合わせとして定義されてよい。代替的な実施形態において、発泡剤はさらに、３６５ＭＦＣとして定義されてよく、これは２２７ｅａとブレンドされてよい。

【００６０】

種々の実施形態において、発泡剤はフォーム組成物の０.１から２０重量％の量、１から１８重量％の量、４から１６重量％の量、７から１４重量％の量、９から１２重量％の量、または１０から１１重量％の量で存在してよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。一般に、発泡剤及び／または水の量は、硬質フォームの所望とする密度、及び樹脂組成物における発泡剤の溶解度に基づいて選択されてよい。コストを低減させるために、発泡剤の量は最小限であることが望ましいであろう。

【００６１】

フォーム組成物はまた、架橋剤及び／または鎖延長剤を含んでいてよい。架橋剤には、限定するものではないが、追加のポリオール、アミン、及びこれらの任意の組み合わせが含まれていてよい。架橋剤がフォーム組成物に含まれている場合には、架橋剤は任意の適切な量で存在してよい。本技術で使用することが考慮されている鎖延長剤には、限定するものではないが、ヒドラジン、１級及び２級ジアミン、アルコール、アミノ酸、ヒドロキシ酸、グリコール、及びこれらの組み合わせが含まれる。使用が考慮されている具体的な鎖延長剤には、限定するものではないが、モノエチレングリコール及びジエチレングリコール、モノプロピレングリコール及びジプロピレングリコール、１,４－ブタンジオール、１,３－ブタンジオール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ジエチレングリコール、メチルプロピレンジオール、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、及びトリエタノールアミン、Ｎ－Ｎ'－ビス－（２－ヒドロキシ－プロピルアニリン）、トリメチロールプロパン、グリセリン、ヒドロキノンビス（２－ヒドロキシエチル）エーテル、４,４'－メチレン－ビス（２－クロロアニリン、ジエチルトルエンジアミン、３,５－ジメチルチオ－トルエンジアミン、ヒドラジン、イソホロンジアミン、アジピン酸、シラン類、及びこれらの任意の組み合わせが含まれる。

【００６２】

フォーム組成物はまた、１つまたはより多くの添加剤を含んでいてよい。適切な添加剤には、限定するものではないが、非反応性の難燃化剤（例えば、種々のホスフェート、種々のホスホネート、トリエチルホスフェート、トリクロロプロピルホスフェート、トリフェニルホスフェート、またはジエチルエチルホスホネート、トリス（２－クロロエチル）ホスフェート、トリスエチルホスフェート、トリス（２－クロロプロピル）ホスフェート、トリス（１,３－ジクロロプロピル）ホスフェート、ジアンモニウムホスフェート、種々のハロゲン化芳香族化合物、酸化アンチモン、アルミナ３水和物、ポリ塩化ビニル、及びこれらの任意の組み合わせ）、ＯＨフリー／非反応性難燃化剤、連鎖停止剤、不活性希釈剤、アミン、消泡剤、空気放出剤、湿潤剤、表面改質剤、ワックス、不活性無機フィラー、モレキュラーシーブ、反応性無機フィラー、チョップドガラス、他の種類のガラス例えばガラスマット、処理用添加剤、表面活性剤、接着促進剤、酸化防止剤、染料、顔料、紫外線安定剤、チキソトロピー剤、老化防止剤、帯電防止剤、潤滑剤、カップリング剤、溶剤、レオロジー向上剤、気泡開放剤、剥離添加剤、及びこれらの組み合わせが含まれる。１つまたはより多くの添加剤は、フォーム組成物中に任意の量で存在してよい。

【００６３】

本発明の相溶性添加剤を用いるポリウレタンフォーム組成物は、１成分系または２成分系として提供することができる。１成分系においては、それぞれの成分は単一の組成物の一部分として提供される。ポリウレタンフォーム組成物は多くの場合、２成分型組成物として提供される。２成分型組成物においては、ポリオールとイソシアネートは別々の組成物中に備えられ、その後相互に混合されてポリウレタンが形成される。２成分系におけるイソシアネート成分は典型的には、当技術分野で「Ａ剤」成分と称され、そしてポリオール成分は多くの場合に、当技術分野で「Ｂ剤」成分と称される。

【００６４】

１つの実施形態において、ポリウレタン組成物は２成分型組成物として提供され、そこではＢ剤成分がポリオールと相溶性添加剤を含んでいる。Ｂ剤は、限定するものではないが、触媒、界面活性剤、難燃材、発泡剤、及びその他といった、他の成分を含むことがで

きる。１つの実施形態において、相溶性添加剤は、ポリオール組成物の重量に基づいて、約０.５重量％から約２０重量％、約１重量％から約１５重量％、約２.５重量％から約１０重量％、または約５重量％から約７.５重量％の量で存在することができる。１つの実施形態において、相溶性添加剤は、ポリオール組成物の合計重量に基づいて、約１.５重量％から約７重量％、約２重量％から約６重量％、または約２.５重量％から約５重量％の量で存在する。

【００６５】

ｍが０でありｎが１である第１の相溶性添加剤、及びｍが≧１でありｎが≧１である第２の相溶性添加剤を含む１つの実施形態において、第１の相溶性添加剤は約１重量％から約１５重量％、約１.５重量％から約１２重量％、約３重量％から約１０重量％、または約４重量％から約６％の量で存在し、そして第２の相溶性添加剤は約０.５重量％から約６重量％、約１重量％から約５重量％、または約２重量％から約４重量％の量で存在する。

【００６６】

フォーム組成物に加えて、この技術はまた、フォームを形成するための方法、及び表面上にフォームを形成するための方法をも提供する。

【００６７】

硬質フォームを形成するための方法は典型的には、ポリオール組成物とイソシアネート組成物を組み合わせる工程を含んでいる。より典型的には、ポリオール組成物とイソシアネート組成物は、イソシアネートインデックスが約２５０またはそれ未満となるように組み合わせられる。実施形態において、イソシアネートインデックスは約２２５またはそれ未満；約２００またはそれ未満；約１５０またはそれ未満；約１２５またはそれ未満；約１００またはそれ未満；さらには約９０またはそれ未満である。実施形態において、イソシアネートインデックスは約９０から約２５０、約９５から約２４０、約１００から約２００、約１１５から約１８０、さらには約１２５から約１６５である。１つの実施形態において、イソシアネートインデックスは約９０から約２２５；さらには約１００から約２００である。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。当業者によって理解されるように、フォームはポリウレタンフォームまたはポリイソシアヌレートフォームであってよい。イソシアネートインデックスが約２５０であるフォームは、典型的にはポリイソシアヌレートフォームの範疇に属する。しかしながら理解されるように、イソシアネートインデックスがポリウレタンフォームフォームとポリイソシアヌレートフォームを描写するような絶対値というものは存在しない。

【００６８】

表面上に硬質フォームを形成するための方法は、成分を組み合わせてフォーム混合物を形成する工程を含んでいてよい。一般にこの組み合わせ工程は、スタティックミキサー、衝突混合チャンバ、または混合ポンプといった混合装置内で行われてよい。１つの実施形態において、混合工程はスタティックミキサーのチューブ内で行われる。代替的には、フォーム組成物とイソシアネート組成物は噴霧ノズル内で組み合わせられてよい。

【００６９】

１つの実施形態において、組成物の成分は、典型的には１から５ｐｓｉの圧力を有する空気流と組み合わせられる。イソシアネート組成物は、フォーム組成物と組み合わせられる前に空気流と組み合わせられてよい。代替的には、イソシアネート組成物と組み合わせられる前に、ポリオールと変性ノボラックタイプの樹脂が、空気流と組み合わせられてよい。さらに、組成物の成分は、空気流に対して同時に組み合わせられてよい。空気流は、混合を助けると共に、フォーム混合物の均一な噴霧及び分配を促進すると考えられる。

【００７０】

組成物の成分は、表面上にあるときに、または表面から離れた状態で、組み合わせられてよい。１つの実施形態において、組成物の成分はスプレーガンのヘッドにおいて組み合わせられてよく、または組成物が適用される表面の上側の空中において組み合わせられて

よい。組成物の成分は、噴霧、浸漬、注入、コーティング、塗布その他を含む、任意の技術的に知られた方法によって組み合わせられ、表面に対して適用されてよい。

【００７１】

本技術は、硬質ポリウレタンフォーム（「硬質フォーム」）を提供する。硬質フォームは連続気泡または独立気泡であってよく、また高度に架橋したポリマー構造を含んでいてよく、フォームが良好な熱安定性、低密度における高い圧縮強度、低い熱伝導率、及び良好なバリア特性を有することを可能にする。典型的には、この技術の硬質フォームは、室温よりも高いガラス転移温度を有していてよく（およそ２３℃＋／－２℃（約７３．４°Ｆ＋／－３．６°Ｆ））、また典型的には室温において硬質である。一般に、フォームはガラス転移温度またはそれ以下では、特に貯蔵弾性率のガラス領域で硬質である。硬質フォームは、約１０から約１,１００ｋｇ／ｍ^3、約５０から約１,０００ｋｇ／ｍ^3、約１００から約８５０ｋｇ／ｍ^3、約２５０から約６５０ｋｇ／ｍ^3、さらには約３５０から約５００ｋｇ／ｍ^{3}の密度を有していてよい。１つの実施形態において、硬質フォームは約１０から約５０ｋｇ／ｍ^{3}の密度を有していてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００７２】

フォーム混合物は、任意の適切な表面、例えばレンガ、コンクリート、石積、乾式壁、石膏ボード、漆喰、金属、石、木材、プラスチック、ポリマーコンポジット、またはこれらの任意の組み合わせに対して適用されてよい。また、この表面は金型表面であってもよく、従って硬質フォームは金型中で形成されてもよい。

【００７３】

得られた硬質フォームは、スラブストック、モールディング、または空洞充填の形態で使用されてよい。空洞充填は、例えば管、断熱壁、断熱船体構造であってよい。硬質フォームは、噴霧されたフォーム、泡立ちされたフォーム、または連続的に製造されたラミネート製品または不連続に製造されたラミネート製品であってよく、限定するものではないが、他の材料、例えば硬質繊維板、石膏ボード、プラスチック、紙、金属、またはこれらの組み合わせと共に形成されたラミネートまたはラミネート製品が含まれる。

【００７４】

フォーム混合物は、１から３０ポンド／分、５から２５ポンド／分、及びさらには５から２０ポンド／分の噴霧速度において噴霧されてよい。また、フォーム混合物は一般に、３０００ｐｓｉ未満の圧力で噴霧されてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００７５】

種々の実施形態において、フォーム混合物は１回のパスで噴霧されて、目に見える変色及び／またはスコーチを最小限またはゼロにして、発泡される硬質フォームが（１回のパスで）１から１０インチ、２から８インチ、３から７インチ、４から６インチ、４から５インチ、またはさらには６から９インチの厚さを有するようにされてよい。ここで、また明細書及び特許請求の範囲のどの箇所においても、数値は組み合わせて新たな、または開示されていない範囲を形成してよい。

【００７６】

上記に説明したフォーム組成物を含む硬質フォームは、以下の実施例を参照することによりさらに理解されうる。

【実施例】

【００７７】

ポリオール組成物は、以下の配合処方に従って調製された：

【表１】

表1

材料	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
	pphp	pphp	pphp	pphp	pphp
Voranol 490	60	60	60	60	60
Voranol 800	40	40	40	40	40
水	3	3	3	3	3
C-5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
C-41	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
Opteon 発泡剤 1100/1150 (7/3)	35.09	35.09			
Solstice 液体発泡剤			28.05	28.05	
シクロペンタン					15
界面活性剤	4.3	5.78	4.08	5.5	3.7
合計	143.19	144.67	135.39	137.35	122.5

【００７８】

実験は、異なる界面活性剤を使用する組成物を用いて行った。界面活性剤は、ＭＤｘＤ'ｙＭという種類のシリコーン界面活性剤であり、ここでＤ'単位がペンダントのポリオール官能基を含んでいる。このポリエーテル官能基はポリエーテル鎖中に、エチレンオキシド及び／またはプロピレンオキシド単位を含むことができる。組成物のそれぞれにおいて用いた界面活性剤を表２に列挙した。

【表２】

表2

添加剤ラベル表示	x:y	EO	PO	ポリエーテル(PE)単独MW	シリコーンMW	コポリマーMW
界面活性剤1	6.4	12	3	743	3774	8827
界面活性剤2	4.7	12	0	569	3818	8939
界面活性剤3	13.6	12	3	743	1868	3056
界面活性剤4	6.3	18	4	1065	3530	10346
界面活性剤5	6.4	12	0	569	3774	7644
界面活性剤6	8.7	12	2	685	5433	10571
界面活性剤7	4.7	18	4	1065	3818	13403

【００７９】

相溶化剤を組成物に添加した。評価した相溶性添加剤は式（Ｉ）による物質であった。相溶性添加剤はトリシロキサン添加剤（式（Ｉ）においてｍが０）、及びポリシロキサンポリアルキレンオキシドコポリマー添加剤（式（Ｉ）においてｍが０を超える）であった。相溶性添加剤の組成を表３に列挙する：

【表３】

表3

相溶性添加剤	m	n	p	q	R11	PE末端	PEのMW	シリコーンMW	コポリマーMW	Si%
添加剤A	0	1	3	0	H	H	215	222	437	19.2
添加剤B	0	1	0	4	H	H	217	222	439	19.1
添加剤C	0	1	3	5	H	H	435	222	657	12.8
添加剤D	0	1	0	7	H	H	349	222	571	14.7
添加剤E	0	1	0	7	H	Me	363	222	585	14.3
添加剤F	0	1	3	12	Me	H	757	222	979	8.6
添加剤G	1.8	0.95	0	4	H	H	217	353	559	23.9
添加剤I	18	0.95	3	12	Me	H	757	353	1059	12.6
添加剤K	0.9	2.4	3	12	H	H	215	373	889	8.7
添加剤P	0	1	3	12	H	H	743	222	965	19.2

【００８０】

以下の表は、それぞれ界面活性剤を備えたポリオールプリブレンドの当初の外観と、透明で均一な溶液を得るために添加した相溶性添加剤の量を表している。界面活性剤を含有しない比較例（「ＣＥ」と指定）もまた実行した。幾つかの実施例においては、本発明による式（Ｉ）の組成物に該当する物質は、界面活性剤のみで評価した。

【表４】

表4–ポリオール溶液:実施例1

実施例	界面活性剤	ポリオール溶液–実施例1 界面活性剤3重量% 当初の外観	透明で均一な溶液を得るために必要な添加剤Aの重量%
1-1	1	曇り状態	6.0
1-2	2	透明で分離あり*	3.0
1-3	3	曇り状態で分離あり	>12.0
1-4	4	曇り状態で分離あり	6.0
1-5	添加剤A	透明で分離あり	3.0
1-6	5	曇り状態で分離あり	3.0
1-7	添加剤B	透明で分離あり	3.0
1-8	6	曇り状態	9.0
CE-1	界面活性剤なし	透明で分離あり	-----
1-9	7	曇り状態で分離あり	3.0
1-10	添加剤F	透明	必要なし

【００８１】

表４は、種々の界面活性剤を用いた実施例１のポリオールを備えた相溶性添加剤の評価を示している。実施例１のポリオールと共に用いられた発泡剤は、ヒドロフルオロオレフィン（ＨＦＯ－１３６６ｍｚｚ－Ｚ）である。相溶性添加剤なしでは、ポリオール組成物は曇り状態または透明であるが、成分の分離を伴う。相溶性添加剤を少なくとも１：１ま

たはそれを上回る比率で添加すると、比較例ＣＥ－１を除いて透明で均一な溶液がもたらされた。界面活性剤２、５、及び７については、透明で均一な溶液を得るために、同じ量の相溶性添加剤が適切であった。同じ量の相溶性添加剤はまた、相溶性添加剤が界面活性剤として使用される場合にも適切である。

【表５】

表5

	界面活性剤	ポリオール溶液–実施例2	
		界面活性剤4重量%	
実施例		当初の外観	透明で均一な溶液を得るために必要な添加剤Aの重量%
2-1	1	曇り状態で分離あり	8.0
2-2	2	透明で分離あり	4.0
2-3	3	曇り状態で分離あり	>12.0
2-4	4	曇り状態で分離あり	8.0
2-5	添加剤A	透明で分離あり	4.0
2-6	5	曇り状態で分離あり	4.0
2-7	添加剤B	透明で分離あり	4.0
2-8	6	曇り状態で分離あり	8.0
CE-2	界面活性剤なし	透明で分離あり	-----
2-0	7	曇り状態で分離あり	4.0

【００８２】

表５は、種々の界面活性剤を用いた実施例２のポリオールを備えた相溶性添加剤の評価を示している。実施例２のポリオールと共に用いられた発泡剤は、ヒドロフルオロオレフィン（ＨＦＯ－１３６６ｍｚｚ－Ｚ）である。高いｍ：ｎ比率（６：１よりも大きい）を有する界面活性剤は、界面活性剤の量の少なくとも２倍の量の相溶性添加剤の使用を必要とした。ｍ：ｎ比率がより低い界面活性剤が必要とする相溶性添加剤はより少なかった。

【表６】

表6

実施例	界面活性剤	ポリオール溶液–実施例3 界面活性剤3重量% 当初の外観	透明で均一な溶液を得るために必要な添加剤Aの重量%
3-1	1	曇り状態で分離あり	6.0
3-2	2	透明	必要なし
3-3	3	曇り状態で分離あり	24.0
3-4	4	曇り状態で分離あり	6.0
3-5	添加剤A	透明	必要なし
3-6	5	曇り状態で分離あり	6.0
3-7	添加剤B	透明	必要なし
3-8	6	曇り状態で分離あり	12.0
CE-3	界面活性剤なし	透明	-----
3-9	7	曇り状態で分離あり	3.0
3-10	添加剤F	透明	必要なし

【００８３】

表６は、種々の界面活性剤を用いた実施例３のポリオールを備えた相溶性添加剤の評価を示している。実施例３のポリオールと共に用いられた発泡剤は、ヒドロフルオロオレフィン（ＨＦＯ－１２３３ｚｄ（Ｅ））である。この発泡剤を用いると、ポリオール溶液は当初、界面活性剤２、界面活性剤なし、そして添加剤Ａ及びＢが界面活性剤として添加された場合については透明であった。これらの溶液は相溶性添加剤を必要としなかった。ｍ：ｎ比率が６未満の界面活性剤７は、界面活性剤に対して同量の相溶性添加剤のみを必要とした。ｍ：ｎ比率がより高い他の界面活性剤は、相溶性添加剤の量の少なくとも２倍の量を必要とした。

【表７】

表7

	界面活性剤	ポリオール溶液–実施例4	
		界面活性剤4重量%	
実施例		当初の外観	透明で均一な溶液を得るために必要な添加剤Aの重量%
4-1	1	曇り状態で分離あり	8.0
4-2	2	透明	必要なし
4-3	3	曇り状態	24.0
4-4	4	曇り状態で分離あり	8.0
4-5	添加剤A	透明	必要なし
4-6	5	曇り状態	4.0
4-7	添加剤B	透明	必要なし
4-8	6	曇り状態で分離あり	16.0
CE-4	界面活性剤なし	透明	-----
4-9	7	曇り状態で分離あり	4.0

【００８４】

実施例４のポリオール溶液は、実施例４がより多くの量の界面活性剤を使用することを除いて実施例３に類似している。実施例３の場合と同様に、界面活性剤２並びに添加剤Ａ及びＢを界面活性剤として使用した場合については、ポリオール溶液は透明であった。界面活性剤１及び４は、主たる界面活性剤と比較して２倍の使用レベルの相溶化剤を必要とし、また界面活性剤３及び６は、ポリオールプリブレンドに透明性を付与するために、さらなる添加を必要とした。構造分析が示すところでは、小さなｍ：ｎ（６未満）の場合に必要とされる相溶化剤の装填量はより少量であり、また相溶化剤自体として有用でありうるが、添加剤Ａ－Ｆよりは効率的でない。

【表８】

表8

	界面活性剤	ポリオール溶液–実施例5	
		界面活性剤3重量%	
実施例		当初の外観	透明で均一な溶液を得るために必要な添加剤Aの重量%
5-1	1	曇り状態で分離あり	18.0
5-2	2	曇り状態で分離あり	9.0
5-3	3	曇り状態で分離あり	30.0
5-4	4	曇り状態で分離あり	15.0
5-5	添加剤A	曇り状態で分離あり	12.0
5-6	5	曇り状態で分離あり	15.0
5-7	添加剤B	曇り状態で分離あり	9.0
5-8	6	曇り状態で分離あり	21.0
CE-5	界面活性剤なし	曇り状態で分離あり	-----
5-9	7	曇り状態で分離あり	12.0

【００８５】

特定の理論に拘束されるものではないが、表８は、界面活性剤の極性、ポリオールプリブレンド、発泡剤、及び相溶性添加剤が、系の均一性を維持するのに関連性があることを示すものでありうる。

【００８６】

フォームの調製

【００８７】

実施例１のポリオールプリブレンドを、界面活性剤１または界面活性剤６のいずれかと共に使用して、フォームを調製した。フォームは以下のようにして調製した。すべてのＢ剤（ポリオール）成分をボトルに添加し、キャップを閉じた。このボトルを３０分間転動させて適切な混合を行った。このＢ剤組成物のボトルの温度を７０°Ｆに制御した。これはウォーターバスを用いて、または室温それ自体によって達成することができる。ウォーターバス中にある場合は、ボトルは成分を量り分ける前に十分に振盪して、それらの混合状態を保持する。このブレンドは粘度が非常に低く、容易に混合される。

【００８８】

Ｂ剤ブレンドは、１２インチ×１２インチ×３インチの金型を充填するのに必要な量を、天秤上で紙コップに量り分ける。この量は典型的には２４０ｇ位であり、金型は１０％過剰に充填される。イソシアネート（ダウケミカル社のＰａｐｉ２７または類似物）が次いでこの紙コップへと、ポリオール混合物の上に添加される。この混合物は次いで４秒間、３５００ＲＰＭで混合され、５秒間かけて金型内に注入される。金型は、１２０°Ｆで４分間の脱型時間にわたり閉じられる。フォームパッドが取り出され、実験ラボに一晩（１６時間）、７０°Ｆの室温条件で貯蔵され、次の日に切断された。

【００８９】

物性分析手順：フォームの物性は以下のようにして分析する。

【００９０】

Ｋファクター：８インチ×８インチ×１インチの試料がフォームの中心部（コア）から

切断され、熱伝導率が分析される。分析はＬａｓｅｒｃｏｍｐ　Ｆｏｘ２００熱伝導率測定装置上で行われ、下部等温プレートが１００°Ｆ、上部等温プレートが５０°Ｆであり、平均が７５°ＦでＡＳＴＭ　Ｃ－１２８９に準じていた。

【００９１】

フォームのパッド密度及びＫファクターを、界面活性剤１または６のみを含むポリオールプリブレンドで作成されたフォームについて評価し、またポリオールプリブレンドに添加剤Ａが添加された場合について評価した。

【００９２】

表９は、これらのフォームについてのフォーム特性を示している。

【表９】

表9

フォーム		パッドの合計密度(pcf)	Kファクター (BTU•In/Hr.•ft²•° F)	コア密度 (pcf)
CF-1	乳化剤なし/界面活性剤1あり	2.12	0.1464	1.87
フォーム1	3重量%の添加剤Aを添加	2.14	0.1464	1.9
	%変化	0.94	0.0000	1.60
	6重量%の添加剤Aを添加	2.11	0.1541	1.94
	%変化	0.47	5.2596	3.74
CF-2	乳化剤なし/界面活性剤6あり	2.12	0.1469	1.86
フォーム2	3重量%の添加剤Aを添加	2.15	0.146	1.94
	%変化	1.42	0.6127	4.30
フォーム3	9重量%の添加剤Aを添加	2.13	0.1472	1.95
	%変化	0.47	0.2042	4.84

【００９３】

表９は、実施例１のポリオールを使用した場合の密度の最小限の変化（注入時間及び手で混合した場合の粘度の低減に起因する）及びｋファクターを示している。これは、少量から適度の使用レベル（１２％未満）においては、種々の発泡剤を使用した硬質フォームの物性に対する、本発明を用いることによる影響は最小限であり、そして材料は長期間にわたって透明なままであることを示している。

【００９４】

実施例３のポリオールプリブレンドを、界面活性剤１及び界面活性剤６と共に使用して、フォームを作成した。フォームは相溶性添加剤を含まずに作成し、また７.５重量％と９.０重量％の添加剤Ａを添加して作成した。９.０％の添加剤Ａは、表４に記載のようなポリオールプリブレンドの均一性を得るための最大使用レベルに近く（実施例３）、また界面活性剤２を使用する実施例５（表８）と相溶化するために必要なレベルよりも大きい。配合物Ｂ及びＦ（界面活性剤３％）の両者において、界面活性剤２を主たる界面活性剤として使用し、添加剤Ａを７.５重量％及び９.０重量％で添加してフォームを作成し、より最適な主たる界面活性剤を使用した場合の、本発明の高い使用レベルの物性に対する影響を求めた（表１０）。

【表１０】

表10

フォーム	ポリオール		パッドの合計密度(pcf)	Kファクター (BTU•In/Hr.•ft²•° F)	コア密度 (pcf)
CF-3	実施例1	相溶化剤なし/界面活性剤1あり	2.15	0.1427	1.89
フォーム4	実施例1	7.5重量%の添加剤A	2.28	0.144	1.98
		%変化	6.05	0.91	4.76
CF-4	実施例5	相溶化剤なし/界面活性剤6あり	2.15	0.1433	1.9
フォーム5	実施例5	9.0重量%の添加剤A	2.28	0.1445	1.99
		%変化	6.05	0.84	4.74

【００９５】

他の相溶性添加剤について追加の実験を行った。表１１から１３は、添加剤Ａ、Ｂ、Ｃ、Ｄ、Ｅ、Ｆ、Ｇ、Ｉ、Ｋ、及びＰを使用して、実施例１、３、及び５のポリオールプリブレンドについて透明で均一な溶液を達成することを示している。

【表１１】

表11

実施例1のポリオール	界面活性剤１	界面活性剤６
3重量%の界面活性剤での当初の外観	曇り状態	曇り状態
9重量%までの界面活性剤1追加時の外観	曇り状態	曇り状態
界面活性剤2の添加重量%–透明で均一な溶液に必要とされる量	7.5	9.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Aの添加重量%	6.0	9.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Bの添加重量%	6.0	9.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Cの添加重量%	6.0	9.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Dの添加重量%	6.0	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Eの添加重量%	N/A – 9.0%まで曇り状態	N/A – 9.0%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Fの添加重量%	7.5	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Gの添加重量%	7.5	N/A – 10.5%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Iの添加重量%	7.5	N/A – 10.5%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Kの添加重量%	9.0	N/A – 10.5%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Pの添加重量%	7.5	9.0

【表１２】

表12

実施例3のポリオール	界面活性剤１	界面活性剤６
3重量%の界面活性剤での当初の外観	曇り状態	曇り状態
9重量%までの界面活性剤1追加時の外観	曇り状態	曇り状態
界面活性剤2の添加重量%–透明で均一な溶液に必要とされる量	6.0	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Aの添加重量%	6.0	12.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Bの添加重量%	7.5	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Cの添加重量%	7.5	9.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Dの添加重量%	6.0	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Eの添加重量%	N/A – 9.0%まで曇り状態	N/A – 9.0%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Fの添加重量%	7.5	7.5
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Gの添加重量%	10.5	N/A – 9%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Iの添加重量%	10.5	N/A – 9%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Kの添加重量%	N/A – 10.5%まで曇り状態	N/A – 9%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Pの添加重量%	9.0	9.0

【表１３】

表13

実施例5のポリオール	界面活性剤１	界面活性剤６
3重量%の界面活性剤での当初の外観	曇り状態	曇り状態
15重量%までの界面活性剤1追加時の外観	曇り状態	曇り状態
界面活性剤2の添加重量%–透明で均一な溶液に必要とされる量	12.0	12.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Aの添加重量%	18.0	21.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Bの添加重量%	15.0	15.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Cの添加重量%	15.0	15.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Dの添加重量%	12.0	12.0
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Eの添加重量%	N/A – 15.0%まで曇り状態	N/A – 15.0%まで曇り状態
透明で均一な溶液に必要とされる添加剤Fの添加重量%	12.0	12.0

【００９６】

上記においては本技術の実施形態が説明されており、本明細書を読み取り理解すれば、当業者には修正及び変更が想起されてよい。以下の特許請求の範囲は、そうした修正及び変更のすべてを、それらが特許請求の範囲またはその均等物の範囲内に入る限りにおいて、包含することを意図している。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2023/026882

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08G18/76 C08G18/48 C08G77/46 C08J9/00 C08J9/14
C08L75/08 C08L83/12
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 C08J C09J C08L

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 2020/106538 A1 (MOMENTIVE PERFORMANCE MAT INC [US]) 28 May 2020 (2020-05-28) examples 16,17,21,22	1-22
X	EP 1 544 235 A1 (AIR PROD & CHEM [US]) 22 June 2005 (2005-06-22) paragraph [0036]; claim 1; examples 1-28	1-22
X	US 2015/057384 A1 (GLOS MARTIN [DE] ET AL) 26 February 2015 (2015-02-26) tables 1-3	1-22
X	US 2009/088488 A1 (BRUCKNER ARNDT [DE] ET AL) 2 April 2009 (2009-04-02) Comparative examples 1-3	1-22

☐ 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	Date of mailing of the international search report
22 September 2023	06/10/2023

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Lanz, Sandra

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/US2023/026882

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2020106538 A1	28-05-2020	BR 112021009742 A2	24-08-2021
		CA 3120512 A1	28-05-2020
		CN 113272352 A	17-08-2021
		EP 3883981 A1	29-09-2021
		JP 2022509109 A	20-01-2022
		KR 20210094008 A	28-07-2021
		US 2022017717 A1	20-01-2022
		WO 2020106538 A1	28-05-2020
EP 1544235 A1	22-06-2005	AT 338787 T	15-09-2006
		CN 1644598 A	27-07-2005
		DE 602004002265 T2	02-08-2007
		EP 1544235 A1	22-06-2005
		JP 2005179664 A	07-07-2005
		KR 20050060011 A	21-06-2005
		MX PA04012549 A	17-06-2005
		US 2005131090 A1	16-06-2005
US 2015057384 A1	26-02-2015	BR 112012002073 A2	31-05-2016
		CN 102471446 A	23-05-2012
		DE 102009028061 A1	10-02-2011
		EP 2459612 A1	06-06-2012
		ES 2729932 T3	07-11-2019
		JP 6139475 B2	31-05-2017
		JP 2013500362 A	07-01-2013
		JP 2014210934 A	13-11-2014
		KR 20120052250 A	23-05-2012
		PL 2459612 T3	30-09-2019
		TR 201908154 T4	21-06-2019
		US 2012088856 A1	12-04-2012
		US 2015057384 A1	26-02-2015
		WO 2011012390 A1	03-02-2011
US 2009088488 A1	02-04-2009	AT 507258 T	15-05-2011
		CA 2636391 A1	28-03-2009
		CN 101531768 A	16-09-2009
		DE 102007046736 A1	02-04-2009
		EP 2042542 A1	01-04-2009
		US 2009088488 A1	02-04-2009

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

,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,MU,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,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

アメリカ合衆国，オハイオ州４７５７０，マリエッタ，シズラー・ドライブ・１３００

(72)発明者　シャファンジョン，ピエール

ドイツ連邦共和国，５１３７７・レーバークーゼン，テオドール・ホイス・リング・１

(72)発明者　デイヴィス，デイヴィッド

アメリカ合衆国，ウエストヴァージニア州２６１７０，セイト・メリーズ，クレマ・アベニュー・３１７

Ｆターム（参考）　4J034　AA04 AA06 CA02 CA04 CA05 CA13 CA17 CB03 CB04 CC03 CC08 CC12 CC23 CC26 CC45 CC61 CC62 CC65 CC67 CD01 CD04 CE03 DA01 DB04 DB05 DF01 DF02 DF12 DG02 DG03 DG04 DG06 DG23 DG29 DP12 DP18 EA11 EA12 HA01 HA02 HA06 HA07 HA08 HC12 HC13 HC61 HC64 HC65 HC67 HC71 KA01 KB02 KC02 KC08 KC17 KC35 KD01 KD02 KD03 KD04 KD07 KD08 KD11 KD12 KE02 MA17 MA24 NA01 NA02 NA03 NA05 NA06 NA07 NA08 QA01 QA02 QA03 QA05 QB17 QC01 RA10 RA15