(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
05. Dezember 2019 (05.12.2019)

WIPO | PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2019/228643 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C08L 83/04 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2018/064471

(22) Internationales Anmeldedatum:
01. Juni 2018 (01.06.2018)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(71) Anmelder: **WACKER CHEMIE AG** [DE/DE]; Hanns-Seidel-Platz 4, 81737 München (DE).

(72) Erfinder: **SCHINDLER, Wolfram**; Kapellenweg 8, 84577 Tüssling (DE).

(74) Anwalt: **BUDCZINSKI, Angelika** et al.; Wacker Chemie AG, Hanns-Seidel-Platz 4, 81737 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart)*: AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart)*: ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

(54) **Title:** CROSSLINKABLE COMPOUNDS BASED ON ORGANYLOXY GROUP-CONTAINING ORGANOPOLYSILOXANES

(54) **Bezeichnung:** VERNETZBARE MASSEN AUF DER BASIS VON ORGANYLOXYGRUPPEN AUFWEISENDEN ORGANOPOLYSILOXANEN

(57) **Abstract:** The invention relates to crosslinkable compounds based on organyloxy group-containing organopolysiloxanes, in particular organopolysiloxanes with low viscosities including such organopolysiloxanes with self-leveling properties, to methods for producing same, and to the use thereof, in particular as coatings or as liquid membranes, containing (A) organyloxy group-containing organopolysiloxanes of units of the formula (I) $R_aR^1_b(OR^2)_cSiO_{(4-a-b-c)/2}$, (B) organosilicon compounds of the formula (II) $(R^4O)_dSiR^3_{(4-d)}$ (II) and/or the partial hydrolysates thereof, (C) basic nitrogen-containing organosilicon compounds of the formula (III) $(R^6O)_eSiR^5_{(4-e)}$ (III) and/or the partial hydrolysates thereof, and (D) organosilicon compounds of the formula (IV) $(R^8O)_hSiR^7_{(4-h)}$ (IV) and/or the partial hydrolysates thereof, wherein the groups and indexes have the meanings specified in claim 1.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft vernetzbare Massen auf der Basis von Organyloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen, insbesondere mit niedrigen Viskositäten einschließlich solchen mit selbstverlaufenden Eigenschaften, Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung, insbesondere als Beschichtungen oder als Flüssigmembran, enthaltend (A) Organyloxygruppen aufweisende Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I) $R_aR^1_b(OR^2)_cSiO_{(4-a-b-c)/2}$ (B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) $(R^4O)_dSiR^3_{(4-d)}$ (II), und/oder deren Teilhydrolysate, (C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) $(R^6O)_eSiR^5_{(4-e)}$ (III) und/oder deren Teilhydrolysate und (D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) $(R^8O)_hSiR^7_{(4-h)}$ (IV), und/oder deren Teilhydrolysate, wobei die Reste und Indizes die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

WO 2019/228643 A1

Vernetzbare Massen auf der Basis von Organyloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen

Die Erfindung betrifft vernetzbare Massen auf der Basis von Organyloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen, insbesondere mit niedrigen Viskositäten einschließlich solchen mit selbstverlaufenden Eigenschaften, Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung, insbesondere als Beschichtungen oder als Flüssigmembran.

Unter Ausschluss von Wasser lagerfähige, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren vulkanisierende Einkomponenten-Dichtmassen (RTV-1) sind seit langem bekannt. Diese Produkte werden in großen Mengen zum Beispiel in der Bauindustrie als Dichtstoffe für Anschluss- oder Fassadenfugen eingesetzt oder können als elastische Beschichtungen aufgetragen werden. Die Basis dieser Mischungen sind Polymere, die mit Silylgruppen terminiert sind, die reaktive Substituenten wie OH-Gruppen oder hydrolysierbare Gruppen, wie zum Beispiel Alkoxygruppen, tragen. Des Weiteren können diese Dichtmassen Füllstoffe, Weichmacher, Vernetzer, Katalysatoren sowie Additive enthalten. Hierzu sei beispielsweise auf EP-A 763557, EP-A 1865029 und EP-A 1042400 verwiesen. Alkoxy-RTV-1 Massen sind aufgrund ihrer neutralen und geruchlosen Vernetzung und der sehr guten Haftung auf unterschiedlichen Substraten gegenüber anderen Neutralsystemen bevorzugt. Derartige Alkoxy-RTV-1 Massen sind nicht nur für pastöse Dichtmassen von Interesse, sondern auch als reaktives Beschichtungsmaterial. Diese Formulierungen müssen üblicherweise mittels Pinsel und Roller streichbar oder z.B. über Airless-Spray spritzbar sein. Hier besteht die Herausforderung bei guten Verarbeitungseigenschaften und Viskositäten eine robuste Härtung und ausreichende mechanische Eigenschaften zu gewährleisten. Die einfachste Möglichkeit zur Einstellung der

Viskosität ist der Zusatz von Lösungsmitteln. Diese sind aber aufgrund ihrer Brennbarkeit oder auch als VOC unerwünscht. Niederviskose Polymere führen meist zu spröden, brüchigen Massen oder müssen über verstärkende, rheologisch aktive Füllstoffe wieder kompensiert werden. Ein Kompromiss wären Reaktivverdünner - wie beispielsweise funktionelle Alkoxysilane - diese beeinflussen aber in der Regel die Härtung sehr stark oder führen auch zu einer Versprödung des Vulkanisats.

Es bestand nun die Aufgabe, vernetzbare Massen auf der Basis von Organyloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen bereitzustellen, mit denen möglichst niedrige und einfach einzustellende Viskositäten realisiert werden können bei gleichzeitig robuster Härtung und guten mechanischen Eigenschaften, wobei die Verwendung von Lösungsmitteln oder nicht reaktiven Weichmachern nicht notwendig ist.

Gegenstand der Erfindung sind vernetzbare Massen enthaltend
(A) Organyloxygruppen aufweisende Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I)

$$R_aR^1_b(OR^2)_cSiO_{(4-a-b-c)/2} \quad (I),$$

wobei
R gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, gegebenenfalls substituierte, von aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen freie Kohlenwasserstoffreste darstellt,
R^1 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen bedeutet,

R^2 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
a 0, 1, 2 oder 3 ist,
b 0 oder 1 ist und
c 0, 1, 2 oder 3 ist,
mit der Maßgabe, dass in Formel (I) die Summe $a+b+c\leq 3$ ist und in mindestens einer Einheit c verschieden 0 ist,
(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II)

$$(R^4O)_dSiR^3_{(4-d)} \qquad (II),$$

wobei
R^3 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, aliphatische, gegebenenfalls durch Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen oder aromatische Reste bedeutet,
R^4 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
d 2, 3 oder 4, bevorzugt 3 oder 4, besonders bevorzugt 3, ist
und/oder deren Teilhydrolysate,
(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III)

$$(R^6O)_eSiR^5_{(4-e)} \qquad (III),$$

wobei
R^5 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene Reste mit basischem Stickstoff bedeutet,

R^6 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
e 2 oder 3, bevorzugt 3, ist,
und/oder deren Teilhydrolysate
und
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV)

$$(R^8O)_hSiR^7_{(4-h)} \quad (IV),$$

wobei
R^7 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, aliphatische, gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte Kohlenwasserstoffreste mit mindestens 8 Kohlenstoffatomen bedeutet,
R^8 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
h 2 oder 3, bevorzugt 3, ist,
und/oder deren Teilhydrolysate.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung sollen von dem Begriff Organopolysiloxane sowohl polymere, oligomere wie auch dimere Siloxane mitumfasst werden.

Bei den vernetzbaren Massen handelt es sich bevorzugt um durch Kondensationsreaktion vernetzbare Massen.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung soll die Bezeichnung „Kondensationsreaktion" auch einen gegebenenfalls vorangehenden Hydrolyseschritt mitumfassen.

Beispiele für Reste R sind Alkylreste, wie der Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, iso-Propyl-, 1-n-Butyl-, 2-n-Butyl-, iso-Butyl-, tert.-Butyl-, n-Pentyl-, iso-Pentyl-, neo-Pentyl-, tert.-Pentylrest; Hexylreste, wie der n-Hexylrest; Heptylreste, wie der n-Heptylrest; Octylreste, wie der n-Octylrest und iso-Octylreste, wie der 2,2,4-Trimethylpentylrest; Nonylreste, wie der n-Nonylrest; Decylreste, wie der n-Decylrest; Dodecylreste, wie der n-Dodecylrest; Octadecylreste, wie der n-Octadecylrest; Cycloalkylreste, wie der Cyclopentyl-, Cyclohexyl-, Cycloheptylrest und Methylcyclohexylreste; Arylreste, wie der Phenyl-, Naphthyl-, Anthryl- und Phenanthrylrest; Alkarylreste, wie o-, m-, p-Tolylreste; Xylylreste und Ethylphenylreste; und Aralkylreste, wie der Benzylrest, der α- und der β-Phenylethylrest.

Beispiele für substituierte Reste R sind Methoxyethyl-, Ethoxyethyl-, Ethoxyethoxyethylrest oder Polyoxyalkylreste wie Polyethylenglykol- oder Polypropylenglycolreste.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R um einwertige, von aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen freie Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, die gegebenenfalls mit Halogenatomen, Aminogruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Epoxygruppen, Mercaptogruppen, Cyanogruppen oder (Poly)-glykolresten substituiert sind, besonders bevorzugt um einwertige, von aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen freie Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methylrest.

Beispiele für Reste R^1 sind Alkenylreste, wie lineare oder verzweigte 1-Alkenylreste wie der Vinylrest und 1-Propenylrest sowie der 2-Propenylrest.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^1 um einwertige, aliphatische Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisende Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, die gegebenenfalls mit Halogenatomen, Aminogruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Epoxygruppen, Mercaptogruppen, Cyanogruppen oder (Poly)glykolresten substituiert sind, besonders bevorzugt um einwertige, aliphatische Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisende Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Vinylrest.

Beispiele für Reste R^2 sind die für R und R^1 angegebenen einwertigen Reste.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^2 um einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, besonders bevorzugt um Alkylreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl- oder Ethylrest, ganz besonders bevorzugt um den Methylrest.

Vorzugsweise handelt es sich bei erfindungsgemäß eingesetzten Organopolysiloxanen (A) um solche aus Einheiten der Formel (I) mit mindestens einer Einheit, in der b und c verschieden 0 sind.

Bevorzugt handelt es sich bei erfindungsgemäß eingesetzten Organopolysiloxanen (A) um im Wesentlichen lineare, organyloxyterminierte Organopolysiloxane, besonders bevorzugt um solche der Formel (V)

$(OR^2)_{3-f}R^1_fSi-(SiR_2-O)_g-SiR^1_f(OR^2)_{3-f}$ (V),

wobei
R, R^1 und R^2 jeweils gleich oder verschieden sein können und eine der oben angegebenen Bedeutungen haben,
g gleich 30 bis 5000 ist und
f gleich 0, 1 oder 2, bevorzugt 1, ist,
mit der Maßgabe, dass in Formel (V) in mindestens einer Einheit f verschieden 0 ist.

Obwohl in Formel (V) nicht angegeben, können die erfindungsgemäß eingesetzten Organopolysiloxane (A) der Formel (V) herstellungsbedingt einen geringen Anteil an Verzweigungen, bevorzugt bis maximal 500 ppm aller Si-Einheiten, insbesondere keine, aufweisen.

Obwohl in den Formeln (I) und (V) nicht angegeben, können die erfindungsgemäß eingesetzten Organopolysiloxane (A) herstellungsbedingt einen geringen Anteil von Hydroxylgruppen, bevorzugt bis maximal 5 % aller Si-gebundenen Reste, aufweisen.

Bevorzugte Beispiele für Organopolysiloxane (A) sind
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiMe(OMe)_2$,
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
$(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$,
$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$ oder
$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$, wobei
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$ oder
$(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$ besonders bevorzugt sind, insbesondere $(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$.

Die erfindungsgemäß eingesetzten Organopolysiloxane (A) haben eine Viskosität von bevorzugt 1000 bis 10^6 mPas, besonders bevorzugt 1000 bis 10^5 mPas, insbesondere 1000 bis 50000 mPas, jeweils bei 25°C.

Bei den Organopolysiloxanen (A) handelt es sich um handelsübliche Produkte bzw. können diese nach in der Siliciumchemie gängigen Methoden vor der Abmischung hergestellt und isoliert werden.

Beispiele für Reste R^3 sind die für R und R^1 angegebenen einwertigen Reste.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^3 um einwertige, gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte, aliphatische Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte aromatische Kohlenwasserstoffreste, besonders bevorzugt um Alkylreste mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen oder Alkenylreste mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen oder aromatische Kohlenwasserstoffreste, insbesondere um den Methyl- oder den Vinylrest.

Beispiele für Reste R^4 sind Wasserstoffatom sowie die für R und R^1 angegebenen einwertigen Reste.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^4 um einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, besonders bevorzugt um Alkylreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl- oder Ethylrest, ganz besonders bevorzugt um den Ethylrest.

Bevorzugt handelt es sich bei den in den erfindungsgemäßen Massen eingesetzten Organosiliciumverbindungen (B) um Silane mit mindestens einem Methoxy- oder Ethoxyrest und/oder deren Teilhydrolysate, besonders bevorzugt um Tetraethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Methyltriethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, Vinyl-methyldimethoxysilan, Vinyl-methyldiethoxysilan, Phenyl-trimethoxysilan, Phenyltriethoxysilan oder 1,2-Bis(triethoxysilyl)ethan und/oder deren Teilhydrolysate, insbesondere um Tetraethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan oder Vinyltriethoxysilan und/oder deren Teilhydrolysate, ganz besonders bevorzugt um Methyltrimethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan oder Vinyltriethoxysilan und/oder deren Teilhydrolysate, insbesondere bevorzugt um Vinyltriethoxysilan und/oder dessen Teilhydrolysate.

Bei den Teilhydrolysaten (B) kann es sich dabei um Teilhomohydrolysate handeln, d.h. Teilhydrolysate von einer Art von Organosiliciumverbindung der Formel (II), wie auch um Teilcohydrolysate, d.h. Teilhydrolysate von mindestens zwei verschiedenen Arten von Organosiliciumverbindungen der Formel (II).

Handelt es sich bei den in den erfindungsgemäßen Massen eingesetzten Verbindungen (B) um Teilhydrolysate von Organosiliciumverbindungen der Formel (II), so sind solche mit bis zu 10 Siliciumatomen bevorzugt.

Die in den erfindungsgemäßen Massen gegebenenfalls eingesetzten Verbindungen (B) sind handelsübliche Produkte bzw. können nach in der Siliciumchemie bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Massen enthalten Komponente (B) in Mengen von vorzugsweise 0,5 bis 15,0 Gewichtsteilen, besonders bevor-

zugt 0,5 bis 10,0 Gewichtsteilen, insbesondere 1,0 bis 5,0 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxane (A).

Beispiele für Reste R^5 sind Reste der Formeln H_2NCH_2-, $H_2N(CH_2)_2-$, $H_2N(CH_2)_3-$, $H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_2-$, $H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_3-$, $H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_2NH(CH_2)_3-$, $H_3CNH(CH_2)_3-$, $C_2H_5NH(CH_2)_3-$, $H_3CNH(CH_2)_2-$, $C_2H_5NH(CH_2)_2-$, $H_2N(CH_2)_4-$, $H_2N(CH_2)_5-$, $H(NHCH_2CH_2)_3-$, $C_4H_9NH(CH_2)_2NH(CH_2)_2-$, cyclo-$C_6H_{11}NH(CH_2)_3-$, cyclo-$C_6H_{11}NH(CH_2)_2-$, $(CH_3)_2N(CH_2)_3-$, $(CH_3)_2N(CH_2)_2-$, $(C_2H_5)_2N(CH_2)_3-$ und $(C_2H_5)_2N(CH_2)_2-$.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^5 um $H_2N(CH_2)_3-$, $H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_3-$, $H_3CNH(CH_2)_3-$, $C_2H_5NH(CH_2)_3-$ oder cyclo-$C_6H_{11}NH(CH_2)_3$-Rest, insbesondere um den $H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_3$-Rest.

Beispiele für Rest R^6 sind Wasserstoffatom sowie die für Rest R^2 angegebenen Beispiele.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^6 um einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, besonders bevorzugt um Alkylreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl- oder Ethylrest.

Bevorzugt handelt es sich bei den Organosiliciumverbindungen (C) um 3-Aminopropyl-trimethoxysilan, 3-Aminopropyl-triethoxysilan, 3-Aminopropyl-methyldimethoxysilan, 3-Aminopropyl-methyldiethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-methyldimethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyl-trimethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyl-methyldimethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyl-triethoxysilan oder N-Phenyl-3-aminopropyl-methyldiethoxysilan oder weitere N-Alkyl-

oder N,N-Dialkyl-Derivate des 3-Aminopropyl-trimethoxysilans, 3-Aminopropyl-triethoxysilans, 3-Aminopropyl-methyldimethoxysilans oder 3-Aminopropyl-methyldiethoxysilans und/oder deren Teilhydrolysate, wobei es sich bei den genannten N-Alkylresten vorzugsweise um Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, i-Propyl-, n-Butyl-, i-Butyl-, t-Butyl-, Cyclohexyl- oder die verschiedenen verzweigten oder unverzweigten Pentyl- oder Hexylreste handelt.

Besonders bevorzugt handelt es sich bei den Verbindungen (C) um 3-Aminopropyl-trimethoxysilan, 3-Aminopropyl-triethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan oder N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan, insbesondere um N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan oder N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan.

Die in den erfindungsgemäßen Massen eingesetzten Verbindungen (C) sind handelsübliche Produkte bzw. können nach in der Siliciumchemie bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Massen enthalten Komponente (C) in Mengen von vorzugsweise 0,5 bis 15,0 Gewichtsteilen, besonders bevorzugt 0,5 bis 10,0 Gewichtsteilen, insbesondere 0,5 bis 5,0 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxane (A).

In den erfindungsgemäßen Massen liegt das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) bevorzugt im Bereich von 2:1 bis 1:2, besonders bevorzugt im Bereich von 3:2 bis 2:3.

Beispiele für Reste R^7 sind die für R und R^1 angegebenen einwertigen aliphatischen Reste mit mindestens 8 Kohlenstoffatomen.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^7 um einwertige, gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder

Triorganyloxysilylgruppen substituierte, aliphatische Kohlenwasserstoffreste mit mindestens 8 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt um einwertige, gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte, aliphatische Kohlenwasserstoffreste mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen, insbesondere um aliphatische Kohlenwasserstoffreste mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen, ganz besonders bevorzugt um Alkylreste mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen.

Beispiele für Reste R^8 sind Wasserstoffatom sowie die für R und R^1 angegebenen einwertigen Reste.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^8 um einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, besonders bevorzugt um Alkylreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl- oder Ethylrest, ganz besonders bevorzugt um den Ethylrest.

Bevorzugt weist Organosiliciumverbindung (D) mindestens einen Rest R^8 mit mindestens zwei Kohlenstoffatomen auf.

Bevorzugt handelt es sich bei den in den erfindungsgemäßen Massen eingesetzten Organosiliciumverbindungen (D) um Hexadecyltrimethoxysilan, Hexadecyl-triethoxysilan, n-Octyltrimethoxysilan, n-Ooctyltriethoxysilan, Isooctyltrimethoxysilan oder Isooctyltriethoxysilan und/oder deren Teilhydrolysate, besonders bevorzugt um n-Ooctyltriethoxysilan oder Isooctyltriethoxysilan.

Bei den Teilhydrolysaten (D) kann es sich dabei um Teilhomohydrolysate handeln, d.h. Teilhydrolysate von einer Art von Organosiliciumverbindung der Formel (IV), wie auch um Teilcohydro-

lysate, d.h. Teilhydrolysate von mindestens zwei verschiedenen Arten von Organosiliciumverbindungen der Formel (IV).

Handelt es sich bei den in den erfindungsgemäßen Massen eingesetzten Verbindungen (D) um Teilhydrolysate von Organosiliciumverbindungen der Formel (IV), so sind solche mit bis zu 10 Siliciumatomen bevorzugt.

Die in den erfindungsgemäßen Massen gegebenenfalls eingesetzten Verbindungen (D) sind handelsübliche Produkte bzw. können nach in der Siliciumchemie bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Massen enthalten Komponente (D) in Mengen von vorzugsweise 5 bis 100 Gewichtsteilen, besonders bevorzugt 10 bis 80 Gewichtsteilen, insbesondere 20 bis 50 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxane (A).

Zusätzlich zu den Komponenten (A), (B), (C) und (D) können die erfindungsgemäßen Massen nun alle weiteren Stoffe enthalten, die auch bisher in durch Kondensationsreaktion vernetzbaren Massen eingesetzt worden sind, wie z.B. (E) Füllstoffe, (F) Katalysatoren, (G) Stabilisatoren, (H) Additive und (J) Weichmacher.

Beispiele für Füllstoffe (E) sind nicht verstärkende Füllstoffe, also Füllstoffe mit einer BET-Oberfläche von bis zu 50 m^2/g, wie unbeschichtete Calciumcarbonate, beschichtete Calciumcarbonate, Quarz, Diatomeenerde, Calciumsilikat, Zirkoniumsilikat, Zeolithe, Metalloxidpulver, wie Aluminium-, Titan-, Eisen- oder Zinkoxide bzw. deren Mischoxide, Bariumsulfat, Gips, Siliciumnitrid, Siliciumcarbid, Bornitrid oder Glas- und Kunststoffpulver, wie Polyacrylnitrilpulver. Beispiele für verstärkende

Füllstoffe, also Füllstoffe mit einer BET-Oberfläche von mehr als 50 m^2/g sind pyrogen hergestellte Kieselsäure, gefällte Kieselsäure, Ruße, wie Furnace- und Acetylenruß und Silicium-Aluminium-Mischoxide großer BET-Oberfläche. Ferner können auch faserförmige Füllstoffe wie Asbest oder Kunststofffasern verwendet werden. Die genannten Füllstoffe können hydrophobiert sein, beispielsweise durch die Behandlung mit Organosilanen bzw. -siloxanen, Stearinsäurederivat oder durch Veretherung von Hydroxylgruppen zu Alkoxygruppen.

Falls Füllstoffe (E) eingesetzt werden, handelt es sich bevorzugt um unbehandelte Calciumcarbonate, hydrophile, pyrogen hergestellte Kieselsäure oder hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure.

Falls die erfindungsgemäßen Massen Füllstoffe (E) enthalten, handelt es sich um Mengen von vorzugsweise 10 bis 500 Gewichtsteilen, bevorzugt 10 bis 200 Gewichtsteilen, besonders bevorzugt 50 bis 200 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxan (A).

Als Katalysator (F) können alle Härtungsbeschleuniger, die auch bisher in durch Kondensationsreaktion vernetzbare Massen eingesetzt werden, verwendet werden. Beispiele für gegebenenfalls eingesetzte Katalysatoren (F) sind organische Zinnverbindungen, wie Di-n-butylzinndilaurat und Di-n-butylzinndiacetat, Di-n-butylzinnoxid, Dioctylzinndiacetat, Dioctylzinndilaurat, Dioctylzinnoxid sowie Umsetzungsprodukte dieser Verbindungen mit Alkoxysilanen und organofunktionellen Alkoxysilane, wie Tetraethoxysilan und Aminopropyl-triethoxysilan, bevorzugt sind Di-n-butylzinndilaurat, Dioctylzinndilaurat, Umsetzungsprodukte von Dibutyl- und Dioctylzinnoxid mit Tetraethylsilikat-Hydrolysat

oder Mischhydrolysaten mit Aminopropylsilanen, insbesondere bevorzugt Di-n-butylzinnoxid in Tetraethylsilikat-Hydrolysat.

Falls die erfindungsgemäßen Massen Katalysatoren (F) enthalten, was bevorzugt ist, handelt es sich um Mengen von vorzugsweise 0,01 bis 3 Gewichtsteilen, bevorzugt 0,05 bis 2 Gewichtteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxan (A).

Bevorzugte Beispiele für Stabilisatoren (G) sind Phosphorsäure, Phosphonsäuren, Phosphonsäure-alkylester oder Phosphorsäure-alkylester.

Falls die erfindungsgemäßen Massen Stabilisatoren (G) enthalten, was bevorzugt ist, handelt es sich um Mengen von vorzugsweise 0,01 bis 100 Gewichtsteilen, besonders bevorzugt 0,1 bis 30 Gewichtsteilen, insbesondere 0,3 bis 10 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteilen Organopolysiloxan (A).

Beispiele für Additive (H) sind Pigmente, Farbstoffe, Riechstoffe, Oxidationsinhibitoren, Mittel zur Beeinflussung der elektrischen Eigenschaften, wie leitfähiger Ruß, flammabweisend machende Mittel, Lichtschutzmittel, Fungizide, Hitzestabilisatoren, Scavenger, wie Si-N enthaltende Silazane oder Silylamide, Cokatalysatoren, Thixotropiermittel, wie beispielsweise Polyethylen-, Polypropylenglycole oder Copolymere daraus, organische Lösungsmittel, wie Alkylaromaten, Paraffinöle, sowie beliebige Siloxane, die unterschiedlich zu Komponente (A) sind.

Bevorzugt werden zur Herstellung der erfindungsgemäßen Massen keine organischen Lösungsmittel (H) eingesetzt.

Falls die erfindungsgemäßen Massen Additive (H) enthalten, handelt es sich um Mengen von vorzugsweise 0,01 bis 100 Gewichts-

teilen, besonders bevorzugt 0,1 bis 30 Gewichtsteilen, insbesondere 0,3 bis 10 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxan (A).

Beispiele für gegebenenfalls eingesetzte Weichmacher (J) sind bei Raumtemperatur und einem Druck von 1013 hPa flüssige, mit Trimethylsiloxygruppen terminierte Dimethylpolysiloxane, insbesondere mit Viskositäten bei 25°C im Bereich zwischen 20 und 5000 mPas, bei Raumtemperatur und einem Druck von 1013 hPa flüssige Organopolysiloxane, die im Wesentlichen aus $SiO_{3/2}$-, $SiO_{2/2}$- und $SiO_{1/2}$-Einheiten, sogenannte T-, D- und M-Einheiten, bestehen, sowie hochsiedende Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Paraffinöle oder Mineralöle bestehend im Wesentlichen aus naphthenischen und paraffinischen Einheiten.

Bevorzugt handelt es sich bei dem gegebenenfalls eingesetzten Weichmacher (J) um lineare Polydimethylsiloxane mit Trimethylsilylendgruppen.

Falls die erfindungsgemäßen Massen Weichmacher (J) enthalten, handelt es sich um Mengen von vorzugsweise 10 bis 300 Gewichtsteilen, besonders bevorzugt 10 bis 1500 Gewichtsteilen, insbesondere 10 bis 50 Gewichtsteilen, jeweils bezogen auf 100 Gewichtsteile Organopolysiloxan (A). Bevorzugt enthalten die erfindungsgemäßen Massen keine Weichmacher (J).

Vorzugsweise handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend

(A) Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I),

(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) mit mindestens einem R^4 gleich Methyl- oder Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) und/oder deren Teilhydrolysate,
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit mindestens einem R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
gegebenenfalls (E) Füllstoffe,
gegebenenfalls (F) Katalysatoren,
gegebenenfalls (G) Stabilisatoren,
gegebenenfalls (H) Additive und
gegebenenfalls (J) Weichmacher.

Bevorzugt handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend
(A) Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I) mit mindestens einer Einheit, in der b und c verschieden 0 sind,
(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) mit mindestens einem R^4 gleich Methyl- oder Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) und/oder deren Teilhydrolysate,
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit mindestens einem R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
gegebenenfalls (E) Füllstoffe,
gegebenenfalls (F) Katalysatoren,
gegebenenfalls (G) Stabilisatoren,
gegebenenfalls (H) Additive und
gegebenenfalls (J) Weichmacher.

Besonders bevorzugt handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend
(A) Organopolysiloxane der Formel (V) mit R^1 gleich Vinylrest,
(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) mit mindestens einem R^4 gleich Methyl- oder Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) ausgewählt aus N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan und N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan und deren Teilhydrolysate,

(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit R^7 gleich einem Alkylrest mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen und mindestens einem R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

gegebenenfalls (E) Füllstoffe,

gegebenenfalls (F) Katalysatoren,

(G) Stabilisatoren,

gegebenenfalls (H) Additive und

(J) Weichmacher,

mit der Maßgabe, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) vorzugsweise im Bereich von 2:1 bis 1:2 liegt.

Insbesondere handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend

(A) Organopolysiloxane ausgewählt aus den Verbindungen

$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$

$(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,

$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$,

$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$ und

$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,

(B) Organosiliciumverbindungen ausgewählt aus den Verbindungen Tetraethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Methyltriethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, Vinyl-methyldimethoxysilan, Vinyl-methyldiethoxysilan, Phenyl-trimethoxysilan, Phenyltriethoxysilan und 1,2-Bis(triethoxysilyl)ethan und deren Teilhydrolysate,

(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen ausgewählt aus N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan

und N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan und deren Teilhydrolysate,
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit R^7 gleich einem Alkylrest mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen und R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
gegebenenfalls (E) Füllstoffe,
(F) Katalysatoren,
(G) Stabilisatoren,
gegebenenfalls (H) Additive und
(J) Weichmacher,
mit der Maßgabe, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) vorzugsweise im Bereich von 2:1 bis 1:2 liegt.

In einer weiteren insbesondere bevorzugten Ausführungsform handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend
(A) Organopolysiloxane ausgewählt aus den Verbindungen $(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$ und
$(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
(B) Organosiliciumverbindungen ausgewählt aus den Verbindungen Tetraethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan und Vinyltriethoxysilan sowie deren Teilhydrolysate,
(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen ausgewählt aus N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan und N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan und deren Teilhydrolysate,
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit R^7 gleich einem Alkylrest mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen und R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
gegebenenfalls (E) Füllstoffe,
(F) Katalysatoren,
(G) Stabilisatoren,

gegebenenfalls (H) Additive und
(J) Weichmacher,
mit der Maßgabe, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) vorzugsweise im Bereich von 2:1 bis 1:2 liegt.

In einer weiteren ganz besonders bevorzugten Ausführungsform handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Massen um solche enthaltend
(A) $(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
(B) Vinyltriethoxysilan und/oder dessen Teilhydrolysate,
(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen ausgewählt aus N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-trimethoxysilan und N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan und deren Teilhydrolysate,
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit R^7 gleich n- oder iso-Octylrest und R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,
gegebenenfalls (E) Füllstoffe,
(F) Katalysatoren,
(G) Stabilisatoren,
gegebenenfalls (H) Additive und
(J) Weichmacher,
mit der Maßgabe, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) vorzugsweise im Bereich von 3:2 bis 2:3 liegt.

Bevorzugt enthalten die erfindungsgemäßen Massen keine über die Komponenten (A) bis (J) hinausgehende weitere Bestandteile.

Bevorzugt enthalten die erfindungsgemäßen Massen organische Lösungsmittel in Mengen von maximal 10 Gewichtsteilen, bezogen auf das Gesamtgewicht der Masse, besonders bevorzugt keine.

Falls die erfindungsgemäßen Massen geringe Mengen an organischen Lösungsmitteln enthalten, handelt es sich bevorzugt um Alkohole, die bei der Hydrolyse- bzw. Kondensationsreaktion entstehen.

Bei den einzelnen Bestandteilen der erfindungsgemäßen Massen kann es sich jeweils um eine Art eines solchen Bestandteils wie auch um ein Gemisch aus mindestens zwei verschiedenen Arten derartiger Bestandteile handeln.

Bei den erfindungsgemäßen Massen handelt es sich um flüssige oder viskose Mischung, bevorzugt um dünnflüssige Massen.

Die erfindungsgemäßen Massen weisen Viskositäten von bevorzugt kleiner 50000 mPas, besonders bevorzugt kleiner 25000 mPas und insbesondere kleiner 15000 mPas auf, jeweils gemessen nach DIN EN ISO 3219 mit einem Platte-/Kegelsystem bei 25°C und einer Scherrate von 25 1/s.

Zur Bereitung der erfindungsgemäßen Massen können alle Bestandteile in beliebiger Reihenfolge miteinander vermischt werden.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Massen durch Mischen der einzelnen Komponenten in beliebiger Reihenfolge.

Dieses Vermischen kann bei Raumtemperatur und dem Druck der umgebenden Atmosphäre, also etwa 900 bis 1100 hPa, erfolgen. Falls erwünscht, kann dieses Vermischen aber auch bei höheren Temperaturen erfolgen, z.B. bei Temperaturen im Bereich von 35 bis 100°C. Weiterhin ist es möglich, zeitweilig oder ständig unter vermindertem Druck zu mischen, wie z.B. bei 30 bis 500 hPa Absolutdruck, um flüchtige Verbindungen oder Luft zu ent-

fernen.

Bevorzugt werden die Komponenten (A), (B), (C), (D) und gegebenenfalls Weichmacher (J), bevorzugt ein trimethylsilyl-terminiertes Organopolysiloxan, vermischt. Dies kann unter dem Druck der Atmosphäre oder auch unter vermindertem Druck geschehen. Anschließend können Füllstoffe (E) eingemischt und unter stärkerer Scherung bei höheren Drehzahlen im Mischer dispergiert werden. Dies geschieht in der Regel unter vermindertem Druck, um flüchtige Verbindungen, Luft und Reaktionsprodukte der Feuchtigkeit der Füllstoffe mit den Komponenten (B) und (C) zu entfernen. Weitere Bestandteile, wie Stabilisatoren (G) oder Additive (H), können vor oder mit den Füllstoffen (E) zugegeben werden. Falls Katalysator (F) eingesetzt wird, wird dieser abschließend homogen eingerührt. Dies geschieht in der Regel unter vermindertem Druck, um die flüssigen bis zähflüssigen Massen blasenfrei zu machen.

Für die Vernetzung der erfindungsgemäßen Massen reicht der übliche Wassergehalt der Luft aus. Die Vernetzung der erfindungsgemäßen Massen erfolgt vorzugsweise bei Raumtemperatur. Sie kann, falls erwünscht, auch bei höheren oder niedrigeren Temperaturen als Raumtemperatur, z.B. bei -20° bis 15°C oder bei 30°C bis 60°C und/oder mittels den normalen Wassergehalt der Luft übersteigenden Konzentrationen von Wasser durchgeführt werden. Auch das direkte Zumischen von Wasser oder wasserhaltigen Substanzen ist möglich.

Vorzugsweise wird die Vernetzung bei einem Druck von 100 bis 1100 hPa, insbesondere beim Druck der umgebenden Atmosphäre, also etwa 900 bis 1100 hPa, durchgeführt.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Form-

körper, hergestellt durch Vernetzung der erfindungsgemäßen Massen.

Bei den erfindungsgemäßen Formkörpern handelt es sich bevorzugt um Beschichtungen.

Die erfindungsgemäßen Massen können für alle Verwendungszwecke eingesetzt werden, für die unter Ausschluss von Wasser lagerfähige, bei Zutritt von Wasser bei Raumtemperatur zu Elastomeren vernetzende Massen eingesetzt werden können.

Die erfindungsgemäßen Massen eignen sich ausgezeichnet beispielsweise als Beschichtungsmittel für Beton, Holz, Stahl- und Aluminium. Die Beschichtungen können mittels Pinsel oder Roller aufgetragen oder auch aufgesprüht werden, z.B. mittels Airless-Spray. Die Abdichtmassen werden dabei bevorzugt in Schichtdicken von 0,5 mm bis 2 mm direkt in einer Schicht oder auch in mehreren Schichten übereinander appliziert. Ferner können sie auch in einem Zweischichtverfahren mit Vlieseinlage verarbeitet werden. Die Massen können dabei horizontal oder auch vertikal angewendet werden. Die elastischen Schutzüberzüge zeigen besondere Beständigkeit gegen die Einwirkung von Sonnenlicht, Regenwasser, Süß- oder Meerwasser. Ferner weisen die Schutzüberzüge auch hohe thermische Stabilität auf.

Die erfindungsgemäßen Massen haben den Vorteil, dass sie leicht herzustellen sind und sich durch eine sehr hohe Lagerstabilität auszeichnen.

Des Weiteren haben die erfindungsgemäßen Massen den Vorteil, dass sie eine sehr gute Handhabbarkeit bei der Anwendung zeigen und bei einer Vielzahl von Applikation ausgezeichnete Verarbeitungseigenschaften zeigen.

Ferner haben die erfindungsgemäßen Massen den Vorteil, dass sie bei der Aushärtung keine höheren Schrumpfraten aufweisen, speziell verglichen mit Lösungsmitteln oder andere Verdünner enthaltenden Formulierungen.

Die erfindungsgemäßen Massen haben den Vorteil, dass sie auch unter unterschiedlichen klimatischen Bedingungen gut aushärten. Damit ist die Vernetzung unabhängiger von der Umgebungstemperatur und der Luftfeuchtigkeit. Gleichzeitig bilden die erfindungsgemäßen Massen ausreichend schnell eine sog. innere Festigkeit aus (Kohäsion), die verhindert, dass die teilvulkanisierten Massen z.B. durch Schrumpf oder durch Bewegungen im Untergrund aufreißen oder Blasen bilden und damit ihre Dichtfunktion verlieren würden.

Sofern nicht anders angegeben, werden die nachstehenden Beispiele bei einem Druck der umgebenden Atmosphäre, also etwa bei 1000 hPa, und bei Raumtemperatur, also bei etwa 23°C, bzw. bei einer Temperatur, die sich beim Zusammengeben der Komponenten bei Raumtemperatur ohne zusätzliche Heizung oder Kühlung einstellt, sowie bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von etwa 50 % durchgeführt. Des Weiteren beziehen sich alle Angaben von Teilen und Prozentsätzen, soweit nichts anderes angegeben ist, auf das Gewicht.

Die Hautbildungszeiten werden an 0,5 cm bis 1 cm dick aufgetragenen Folien bestimmt, in dem man mit einem frisch gespitzten Bleistift der Härte HB in regelmäßigen Abständen die Oberfläche im flachen Winkel berührt. Bleibt dabei nach langsamem Hochziehen kein Material mehr an der Bleistiftspitze hängen und eine feine Haut zieht sich ab, wird die Zeit notiert. Nach einem Tag wird die Qualität der Vulkanisation auch noch anhand der Kleb-

rigkeit der Oberfläche und der Einreißfestigkeit der Vulkanisate (sog. Fingernageltest) überprüft.

Die Viskosität- und Thixotropiebestimmung wird an einem Rotationsviskosimeter nach DIN EN ISO 3219 durchgeführt. Zuerst bestimmt man die Viskosität bei einer hohen und anschließend bei einer niedrigen Scherbeanspruchung. Gemessen wird am Platte-/Kegelsystem bei 25°C, Messelement CP25/2. Vorkonditionierung bei 0,5 1/s für 1 min. Danach Messung bei 25 1/s für 1 min. und anschließend 0,5 1/s für weitere 1 Min. Auswertung über Mittelwertbildung aus zwanzig Messpunkten.

Die mechanischen Werte wurden gemäß der ISO 37 an S2-Prüfkörpern bestimmt.

Die Shore-A-Härte wurde gemäß ISO 868 bestimmt.

Beispiel 1

500 g eines Polydimethylsiloxans mit Dimethoxyvinylsilylendgruppen und einer Viskosität von 8 000 mPa·s, 3,0 g einer Octylphosphonsäuremischung zusammengesetzt aus 25 Gew.-% Trimethoxymethylsilan und 75 Gew.-% Octylphosphonsäure, 20 g Vinyl-triethoxysilan und 15 g N-Aminoethylaminopropyl-trimethoxysilan werden in einem Laborplanetenmischer für eine Dauer von 3 Minuten bei ca. 300 Upm und einem Druck von 200-300 hPa homogenisiert. Anschließend werden 347 g eines gemahlenen, unbeschichteten Marmormehls mit einer mittleren Teilchengröße von 2 µm und 10 g einer hydrophilen, pyrogenen Kieselsäure mit einer spezifischen Oberfläche von 150 m^2/g langsam bei einem Druck von 900-1100 hPa eingemischt und 8 Minuten bei 800 Upm bei einem Druck von 200-300 hPa dispergiert. Die so erhaltene fließfähige Mischung wird mit 100 g Isooctyltriethoxysilan und 2,5 g eines Zinnkatalysators, der hergestellt wurde durch Umsetzung

von 1,4 g Di-n-butylzinnoxid und 1,1 g Tetraethoxysilan, 3 Minuten bei 300 Upm und einem Druck von 200-300 hPa aktiviert und blasenfrei gerührt.

Ein Teil der so hergestellten Masse wurde zur Aufbewahrung in Kartuschen abgefüllt und vor den weiteren Prüfungen 24 Stunden bei 23°C und 50% rel. Luftfeuchtigkeit gelagert sowie ein anderer Teil der hergestellten Masse in innenlackierte Aluminiumtuben abgefüllt und 4 Wochen bei 70°C im Trockenschrank gelagert.

Bei den so erhaltenen Massen werden danach wie oben beschrieben die Hautbildungszeit und Vulkanisation untersucht. Die Oberfläche wird durch einen einfachen Test mit dem Finger oder dem Rücken des Zeigefingers auf Klebrigkeit geprüft. Soweit der Finger ohne Verzögerung sich wieder ablöst wird positiv bewertet. Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 1.

Beispiel 2

Die in Beispiel 1 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass 100g Isooctyltrimethoxysilan anstelle des Isooctyltriethoxysilan eingesetzt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 1.

Beispiel 3

Die in Beispiel 1 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass 100g Hexadecyltrimethoxysilan anstelle des Isooctyltriethoxysilan eingesetzt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 1.

Vergleichsbeispiel V1

Die in Beispiel 1 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass 100g isoparafinischen Kohlenwasserstoffs

(Flammpunkt > 90°C, Viskosität 3,5 cSt/25°C) als Lösungsmittel anstelle des Isooctyltriethoxysilan eingesetzt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 1.

Tabelle 1:

Beispiel	1	2	3	V1
Pasteneigenschaften				
HBZ [min] nach 24 h Lagerung	10	18	15	7
HBZ [min] nach 4 Wochen/70°C Lagerung	13	22	20	10
Oberfläche nach 24 h Härtung	positiv	positiv	positiv	positiv
Vulkanisat nach 24 h Härtung	positiv	leicht brüchig	positiv	positiv
Viskosität / 25°C [mPas]				
Scherrate 25 1/s	8 000	7 500	8 500	8 000
Scherrate 25 1/s	27 000	26 000	27 000	34 000

HBZ = Hautbildungzeit

Beispiel 4

500 g eines Polydimethylsiloxans mit Dimethoxyvinylsilylendgruppen und einer Viskosität von 8 000 mPa·s, 3,0 g einer Octylphosphonsäuremischung zusammengesetzt aus 25 Gew.-% Trimethoxymethylsilan und 75 Gew.-% Octylphosphonsäure, 20 g Vinyltriethoxysilan und 15 g N-Aminoethylaminopropyl-trimethoxysilan werden in einem Laborplanetenmischer für eine Dauer von 3 Minuten bei ca. 300 Upm und einem Druck von 200-300hPa homogenisiert. Anschließend werden 347 g eines gemahlenen, unbeschichteten Marmormehls mit einer mittleren Teilchengröße von 2µm und 10 g einer hydrophilen, pyrogenen Kieselsäure mit einer spezifischen Oberfläche von 150 m^2/g langsam bei einem Druck von 900-1100hPa eingemischt und 8 Minuten bei 800 Upm bei einem

Druck von 200-300 hPa dispergiert. Die so erhaltene fließfähige Mischung wird mit 50g Isooctyltriethoxysilan und 5,0 g eines Zinnkatalysators, der hergestellt wurde durch Umsetzung von 0,9 g Di-n-octylzinnoxid und 2,1 g Tetraethoxysilan und 2,0 g Aminopropyltriethoxysilan, 3 Minuten bei 300 Upm und einem Druck von 200-300 hPa aktiviert und blasenfrei gerührt.
Die so hergestellte Masse wurde wie in Beispiel 1 beschrieben in Kartuschen abgefüllt und gelagert.
Bei den so erhaltenen Massen werden danach wie oben beschrieben die Hautbildungszeit, Vulkanisation und Oberflächenklebrigkeit untersucht. Die Massen werden weiterhin 14 Tage bei 23°C und 50% rel. Luftfeuchtigkeit vernetzen gelassen und die Mechanik sowie Shore-Härten nach ISO 37 bzw. ISO 868 bestimmt. Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Beispiel 5

Die in Beispiel 4 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass anstelle von 50g Isooctyltriethoxysilan 100 g Isooctyltriethoxysilan eingemischt werden. Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Beispiel 6

Die in Beispiel 4 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass anstelle von 50g Isooctyltriethoxysilan 200 g Isooctyltriethoxysilan eingemischt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Vergleichsbeispiel V2

Die in Beispiel 4 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass kein Isooctyltriethoxysilan eingemischt wird.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Vergleichsbeispiel V3

Die in Beispiel 4 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass 100g Tetraethoxysilan statt des Isooctyltriethoxysilans mit dem Katalysator eingemischt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Vergleichsbeispiel V4

Die in Beispiel 4 beschriebene Arbeitsweise wird wiederholt mit der Abänderung, dass 100g oligomerisiertes Tetraethoxysilan mit einem SiO_2-Gehalt von ca. 40 Gew-% statt des Isooctyltriethoxysilans mit dem Katalysator eingemischt werden.
Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 2.

Tabelle 2:

Beispiele	4	5	6	V2	V3	V4
Pasteneigenschaften						
HBZ [min] nach 24 h Lagerung	8	8	8	8	15	15
Oberfläche nach 24 h Härtung	pos.	pos.	pos.	pos.	neg. klebrig	neg. klebrig
Vulkanisat nach 24 h Härtung	pos.	pos.	pos.	pos.	neg. brüchig	neg. nicht gehärtet
Viskosität / 25°C [mPas]						
Scherrate 25 1/s	14 500	8 500	3 000	28 000	7 000	12 000
Scherrate 25 1/s	48 000	30 000	10 000	100 000	27 000	50 000
Mechanische Eigenschaften Folie nach ISO 37-S2						
Shore A	42	41	27	48	47	n.m.
RF - MPa	1,9	1,5	1,5	2,0	1,5	n.m.
RD - %	140	150	160	120	60	n.m.

HBZ = Hautbildungszeit
RF = Reißfestigkeit
RD = Reißdehnung
n.m. = nicht messbar

Patentansprüche

1. Vernetzbare Massen enthaltend
(A) Organyloxygruppen aufweisende Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I)

$$R_aR^1_b(OR^2)_cSiO_{(4-a-b-c)/2} \quad (I),$$

wobei
R gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, gegebenenfalls substituierte, von aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen freie Kohlenwasserstoffreste darstellt,
R^1 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen bedeutet,
R^2 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
a 0, 1, 2 oder 3 ist,
b 0 oder 1 ist und
c 0, 1, 2 oder 3 ist,
mit der Maßgabe, dass in Formel (I) die Summe $a+b+c\leq 3$ ist und in mindestens einer Einheit c verschieden 0 ist,
(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II)

$$(R^4O)_dSiR^3_{(4-d)} \quad (II),$$

wobei
R^3 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, aliphatische, gegebenenfalls durch Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolreste oder Triorganyloxysilylgruppen

substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen oder aromatische Reste bedeutet,
R^4 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
d 2, 3 oder 4 ist,
und/oder deren Teilhydrolysate,
(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III)

$$(R^6O)_eSiR^5_{(4-e)} \qquad (III),$$

wobei
R^5 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene Reste mit basischem Stickstoff bedeutet,
R^6 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
e 2 oder 3 ist,
und/oder deren Teilhydrolysate
und
(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV)

$$(R^8O)_hSiR^7_{(4-h)} \qquad (IV),$$

wobei
R^7 gleich oder verschieden sein kann und einwertige, SiC-gebundene, aliphatische, gegebenenfalls mit Ethergruppen, Estergruppen, (Poly)glykolresten oder Triorganyloxysilylgruppen substituierte Kohlenwasserstoffreste mit mindestens 8 Kohlenstoffatomen bedeutet,

R^8 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder einwertige, gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste, die durch Sauerstoffatome unterbrochen sein können, bedeutet,
h 2 oder 3 ist,
und/oder deren Teilhydrolysate.

2. Vernetzbare Massen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Organopolysiloxanen (A) um im Wesentlichen lineare, organyloxyterminierte Organopolysiloxane der Formel (V)

$$(OR^2)_{3-f}R^1_fSi-(SiR_2-O)_g-SiR^1_f(OR^2)_{3-f} \qquad (V)$$

handelt, wobei
R, R^1 und R^2 jeweils gleich oder verschieden sein können und eine der oben angegebenen Bedeutungen haben,
g gleich 30 bis 5000 ist und
f gleich 0, 1 oder 2 ist,
mit der Maßgabe, dass in Formel (V) in mindestens einer Einheit f verschieden 0 ist.

3. Vernetzbare Massen gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Organopolysiloxanen (A) um
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiMe(OMe)_2$,
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
$(MeO)_2ViSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$,
$(MeO)_2MeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$,
$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiViMe(OMe)$ oder
$(MeO)ViMeSiO[SiMe_2O]_{200-2000}SiVi(OMe)_2$ handelt.

4. Vernetzbare Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass Organosiliciumverbindung

(D) mindestens einen Rest R^8 mit mindestens zwei Kohlenstoffatomen aufweist.

5. Vernetzbare Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Organosiliciumverbindungen (D) um Hexadecyl-trimethoxysilan, Hexadecyl-triethoxysilan, n-Octyltrimethoxysilan, n-Ooctyltriethoxysilan, Isooctyltrimethoxysilan oder Isooctyltriethoxysilan und/oder deren Teilhydrolysate handelt.

6. Vernetzbare Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) im Bereich von 2:1 bis 1:2 liegt.

7. Vernetzbare Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um solche handelt enthaltend

(A) Organopolysiloxane aus Einheiten der Formel (I),

(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) mit mindestens einem R^4 gleich Methyl- oder Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) und/oder deren Teilhydrolysate,

(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit mindestens einem R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

gegebenenfalls (E) Füllstoffe,

gegebenenfalls (F) Katalysatoren,

gegebenenfalls (G) Stabilisatoren,

gegebenenfalls (H) Additive und

gegebenenfalls (J) Weichmacher.

8. Vernetzbare Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um solche handelt enthaltend

(A) Organopolysiloxane der Formel (V) mit R^1 gleich Vinylrest,

(B) Organosiliciumverbindungen der Formel (II) mit mindestens einem R^4 gleich Methyl- oder Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

(C) basischen Stickstoff aufweisende Organosiliciumverbindungen der Formel (III) ausgewählt aus N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan und N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyl-triethoxysilan und deren Teilhydrolysate,

(D) Organosiliciumverbindungen der Formel (IV) mit R^7 gleich einem Alkylrest mit 8 bis 16 Kohlenstoffatomen und mindestens einem R^8 gleich Ethylrest und/oder deren Teilhydrolysate,

gegebenenfalls (E) Füllstoffe,

gegebenenfalls (F) Katalysatoren,

(G) Stabilisatoren,

gegebenenfalls (H) Additive und

(J) Weichmacher,

mit der Maßgabe, dass das Gewichtsverhältnis von Komponente (B) zu Komponente (C) vorzugsweise im Bereich von 2:1 bis 1:2 liegt.

9. Verfahren zur Herstellung der vernetzbaren Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass alle Bestandteile in beliebiger Reihenfolge miteinander vermischt werden.

10. Formkörper, hergestellt durch Vernetzung der Massen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8.

11. Formkörper gemäß Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um Beschichtungen handelt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2018/064471

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 83/04(2006.01)i

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; 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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 1436351 B1 (WACKER CHEMIE GMBH [DE]) 22 June 2005 (2005-06-22) paragraph [0096] - paragraph [0098]; example 1	1-11

☐ 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
10 December 2018	**20 December 2018**

Name and mailing address of the ISA/EP	Authorized officer
European Patent Office **p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk** **Netherlands** Telephone No. **(+31-70)340-2040** Facsimile No. **(+31-70)340-3016**	**Stinchcombe, John** Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/EP2018/064471

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
EP 1436351 B1	22 June 2005	CN 1571819 A	26 January 2005
		DE 10151477 A1	15 May 2003
		EP 1436351 A1	14 July 2004
		JP 4146344 B2	10 September 2008
		JP 2005506432 A	03 March 2005
		US 2004266967 A1	30 December 2004
		WO 03035761 A1	01 May 2003

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2018/064471

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C08L83/04
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C08G C08L

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 1 436 351 B1 (WACKER CHEMIE GMBH [DE]) 22. Juni 2005 (2005-06-22) Absatz [0096] - Absatz [0098]; Beispiel 1 -----	1-11

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
10. Dezember 2018	20/12/2018

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Stinchcombe, John

1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2018/064471

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 1436351 B1	22-06-2005	CN 1571819 A	26-01-2005
		DE 10151477 A1	15-05-2003
		EP 1436351 A1	14-07-2004
		JP 4146344 B2	10-09-2008
		JP 2005506432 A	03-03-2005
		US 2004266967 A1	30-12-2004
		WO 03035761 A1	01-05-2003