

(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
12. September 2003 (12.09.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/074591 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **C08G 77/50**,
C09D 183/04

84533 Haiming (DE). **STALLBAUER, Reinhard**
[DE/DE]; Weinbergsiedlung 24, 84367 Gumpersdorf
(DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP03/01761

(22) Internationales Anmeldedatum:
20. Februar 2003 (20.02.2003)

(74) **Anwälte: DEFFNER-LEHNER, Maria** usw.; Wacker-
Chemie GmbH, Zentralbereich PML, Hans-Seidel-Platz 4,
81737 München (DE).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(81) **Bestimmungsstaaten (national):** CN, JP, PL, US.

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) **Angaben zur Priorität:**
102 10 014.4 7. März 2002 (07.03.2002) DE

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** europäisches Patent (AT,
BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR,
HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR).

(71) **Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): WACKER-CHEMIE GMBH** [DE/DE]; Hans-Sei-
del-Platz 4, 81737 München (DE).

Veröffentlicht:
— mit internationalem Recherchenbericht

(72) **Erfinder; und**

(75) **Erfinder/Anmelder (nur für US): LAUTEN-
SCHLAGER, Hans** [DE/DE]; Fahnbacherstrasse 11,

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.*

(54) **Title:** SILOXANE POLYMERS CONTAINING SI-BOUND HYDROGEN ATOMS AS ANTIMISTING ADDITIVES FOR
SILICONE COATING COMPOSITIONS

(54) **Bezeichnung:** SI-GEBUNDENE WASSERSTOFFATOME AUFWEISENDE SILOXAN COPOLYMERE ALS ANTIMIS-
TING ADDITIVE FÜR SILICONBESCHICHTUNGSZUSAMMENSETZUNGEN

(57) **Abstract:** Disclosed is the use of antimisting additives in cross-linkable silicone coating compositions for reducing the formation of aerosol, which are characterized by the fact that siloxane copolymers containing alkenyl groups are used as antimisting additives. Said siloxane copolymers are produced by reacting, in a first step, a compound (1) of general formula $R^2(CR^3=CH_2)_x$, which comprises at least three aliphatic double bonds and in which R^2 represents a trivalent or tetravalent hydrocarbon radical preferably containing 1 to 25 carbon atoms per radical, which can contain one or several separate heteroatoms selected among the group consisting of oxygen, silicon, and titanium, R^3 represents a hydrogen atom or an alkyl radical with 1 to 6 carbon atoms per radical, and x equals 3 or 4, with an organosiloxane (2) containing terminal Si-bound hydrogen atoms in the presence of a catalyst (3) which promotes the addition of Si-bound hydrogen to an aliphatic double bond, the ratio between the Si-bound hydrogen in the organosiloxane (2) and the aliphatic double bond in the organic compound (1) ranging between 1.3 and 10, and, in an optional second step, by equilibrating the siloxane copolymers containing Si-bound hydrogen atoms, which have been obtained in step one, with organopolysiloxane (4).

(57) **Zusammenfassung:** Beschrieben wird die Verwendung von Antimisting Additiven in vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen zur Reduktion der Aerosolbildung, dadurch gekennzeichnet, dass als Antimisting Additive Alkenylgruppen aufweisende Siloxan copolymere herstellbar, indem in einem ersten Schritt eine mindestens drei aliphatische Doppelbindungen aufweisende Verbindung (1) der allgemeinen Formel $R^2(CR^3=CH_2)_x$, wobei R^2 einen dreiwertigen oder vierwertigen Kohlenwasserstoffrest mit vorzugsweise 1 bis 25 Kohlenstoffatomen je Rest, der ein oder mehrere von einander separate Heteroatome ausgewählt aus der Gruppe von Sauerstoff, Silizium und Titan enthalten kann, R^3 ein Wasserstoffatom oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Rest und x 3 oder 4, bedeutet, mit einem Organosiloxan (2) mit endständigen Si-gebundenen Wasserstoffatomen in Gegenwart von die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Doppelbindung förderndem Katalysator (3) umgesetzt wird, wobei das eingesetzte Verhältnis von S-gebundenem Wasserstoff im Organosiloxan (2) zu aliphatischer Doppelbindung in organischer Verbindung (1) 1,3 bis 10 beträgt, und gegebenenfalls in einem zweiten Schritt die so erhaltenen, Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden Siloxan copolymere mit Organopolysiloxan (4) equilibriert werden, eingesetzt werden.



WO 03/074591 A1

Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisende Siloxanopolymere als Antimisting Additive für Siliconbeschichtungszusammensetzungen

Die Erfindung betrifft die Verwendung von Antimisting Additiven
5 zur Reduktion der Aerosolbildung in vernetzbaren Silicon-
beschichtungszusammensetzungen.

Ein Trend in der Siliconbeschichtungsindustrie ist die Erhöhung
der Maschinengeschwindigkeit zur Steigerung der Produktivität.

10 Werden Siliconbeschichtungen auf das Substrat bei höheren
Geschwindigkeiten, beispielsweise von über 300 m/min, aufge-
bracht, können sich feine Sprühnebel des Siliconbeschichtungs-
systems bilden. Dieses Aerosol entsteht am Siliconauftragswerk.
Diese Sprühnebelbildung erweist sich als ein ernstes Problem
15 bei der weiteren Steigerung der Beschichtungsgeschwindigkeit.

Diese Sprühnebelbildung kann durch den Zusatz von sogenannten
Antimisting Additiven zum Siliconbeschichtungssystem reduziert
werden.

20

In EP-A 716 115 (Dow Corning Corp.) werden Antimisting
Additive, die durch Reaktion einer Organosiliciumverbindung,
einer Oxyalkylengruppen enthaltender Verbindung und eines
Katalysators erhalten werden, beschrieben. Durch die Zugabe
25 dieser Oxyalkylengruppen aufweisenden Umsetzungsprodukte zu
vernetzbaaren Siliconbeschichtungssystemen wird die Bildung von
Aerosol in schnellen Beschichtungsprozessen reduziert.

WO 01/98418 (Dow Corning Corp.) offenbart eine flüssige Silicon
30 Antimisting Zusammensetzung, die durch Umsetzung

(a) eines Organohydrogenpolysiloxans mit mindestens 3 Si-H-
Gruppen (SiH) mit

(b) einer Verbindung mit mindestens 2 Alkenylgruppen (C=C) in

(c) Gegenwart eines Platinkatalysators und gegebenenfalls

35 (d) eines Inhibitors

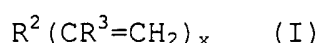
in einem Verhältnis von $\text{SiH}/\text{C}=\text{C} \geq 4,6$ erhalten wird.

Ein extrem großer Überschuss an Organohydrogenpolysiloxan (SiH) ist notwendig, damit es zu keiner Vergelung kommt. Dieser Überschuss beeinflusst die Release-Eigenschaften des Basis-
5 Systems, der vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzung. Weiterhin muss zur Verhinderung einer Vergelung ein Inhibitor zugesetzt werden.

In US-A 6,265,497 (Wacker-Chemie GmbH) sind Si-gebundene
10 Wasserstoffatome aufweisende Siloxanopolymere als Zwischenprodukt bei der Herstellung von Alkenylgruppen aufweisenden Siloxanopolymere beschrieben, die verzweigt sind und worin die Organopolysiloxanblöcke über Kohlenwasserstoffbrücken verbunden sind.

15 Es bestand die Aufgabe Antimisting Additive für Siliconbeschichtungszusammensetzungen bereitzustellen, die die Aerosolbildung in schnellen Beschichtungsprozessen reduzieren, die mit den Siliconbeschichtungszusammensetzungen gut mischbar
20 sind und die die Siliconbeschichtungszusammensetzungen nicht beeinträchtigen. Die Aufgabe wird durch die Erfindung gelöst.

Gegenstand der Erfindung ist die Verwendung von Antimisting Additiven in vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen
25 zur Reduktion der Aerosolbildung, dadurch gekennzeichnet, dass als Antimisting Additive Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisende Siloxanopolymere herstellbar, indem eine mindestens drei aliphatische Doppelbindungen aufweisende Verbindung (1) der allgemeinen Formel



30 wobei R^2 einen dreiwertigen oder vierwertigen

Kohlenwasserstoffrest mit vorzugsweise 1 bis 25

35 Kohlenstoffatomen je Rest, der ein oder mehrere von einander

separate Heteroatome ausgewählt aus der Gruppe von Sauerstoff, Silizium und Titan enthalten kann,

R^3 ein Wasserstoffatom oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Rest und

5 x 3 oder 4, bedeutet,

mit einem Organosiloxan (2) mit endständigen Si-gebundenen Wasserstoffatomen

in Gegenwart von die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Doppelbindung förderndem Katalysator (3)

10 umgesetzt wird,

wobei das eingesetzte Verhältnis von Si-gebundenem Wasserstoff im Organosiloxan (2) zu aliphatischer Doppelbindung in organischer Verbindung (1) 1,3 bis 10 beträgt, und gegebenenfalls in einem zweiten Schritt

15 die so erhaltenen Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden Siloxancopolymere mit Organopolysiloxan (4),

ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus linearen, endständige Triorganosiloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen,

linearen, endständige Hydroxylgruppen aufweisenden Organopoly-

20 siloxanen, verzweigten, gegebenenfalls Hydroxylgruppen

aufweisenden Organopolysiloxanen, cyclischen Organopoly-

siloxanen und Mischpolymerisaten aus Diorganosiloxan- und

Monoorganosiloxaneinheiten, equilibriert werden,

eingesetzt werden.

25

Die Si-gebundenen Wasserstoffatome aufweisenden

Siloxancopolymere und deren Herstellung sind in der eingangs

zitierten US-A 6,265,497 beschrieben und die US-A 6,265,497

(incorporated by reference) gehört daher zum Inhalt der

30 Offenbarung der Anmeldung.

Die erfindungsgemäßen Antimisting Additive, die Alkenylgruppen aufweisenden Siloxancopolymere, haben den Vorteil, dass sie

nicht nur die Aerosolbildung vernetzbarer Siliconbeschichtungs-

35 zusammensetzungen in schnellen Beschichtungssystemen reduzieren

sondern dass sie insbesondere in beliebigen Mengenverhältnissen homogen mit den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen mischbar sind im Gegensatz zu den Polyglykolgruppen aufweisenden Antimisting Additiven gemäß der eingangs zitierten
5 EP-A 716 115.

Weiterhin weisen die erfindungsgemäßen Antimisting Additive keine inhibierende Wirkung auf und sie sind lagerstabil. Die erfindungsgemäßen Antimisting Additive haben den Vorteil, dass
10 sie vorab mit der Vernetzerkomponente (B) der vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzung abgemischt werden können. Sie sind damit einfach handhabbar und beeinträchtigen die Release-Eigenschaften des Basis-Systems, der vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzung, nicht.

15 Die erfindungsgemäßen, Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden Siloxanopolymere besitzen vorzugsweise eine Viskosität von 2 bis 500 000 Pa.s bei 25°C, bevorzugt 10 bis 100 000 Pa.s bei 25°C, besonders bevorzugt 20 bis 10 000 Pa.s
20 bei 25°C.

Eine bevorzugte Ausführung bei sehr viskosen Siloxanopolymeren ist die Herstellung der erfindungsgemäßen, Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden Siloxanopolymere in inerten
25 organischen Lösungsmitteln, bevorzugt Kohlenwasserstoffen mit einem Siedepunkt vorzugsweise unter 150°C, wie Toluol, Xylol, n-Hexan, n-Octan, i-Octan und Benzinfraktionen, in einer Konzentration von vorzugsweise 20-60 Gew.-% Siloxangehalt, wobei höhere oder niedrigere Konzentrationen im Bereich
30 vorliegender Erfindung mit eingeschlossen sind.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren kann eine Art von Verbindung (1) oder verschiedene Arten von Verbindung (1) eingesetzt werden.

Als Verbindung (1) wird bevorzugt solche eingesetzt, bei der R^2 ein dreiwertiger Kohlenwasserstoffrest mit vorzugsweise 1 bis 25 Kohlenstoffatomen je Rest und x einen Wert von 3 bedeutet.

5 Das im erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzte Organosiloxan (2) enthält vorzugsweise zwei Si-gebundene Wasserstoffatome je Molekül.

Es kann eine Art von Organosiloxanen (2) oder verschiedene
10 Arten von Organosiloxan (2) eingesetzt werden.

Als Organosiloxan (2) wird vorzugsweise solches der allgemeinen Formel

15
$$HR_2SiO(SiR_2O)_nSiR_2H \quad (II),$$

wobei R vorzugsweise gleiche oder verschiedene, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Rest und

20 n 0 oder eine ganze Zahl, besonders bevorzugt eine ganze Zahl von 50 bis 2000 bedeutet, wobei alle ganzen Zahlen zwischen 0 und 2000 als explizit genannt zu gelten haben, eingesetzt.

25 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
30 der n-Nonylrest, Decylreste, wie der n-Decylrest, Dodecylreste, wie der n-Dodecylrest, und Octadecylreste, wie der n-Octadecylrest; Cycloalkylreste, wie Cyclopentyl-, Cyclohexyl-, Cycloheptyl- und Methylcyclohexylreste; Arylreste, wie der
35 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.

5 Beispiele für substituierte Reste R sind Halogenalkylreste, wie der 3,3,3-Trifluor-n-propylrest, der 2,2,2,2',2',2'-Hexafluor-isopropylrest, der Heptafluorisopropylrest und Halogenarylreste, wie der o-, m- und p-Chlorphenylrest.

10 Beispiele für Alkylreste R³ sind 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. Bevorzugt ist R³ ein Wasserstoffatom.

15 Beispiele für Verbindung (1), mit denen die erfindungsgemäßen Alkenylgruppen aufweisenden Siloxanopolymere herstellbar sind, sind

20 1,2,4-Trivinylcyclohexan,
1,3,5-Trivinylcyclohexan,
3,5-Dimethyl-4-vinyl-1,6-heptadien,
1,2,3,4-Tetravinylcyclobutan,
Methyltrivinylsilan,

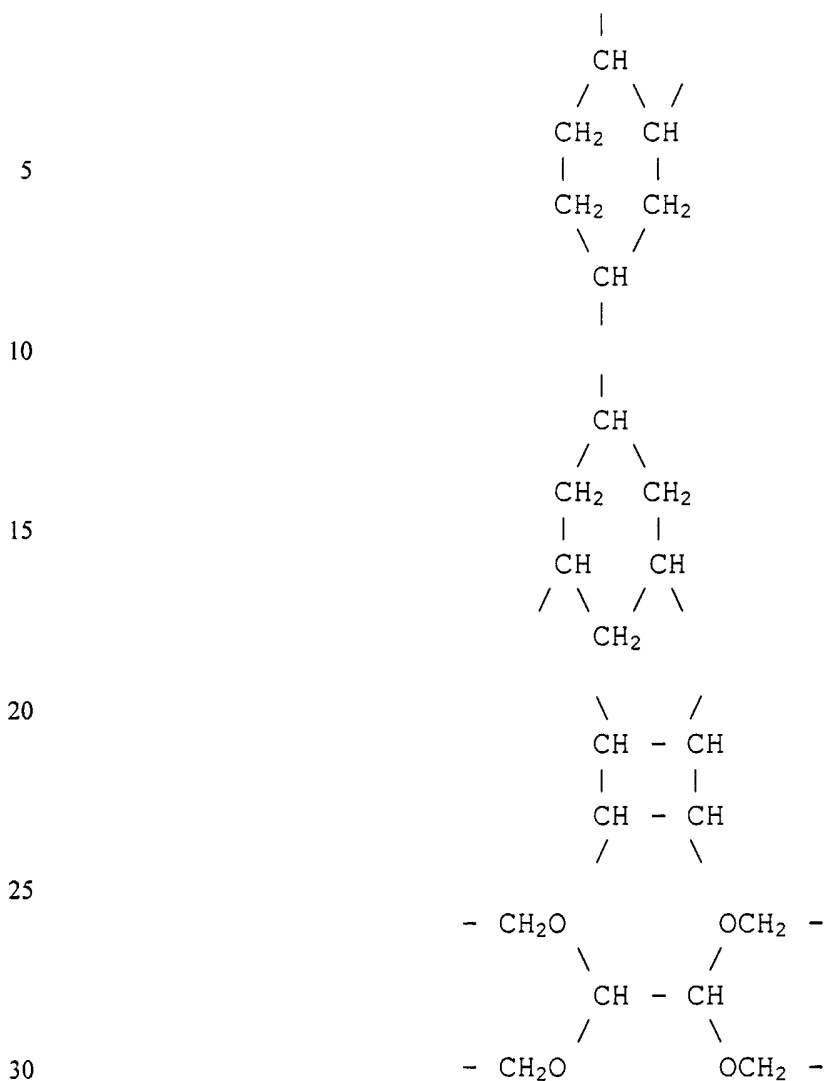
25 Tetravinylsilan,
1,1,2,2-Tetraallyloxyethan,

wobei 1,2,4-Trivinylcyclohexan bevorzugt ist.

30 Beispiele für den Rest R² sind daher vorzugsweise solche der Formel



7



wobei der Rest der Formel



bevorzugt ist.

45 Organosiloxan (2) wird beim erfindungsgemäßen Verfahren in solchen Mengen eingesetzt, dass das Verhältnis von Si-gebundenem Wasserstoff in Organosiloxan (2) zu aliphatischer

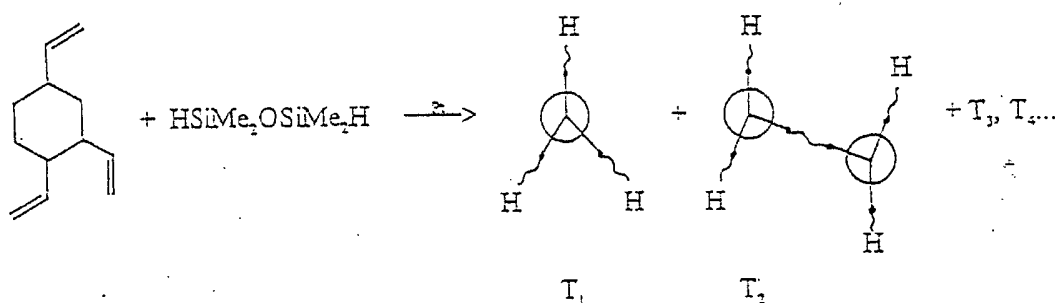
Doppelbindung in Verbindung (1) 1,3 bis 10, vorzugsweise 1,3 bis 5,0, bevorzugt 1,5 bis 4,0, besonders bevorzugt 1,6 bis 3,0 beträgt.

- 5 Da Organosiloxan (2) im Überschuss eingesetzt wird, reagieren daher in dem ersten Verfahrensschritt vorzugsweise alle aliphatische Doppelbindungen in der Verbindung (1) ab, und es werden Siloxancopolymere erhalten, die Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisen.

10

Der erste Verfahrensschritt, die Umsetzung von Verbindung (1), wie 1,2,4 Trivinylcyclohexan, mit Organosiloxan (2), wie 1,3-Dihydrogen-1,1,3,3-tetramethyldisiloxan, im Überschuss in Gegenwart von Katalysator (3) kann durch folgendes

- 15 Reaktionsschema (1) dargestellt werden:



Die erhaltene Siloxancopolymermischung enthält dabei einen Anteil von vorzugsweise über 50% von individuellen Verbindungen T₃ und T₄ und höher verzweigten Polymeren.

20

Je nach dem stöchiometrischen Verhältnis H-Si/C=C enthält die Siloxancopolymermischung wechselnde Mengen an Organosiloxan (2), welches bei niedrigen Molekulargewichten im Vakuum entfernt werden kann, ansonsten als Komponente mit aktivem Wasserstoff in der Produktmischung verbleibt.

25

Als die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Doppelbindung fördernde Katalysatoren können auch bei dem erfindungsgemäßen Verfahren die gleichen Katalysatoren eingesetzt werden, die auch bisher zur Förderung der Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Doppelbindung eingesetzt werden konnten. Bei den Katalysatoren handelt es sich vorzugsweise um ein Metall aus der Gruppe der Platinmetalle oder um eine Verbindung oder einen Komplex aus der Gruppe der Platinmetalle. Beispiele für solche Katalysatoren sind metallisches und feinverteiltetes Platin, das sich auf Trägern, wie Siliciumdioxid, Aluminiumoxyd oder Aktivkohle befinden kann, Verbindungen oder Komplexe von Platin, wie Platinhalogenide, z.B. PtCl_4 , $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Na}_2\text{PtCl}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, Platin-Olefin-Komplexe, Platin-Alkohol-Komplexe, Platin-Alkoholat-Komplexe, Platin-Ether-Komplexe, Platin-Aldehyd-Komplexe, Platin-Keton-Komplexe, einschließlich Umsetzungsprodukten aus $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und Cyclohexanon, Platin-Vinylsiloxankomplexe, wie Platin-1,3-Divinyl-1,1,3,3-tetra-methyl-disiloxankomplexe mit oder ohne Gehalt an nachweisbarem anorganisch gebundenem Halogen, Bis-(gamma-picolin)-platindichlorid, Trimethylen-dipyridinplatindichlorid, Dicyclopentadienplatindichlorid, Dimethylsulfoxydethylenplatin-(II)-di-chlorid, Cyclooctadien-Platindichlorid, Norbornadien-Platindichlorid, Gamma-picolin-Platindichlorid, Cyclopentadien-Platindichlorid, sowie Umsetzungsprodukte von Platintetrachlorid mit Olefin und primärem Amin oder sekundärem Amin oder primärem und sekundärem Amin, wie das Umsetzungsprodukt aus in 1-Octen gelöstem Platintetrachlorid mit sec.-Butylamin oder Ammonium-Platinkomplexe.

Der Katalysator (3) wird im ersten Verfahrensschritt vorzugsweise in Mengen von 0,5 bis 100 Gew.-ppm (Gewichtsteilen je Million Gewichtsteilen), bevorzugt in Mengen von 2 bis 10 Gew.-ppm, jeweils berechnet als elementares Platin und bezogen auf das Gesamtgewicht von Verbindung (1) und Organosiloxan (2) verwendet.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird vorzugsweise beim Druck der umgebenden Atmosphäre, also etwa bei 1020 hPa (abs.), durchgeführt, es kann aber auch bei höheren oder niedrigeren Drücken durchgeführt werden. Ferner wird das erfindungsgemäße Verfahren vorzugsweise bei einer Temperatur von 20°C bis 150°C, bevorzugt 20°C bis 120°C, besonders bevorzugt 20°C bis 100°C durchgeführt.

Da die mindestens drei aliphatische Doppelbindungen aufweisende Verbindung (1), z. B. 1,2,4-Trivinylcyclohexan, bei höheren Temperaturen zur Polymerisation neigt, können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren vorzugsweise Radikalinhibitoren, wie 4-Methoxyphenol, 2,6-Bis(tert.butyl)-4-methylphenol, Phenothiazin, Hydrochinon oder Brenzcatechin mitverwendet werden. Die Radikalinhibitoren werden dabei vorzugsweise in Mengen von 10 bis 500 Gew.-ppm, bezogen auf das Gesamtgewicht an Verbindung (1) und Organosiloxan (2), eingesetzt.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren können vorzugsweise inerte, organische Lösungsmittel mitverwendet werden. Die gegebenenfalls mitverwendeten inerten organischen Lösungsmittel können nach der Umsetzung destillativ entfernt werden oder im Reaktionsgemisch verbleiben.

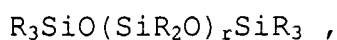
Alternativ zu organischen Lösungsmitteln können inerte Siliconöle bei dem erfindungsgemäßen Verfahren mitverwendet werden oder das organische Lösungsmittel nach der Herstellung der verzweigten erfindungsgemäßen Siloxancopolymere gegen diese ausgetauscht werden.

Zur besseren Handhabung können organische Lösungsmittel nach der Herstellung der verzweigten erfindungsgemäßen Siloxancopolymere auch gegen reaktive Siliconöle ausgetauscht werden, indem man diese der Reaktionsmischung zusetzt und danach das Lösungsmittel destillativ entfernt. Bevorzugt sind

Siliconöle mit einer Viskosität von bis zu 100 mm²/s bei 25°C und Si-gebundenem Wasserstoff als Reaktivbestandteil.

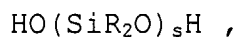
Die erhaltenen Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden
5 Siloxanopolymere können in einem weiteren Verfahrensschritt mit Organopolysiloxanen (4) equilibriert werden.

Als Organopolysiloxane (4) werden vorzugsweise solche ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus vorzugsweise linearen,
10 endständige Triorganosiloxygruppen aufweisenden Organopolysiloxanen der Formel

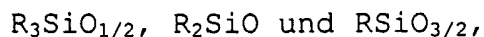


15 wobei R die oben dafür angegebene Bedeutung hat und r 0 oder eine ganze Zahl im Wert von vorzugsweise 1 bis 1500, bevorzugt 10 bis 300, ist, linearen, endständige Hydroxylgruppen aufweisenden Organopolysiloxanen der Formel

20

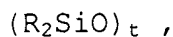


wobei R die oben dafür angegebene Bedeutung hat und s eine ganze Zahl im Wert von vorzugsweise 1 bis 1500,
25 bevorzugt 10 bis 300, ist, verzweigten, gegebenenfalls Hydroxylgruppen aufweisenden Organopolysiloxanen aus Einheiten der Formel



30

wobei R die oben dafür angegebene Bedeutung hat, cyclischen Organopolysiloxanen der Formel



35

wobei R die oben dafür angegebene Bedeutung hat und
t eine ganze Zahl von 3 bis 12 ist,
und Mischpolymerisaten aus Einheiten der Formel

5 R_2SiO und $RSiO_{3/2}$,

wobei R die oben dafür angegebene Bedeutung hat,
eingesetzt.

10 Bevorzugte Organopolysiloxane (4) sind vorzugsweise die der
Formeln $R_3SiO(SiR_2O)_rSiR_3$, $HO(SiR_2O)_sH$ und $(R_2SiO)_t$, wobei
diejenigen der Formel $R_3SiO(SiR_2O)_rSiR_3$ besonders bevorzugt
sind.

15 Das Mengenverhältnis der bei der gegebenenfalls durchgeführten
Equilibrierung eingesetzten Organopolysiloxane (4)
und Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden
Siloxancopolymere wird lediglich durch den gewünschten Anteil
der Si-gebundenen Wasserstoffatome in den bei der
20 gegebenenfalls durchgeführten Equilibrierung erzeugten
Siloxancopolymeren und durch die gewünschte mittlere
Kettenlänge bestimmt.

Bei dem gegebenenfalls durchgeführten Equilibrieren werden
25 vorzugsweise basische oder saure Katalysatoren, welche die
Equilibrierung fördern, eingesetzt. Beispiele für solche
Katalysatoren sind vorzugsweise Alkalihydroxide, wie
Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, und Cäsiumhydroxid,
Trimethylbenzylammoniumhydroxid und
30 Tetramethylammoniumhydroxid. Bevorzugt sind Alkalihydroxide.
Alkalihydroxide werden vorzugsweise in Mengen von 50 bis 10 000
Gew.-ppm (= Teile je Million), insbesondere 500 bis 2 000 Gew.-
ppm, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der eingesetzten Si-
gebundenen Wasserstoffatome aufweisenden Siloxancopolymere und
35 eingesetzten Organopolysiloxane (4), verwendet.

Beispiele für saure Katalysatoren sind vorzugsweise Schwefelsäure, Phosphorsäure, Trifluormethansäure, Phosphornitridchloride und unter den Reaktionsbedingungen
5 feste, saure Katalysatoren, wie säureaktivierte Bleicherde, saure Zeolithe, sulfonierte Kohle und sulfoniertes Styrol-Divinylbenzol-Mischpolymerisat. Bevorzugt sind Phosphornitridchloride. Phosphornitridchloride werden vorzugsweise in Mengen von 5 bis 1000 Gew.-ppm (=Teile je
10 Million), insbesondere 50 bis 200 Gew.-ppm, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der eingesetzten Organosiliciumverbindungen, verwendet.

Die gegebenenfalls durchgeführte Equilibrierung wird
15 vorzugsweise bei 100°C bis 150°C und beim Druck der umgebenden Atmosphäre, also etwa bei 1020 hPa (abs.) durchgeführt. Falls erwünscht, können aber auch höhere oder niedrigere Drücke angewendet werden. Das Equilibrieren wird vorzugsweise in 5 bis 20 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der jeweils
20 eingesetzten Si-gebundenen Wasserstoffatome aufweisenden Siloxancopolymere und eingesetzten Organopolysiloxane (4), in mit Wasser nichtmischbarem Lösungsmittel, wie Toluol, durchgeführt. Vor dem Aufarbeiten des bei dem Equilibrieren erhaltenen Gemisches kann der Katalysator unwirksam gemacht
25 werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann absatzweise, halbkontinuierlich oder vollkontinuierlich durchgeführt werden.

30 Als Antimisting Additive werden bevorzugt solche Alkenylgruppen aufweisende Siloxancopolymere eingesetzt, die ohne einen weiteren Equilibrierungsschritt hergestellt werden und besonders hohe Verzweigung aufweisen. Bevorzugte Additive werden erhalten, wenn in den angegebenen besonders bevorzugten
35 stöchiometrischen Bereichen gearbeitet wird.

Die erfindungsgemäßen Antimisting Additive werden zur Reduktion der Aerolsolbildung den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen zugegeben.

5

Die erfindungsgemäßen Antimisting Additive, die Alkenylgruppen aufweisenden Siloxanopolymere, werden in den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen vorzugsweise in Mengen von 0,5 bis 10 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf
10 das Gesamtgewicht der vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen, eingesetzt.

Als vernetzbare Siliconbeschichtungszusammensetzungen werden vorzugsweise solche enthaltend

- 15 (A) Organosiliciumverbindungen, die Reste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisen,
(B) Organosiliciumverbindungen mit Si-gebundenen Wasserstoffatomen
(C) Die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an
20 aliphatische Mehrfachbindung fördernde Katalysatoren und gegebenenfalls
(D) Inhibitoren
eingesetzt.

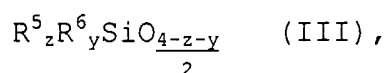
25 Gegenstand der Erfindung sind weiterhin vernetzbare Siliconbeschichtungszusammensetzung mit reduzierter Aerosolbildung enthaltend

- (X) erfindungsgemäße Antimisting Additive
(A) Organosiliciumverbindungen, die Reste mit aliphatischen
30 Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisen,
(B) Organosiliciumverbindungen mit Si-gebundenen Wasserstoffatomen
(C) Die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an
aliphatische Mehrfachbindung fördernde Katalysatoren
35 und gegebenenfalls

(D) Inhibitoren

Bei den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen kann vorzugsweise eine Art des erfindungsgemäßen Antimisting
 5 Additivs (X) oder verschiedene Arten des erfindungsgemäßen Antimisting Additivs (X) eingesetzt werden.

Als Organopolysiloxane (A), die Reste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisen, werden
 10 vorzugsweise lineare oder verzweigte Organopolysiloxane aus Einheiten der allgemeinen Formel



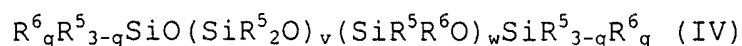
15

wobei R^5 einen einwertigen, gegebenenfalls substituierten, von aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen freien Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen je Rest und

20 R^6 einen einwertigen Kohlenwasserstoffrest mit terminaler, aliphatischer Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindung mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen je Rest bedeutet,
 z 0, 1, 2 oder 3,
 y 0, 1 oder 2

25 und die Summe $z+y$ 0, 1, 2 oder 3 ist,
 mit der Maßgabe, dass durchschnittlich mindestens 1,5 Reste R^6 , bevorzugt durchschnittlich mindestens 2 Reste R^6 , vorliegen, verwendet.

30 Bevorzugt als Organosiliciumverbindungen (A) sind Organopolysiloxane der allgemeinen Formel



35 wobei R^5 und R^6 die oben dafür angegebene Bedeutung haben,

g 0, 1 oder 2,
v 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 1500 und
w 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 200 ist,
mit der Maßgabe, dass durchschnittlich mindestens 1,5 Reste R^6 ,
5 bevorzugt durchschnittlich mindestens 2 Reste R^6 , enthalten
sind.

Im Rahmen dieser Erfindung soll Formel (IV) so verstanden
werden, dass v Einheiten $-(SiR^5_2O)-$ und w Einheiten $-(SiR^5R^6O)-$
10 in beliebiger Weise im Organopolysiloxanmolekül verteilt sein
können.

Als Organosiliciumverbindungen (A) können auch verzweigte
Polymere mit endständigen ω -Alkenylgruppen, bevorzugt Si-
15 gebundene Vinylgruppen, wie sie in US 6,034,225 (incorporated
by reference), insbesondere Spalte 1, Zeile 43 bis Spalte 2,
Zeile 13, und US 6,258,913 (incorporated by reference),
insbesondere Spalte 1, Zeile 62 bis Spalte 2, Zeile 35,
beschrieben sind, verwendet werden.

20 Als Organosiliciumverbindungen (A) können auch lineare
Organopolysiloxane, wie sie in US 6,274,692 (incorporated by
reference), insbesondere Spalte 2, Zeile 3 bis 27, beschrieben
sind und die nicht an beiden Enden je einen aliphatisch
ungesättigten Kohlenwasserstoffrest, wie eine Si-gebundene
25 Vinylgruppe, aufweisen sondern an den Enden auch aliphatisch
gesättigte Kohlenwasserstoffreste, wie Si-gebundene
Methylgruppen aufweisen, verwendet werden.

Als Organosiliciumverbindungen (A) können auch solche, wie sie
in US-A 5,241,034 (incorporated by reference), insbesondere
30 Spalte 16, Zeile 23 bis Spalte 17, Zeile 35, DE-A 195 22 144
(incorporated by reference), insbesondere Seite 2, Zeile 44 bis
67, DE-A 196 29 053 (incorporated by reference), insbesondere
Seite 2, Zeile 51 bis Seite 3, Zeile 29, US-A 5,760,145
(incorporated by reference), insbesondere Spalte 2, Zeile 46
35 bis Spalte 4, Zeile 23 und US-A 6,265,497 (incorporated by

reference), insbesondere Spalte 2, Zeile 3 bis 47, beschrieben sind, verwendet werden.

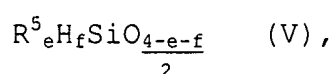
Die Organopolysiloxane (A) besitzen vorzugsweise eine
5 durchschnittliche Viskosität von 100 bis 10 000 mPa.s bei 25°C.

Beispiele für Kohlenwasserstoffreste R^5 sind Alkylreste, wie der Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, iso-Propyl-, 1-n-Butyl-, 2-n-Butyl-, iso-Butyl-, tert.-Butyl-, n-Pentyl-, iso-Pentyl-,
10 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
15 der n-Octadecylrest; Cycloalkylreste, wie Cyclopentyl-, Cyclohexyl-, Cycloheptylreste und Methylcyclohexylreste; Arylreste, wie der Phenyl-, Naphthyl-, Anthryl- und Phenanthrylrest; Alkarylreste, wie o-, m-, p-Tolylreste, Xylylreste und Ethylphenylreste; und Aralkylreste, wie der
20 Benzylrest, der α - und der β -Phenylethylrest.

Beispiele für Reste R^6 sind Alkenylreste, wie der Vinyl-, 5-Hexenyl-, Allyl-, 3-Butenyl- und 4-Pentenylrest; und Alkynylreste, wie der Ethinyl-, Propargyl- und 1-Propinrest.
25

Als Organosiliciumverbindungen (B), die Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisen, werden vorzugsweise lineare, cyclische oder verzweigte Organopolysiloxane aus Einheiten der allgemeinen Formel

30



wobei

35 R^5 die oben dafür angegebene Bedeutung hat,

e 0, 1, 2 oder 3,

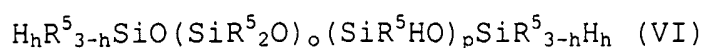
f 0, 1 oder 2

und die Summe von e+f 0, 1, 2 oder 3 ist,

mit der Maßgabe, dass durchschnittlich mindestens 2 Si-
5 gebundene Wasserstoffatome vorliegen, verwendet.

Vorzugsweise enthalten die Organosiliciumverbindungen (B)
mindestens 3 Si-gebundene Wasserstoffatome.

10 Bevorzugt werden als Organosiliciumverbindungen (B)
Organopolysiloxane der allgemeinen Formel



15 wobei R^5 die oben dafür angegebene Bedeutung hat,

h 0, 1 oder 2,

o 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 1500 und

p 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 200 ist,

mit der Maßgabe, dass durchschnittlich mindestens 2 Si-
20 gebundene Wasserstoffatome, vorliegen, verwendet.

Im Rahmen dieser Erfindung soll Formel VI so verstanden werden,
dass o Einheiten $-(\text{SiR}^5_2\text{O})-$ und p Einheiten $-(\text{SiR}^5\text{HO})-$ in
beliebiger Weise im Organopolysiloxanmolekül verteilt sein
25 können.

Beispiele für solche Organopolysiloxane sind insbesondere
Mischpolymerisate aus Dimethylhydrogensiloxan-,
Methylhydrogensiloxan-, Dimethylsiloxan- und
30 Trimethylsiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus
Trimethylsiloxan-, Dimethylhydrogensiloxan- und
Methylhydrogensiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus
Trimethylsiloxan-, Dimethylsiloxan- und
Methylhydrogensiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus
35 Methylhydrogensiloxan- und Trimethylsiloxaneinheiten,
Mischpolymerisate aus Methylhydrogensiloxan-, Diphenylsiloxan-

und Trimethylsiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus Methylhydrogensiloxan-, Dimethylhydrogensiloxan- und Diphenylsiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus Methylhydrogensiloxan-, Phenylmethylsiloxan-, Trimethylsiloxan- und/oder
5 Dimethylhydrogensiloxaneinheiten, Mischpolymerisate aus Methylhydrogensiloxan-, Dimethylsiloxan-, Diphenylsiloxan-, Trimethylsiloxan- und/oder Dimethylhydrogensiloxaneinheiten sowie Mischpolymerisate aus Dimethylhydrogensiloxan-, Trimethylsiloxan-, Phenylhydrogensiloxan-, Dimethylsiloxan-
10 und/oder Phenylmethylsiloxaneinheiten.

Als Organosiliciumverbindungen (B) können auch solche, wie sie in US-A 5,691,435 (incorporated by reference), insbesondere Spalte 3, Zeile 45 bis Spalte 4, Zeile 29, beschrieben sind,
15 verwendet werden.

Die Organopolysiloxane (B) besitzen vorzugsweise eine durchschnittliche Viskosität von 10 bis 1 000 mPa.s bei 25°C.

20 Organosiliciumverbindung (B) wird vorzugsweise in Mengen von 0,5 bis 3,5, bevorzugt 1,0 bis 3,0 Grammatom Si-gebundenen Wasserstoff je Mol Si-gebundenen Restes mit aliphatischer Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindung in der Organosiliciumverbindung (A) eingesetzt.

25

Als die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindungen fördernde Katalysatoren können auch bei den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen die gleichen Katalysatoren eingesetzt werden, die auch bisher
30 zur Förderung der Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindung eingesetzt werden konnten. Als Bestandteil (C) werden vorzugsweise die oben genannten Katalysatoren (3) verwendet.

Die Katalysatoren (C) werden vorzugsweise in Mengen von 10 bis 1000 Gew.-ppm (Gewichtsteilen je Million Gewichtsteilen), bevorzugt 50 bis 200 Gew.-ppm, jeweils berechnet als elementares Platinmetall und bezogen auf das Gesamtgewicht der Organosiliciumverbindungen (A) und (B), eingesetzt.

Die vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen können die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindung bei Raumtemperatur verzögernde Mittel, sogenannte Inhibitoren (D), enthalten.

Als Inhibitoren (D) können auch bei den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen alle Inhibitoren verwendet werden, die auch bisher für den gleichen Zweck verwendet werden konnten.

Beispiele für Inhibitoren (D) sind 1,3-Divinyl-1,1,3,3-tetramethyldisiloxan, Benzotriazol, Dialkylformamide, Alkylthioharnstoffe, Methylethylketoxim, organische oder siliciumorganische Verbindungen mit einem Siedepunkt von mindestens 25°C bei 1012 mbar (abs.) und mindestens einer aliphatischen Dreifachbindung, wie 1-Ethinylcyclohexan-1-ol, 2-Methyl-3-butin-2-ol, 3-Methyl-1-pentin-3-ol, 2,5-Dimethyl-3-hexin-2,5-diol und 3,5-Dimethyl-1-hexin-3-ol, 3,7-Dimethyl-oct-1-in-6-en-3-ol, eine Mischung aus Diallylmalolat und Vinylacetat, Maleinsäuremonoester, und Inhibitoren wie die Verbindung der Formel

$\text{HC}\equiv\text{C}-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{OH})-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{C}(\text{CH}_3)_2$, käuflich erwerblich unter dem Handelsnamen "Dehydrolinalool" bei der Fa. BASF.

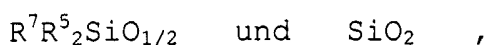
Wird Inhibitor (D) mitverwendet, so wird er zweckmäßig in Mengen von vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, bevorzugt 0,01 bis 3 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Organosiliciumverbindungen (A) und (B), eingesetzt.

Beispiele für weitere Bestandteile, die bei den vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen mitverwendet werden können, sind Mittel zur Einstellung der Trennkraft, organische Lösungsmittel, Haftvermittler und Pigmente.

5

Beispiele für Mittel zur Einstellung der Trennkraft der mit den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen hergestellten klebrige Stoffe abweisenden Überzüge sind Siliconharze aus Einheiten der Formel

10



sogenannte MQ-Harze, wobei R^7 ein Wasserstoffatom, ein Kohlenwasserstoffrest R^5 , wie Methylrest, ein Alkenylrest R^6 , wie Vinylrest, ist, und R^5 und R^6 die oben dafür angegebene Bedeutung haben und die Einheiten der Formel $R^7R^5_2SiO_{1/2}$ gleich oder verschieden sein können. Das Verhältnis von Einheiten der Formel $R^7R^5_2SiO_{1/2}$ zu Einheiten der Formel SiO_2 beträgt vorzugsweise 0,6 bis 2. Die Siliconharze werden vorzugsweise in Mengen von 5 bis 80 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Organosiliciumverbindungen (A) und (B), eingesetzt.

Beispiele für organische Lösungsmittel sind Benzine, z. B. Alkangemische mit einem Siedebereich von 70°C bis 180°C, n-Heptan, Benzol, Toluol und Xylole, halogenierte Alkane mit 1 bis 6 Kohlenstoffatom(en), wie Methylenchlorid, Trichlorethylen und Perchlorethylen, Ether, wie Di-n-butyl-ether, Ester, wie Ethylacetat, und Ketone, wie Methylethylketon und Cyclohexanon.

Werden organische Lösungsmittel mitverwendet, so werden sie zweckmäßig in Mengen von vorzugsweise 10 bis 90 Gew.-%, bevorzugt 10 bis 70 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Organosiliciumverbindungen (A) und (B), eingesetzt.

Die Reihenfolge beim Vermischen der Bestandteile (X), (A), (B), (C) und gegebenenfalls (D) ist zwar nicht entscheidend, für die

Praxis hat es sich jedoch bewährt, den Bestandteil (C), also den Katalysator, dem Gemisch der anderen Bestandteile zuletzt zuzusetzen.

5 Die Vernetzung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen erfolgt vorzugsweise bei 70°C bis 180°C. Als Energiequellen für die Vernetzung durch Erwärmen werden vorzugsweise Öfen, z. B. Umlufttrockenschränke, Heizkanäle, beheizte Walzen, beheizte Platten oder Wärmestrahlen des Infrarotbereiches verwendet.

10

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können außer durch Erwärmen auch durch Bestrahlen mit Ultraviolettlicht oder durch Bestrahlen mit UV- und IR-Licht vernetzt werden. Als Ultraviolettlicht wird üblicherweise solches mit einer
15 Wellenlänge von 253,7 nm verwendet. Im Handel gibt es eine Vielzahl von Lampen, die Ultraviolettlicht mit einer Wellenlänge von 200 bis 400 nm aussenden, und die Ultraviolettlicht mit einer Wellenlänge von 253,7 nm bevorzugt emittieren.

20

Gegenstand der Erfindung sind weiterhin Formkörper hergestellt durch Vernetzung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen.

Bei den Formkörper handelt es sich vorzugsweise um
25 Beschichtungen, bevorzugt um klebrige Stoffe abweisende Überzüge.

Gegenstand der Erfindung ist weiterhin ein Verfahren zur Herstellung von Beschichtungen durch Auftragen von
30 erfindungsgemäßen vernetzbaren Zusammensetzungen auf die zu beschichtenden Oberflächen und anschließende Vernetzung der Zusammensetzungen.

Die erfindungsgemäßen vernetzbaren Zusammensetzungen werden
35 bevorzugt zur Herstellung von klebrige Stoffe abweisenden

Überzügen, z.B. zur Herstellung von Trennpapieren, verwendet. Klebrige Stoffe abweisende Überzüge werden hergestellt durch Auftragen von erfindungsgemäßen vernetzbaren Zusammensetzungen auf die klebrige Stoffe abweisend zu machenden Oberflächen und
5 anschließende Vernetzung der Zusammensetzungen.

Das Auftragen von den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen auf die zu beschichtenden Oberflächen, bevorzugt klebrige Stoffe abweisend zu machenden Oberflächen, kann in beliebiger, für die
10 Herstellung von Beschichtungen aus flüssigen Stoffen geeigneter und vielfach bekannter Weise erfolgen, beispielsweise durch Tauchen, Streichen, Gießen, Sprühen, Aufwalzen, Drucken, z. B. mittels einer Offsetgravur-Überzugsvorrichtung, Messer- oder Rakel-Beschichtung oder mittels einer Luftbürste.

15 Die Schichtdicke auf den zu beschichtenden Oberflächen beträgt vorzugsweise 0,3 bis 6 μm , besonders bevorzugt 0,5 bis 2,0 μm .

Bei den zu beschichtenden Oberflächen, bevorzugt klebrige
20 Stoffe abweisend zu machenden Oberflächen, die im Rahmen der Erfindung behandelt werden können, kann es sich um Oberflächen beliebiger bei Raumtemperatur und 1012 mbar (abs.) fester Stoffe handeln. Beispiele für derartige Oberflächen sind diejenigen von Papier, Holz, Kork und Kunststofffolien, z. B.
25 Polyethylenfolien oder Polypropylenfolien, gewebtem und ungewebtem Tuch aus natürlichen oder synthetischen Fasern, keramischen Gegenständen, Glas, einschließlich Glasfasern, Metallen, mit Polyethylen beschichtetem Papier und von Pappen, einschließlich solcher aus Asbest. Bei dem vorstehend erwähnten
30 Polyethylen kann es sich jeweils um Hoch-, Mittel- oder Niederdruck-Polyethylen handeln. Bei Papier kann es sich um minderwertige Papiersorten, wie saugfähige Papiere, einschließlich rohem, d. h. nicht mit Chemikalien und/oder polymeren Naturstoffen vorbehandeltes Kraftpapier mit einem
35 Gewicht von 60 bis 150 g/m^2 , ungeleimte Papiere, Papiere mit

niedrigem Mahlgrad, holzhaltige Papiere, nicht satinierte oder nicht kalandrierte Papiere, Papiere, die durch die Verwendung eines Trockenglättzylinders bei ihrer Herstellung ohne weitere aufwendigen Maßnahmen auf einer Seite glatt sind und deshalb
5 als "einseitig maschinenglatte Papiere" bezeichnet werden, unbeschichtete Papiere oder aus Papierabfällen hergestellte Papiere, also um sogenannte Abfallpapiere, handeln. Bei dem erfindungsgemäß zu behandelnden Papier kann es sich aber auch selbstverständlich um hochwertige Papiersorten, wie saugarme
10 Papiere, geleimte Papiere, Papiere mit hohem Mahlgrad, holzfreie Papiere, kalandrierte oder satinierte Papiere, Pergaminpapiere, pergamentisierte Papiere oder vorbeschichtete Papiere, handeln. Auch die Pappen können hoch- oder minderwertig sein.

15 Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen eignen sich beispielsweise zum Herstellen von Trenn-, Abdeck-, und Mitläuferpapieren, einschließlich Mitläuferpapieren, die bei der Herstellung von z. B. Gieß- oder Dekorfolien oder von Schaumstoffen, einschließlich solcher aus Polyurethan, eingesetzt
20 werden. Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen eignen sich weiterhin beispielsweise zur Herstellung von Trenn-, Abdeck-, und Mitläuferpappen, -folien, und -tüchern, für die Ausrüstung der Rückseiten von selbstklebenden Bändern oder selbstklebenden
25 Folien oder der beschrifteten Seiten von selbstklebenden Etiketten. Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen eignen sich auch für die Ausrüstung von Verpackungsmaterial, wie solchem aus Papier, Pappschachteln, Metallfolien und Fässern, z. B. Pappe, Kunststoff, Holz oder Eisen, das für Lagerung und/oder
30 Transport von klebrigen Gütern, wie Klebstoffen, klebrigen Lebensmitteln, z. B. Kuchen, Honig, Bonbons und Fleisch; Bitumen, Asphalt, gefetteten Materialien und Rohgummi, bestimmt ist. Ein weiteres Beispiel für die Anwendung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen ist die Ausrüstung von

Trägern zum Übertragen von Haftklebeschichten beim sogenannten "Transfer-Verfahren".

Die die erfindungsgemäßen Antimisting Additiven enthaltenden vernetzbaren Siliconbeschichtungszusammensetzungen eignen sich insbesondere zur Verwendung in schnellen Beschichtungssystemen mit Beschichtungsgeschwindigkeiten vorzugsweise von 300 bis 2000 m/min, bevorzugt 400 bis 1500 m/min, bei denen die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen bei hohen Geschwindigkeiten auf die zu beschichtenden Oberflächen aufgebracht werden.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen eignen sich zur Herstellung der mit dem Trennpapier verbundenen Selbstklebematerialien sowohl nach dem off-line Verfahren als auch nach dem in-line Verfahren.

Beim off-line Verfahren wird die Siliconzusammensetzung auf das Papier aufgetragen und vernetzt, dann, in einer darauffolgenden Stufe, gewöhnlich nach dem Aufwickeln des Trennpapiers auf eine Rolle und nach dem Lagern der Rolle, wird ein Klebstofffilm, der beispielsweise auf einem Etikettenfacepapier aufliegt, auf das beschichtete Papier aufgetragen und der Verbund wird dann zusammengepresst. Beim in-line Verfahren wird die Siliconzusammensetzung auf das Papier aufgetragen und vernetzt, der Siliconüberzug wird mit dem Klebstoff beschichtet, das Etikettenfacepapier wird dann auf den Klebstoff aufgetragen und der Verbund schließlich zusammengepresst.

Beim off-line Verfahren richtet sich die Aufwickelgeschwindigkeit nach der Zeit, die notwendig ist, um den Siliconüberzug klebfrei zu machen. Beim in-line Verfahren richtet sich die Verfahrensgeschwindigkeit nach der Zeit, die notwendig ist, um den Siliconüberzug migrationsfrei zu machen. Das off-line Verfahren und das in-line Verfahren kann mit den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen bei einer Geschwindigkeit

von 300 bis 2000 m/min, bevorzugt 400 bis 1500 m/min, betrieben werden.

Herstellung der Alkenylgruppen aufweisenden Siloxan Copolymere:

5

Beispiel 1:

Bei 25°C werden die folgenden Komponenten homogen vermischt:
1259,3 g eines α,ω -Dihydrogensiloxans mit einem Gehalt von Si-
gebundenem Wasserstoff (Aktivwasserstoff) von 0,054 Gew.-%,
10 1280,9 g trimethylsilylterminiertes Polydimethylsiloxan der
Viskosität 9,8 mm²/s bei 25°C und 21,6 g Trivinylcyclohexan
(SiH/C=C = 1,7).

Man fügt dann 0,25 g einer 1 Gew.-%ige (bezogen auf elementares
15 Platin) Lösung eines Platin-1,3-Divinyl-1,1,3,3-tetramethyl-
disiloxan-Komplexes in einem α,ω -Divinyldimethylpolysiloxan mit
einer Viskosität von 1000 mPa.s bei 25°C (eine Lösung des
sogenannten Karstedt-Katalysators, dessen Herstellung in US
3,775,452 beschrieben ist) zu. Während 1 h steigt die
20 Gemischtemperatur um ca. 8 °K an. Danach lässt man noch 1 h bei
100°C nachrühren. Man erhält eine klare Lösung eines
verzweigten Siloxanpolymeren mit SiH-Funktionen in der gleichen
Menge trimethylsilylterminiertem Polydimethylsiloxan mit einer
Viskosität von 230 mm²/s bei 25°C. Die Lösung ist mit
25 vinylfunktionellen Polysiloxanen unbegrenzt mischbar.

Beispiel 2:

Bei 25°C werden die folgenden Komponenten homogen vermischt:
30 799,2 g eines α,ω -Dihydrogensiloxans mit einem Gehalt von
Aktivwasserstoff von 0,0106 %, 801,9 g trimethylsilyl-
terminiertes Polydimethylsiloxan der Viskosität 9,8 mm²/s bei
25°C und 2,7 g Trivinylcyclohexan (SiH/C=C = 1,7).
Man fügt dann 0,3 g der in Beispiel 1 beschriebenen Karstedt-
35 Katalysatorlösung zu, deren Platin-Gehalt 1,0% ist. Das Gemisch

wird 1 h gerührt, dabei steigt die Gemischtemperatur kaum an. Danach lässt man noch 1 h bei 40° C nachrühren. Man erhält eine klare Lösung eines verzweigten Siloxanpolymeren mit SiH-Funktionen in der gleichen Menge trimethylsilylterminiertem Polydimethylsiloxan mit einer Viskosität von ca. 10 000 mm²/s bei 25°C.

Beispiel 3:

Bei 25°C werden die folgenden Komponenten homogen vermischt: 799,2 g eines α,ω -Dihydrogensiloxans mit einem Gehalt von Aktivwasserstoff von 0,0106 %, 802 g Toluol und 2,7 g Trivinylcyclohexan (SiH/C=C = 1,7). Man fügt dann 0,3 g der in Beispiel 1 beschriebenen Karstedt-Katalysatorlösung zu, deren Ptlatin-Gehalt 1,0% ist. Das Gemisch wird 1 h gerührt, dabei steigt die Gemischtemperatur kaum an. Danach lässt man noch 1 h bei 40° C nachrühren. Dann entfernt man das Toluol unter vermindertem Druck und ersetzt es durch die gleiche Menge 1-Dodecen. Man erhält eine klare Lösung eines verzweigten Siloxanpolymeren mit SiH-Funktionen in 1-Dodecen mit einer Viskosität von 2700 mm²/s bei 25°C. Die Lösung ist mit vinylfunktionellen Polysiloxanen unbegrenzt mischbar.

2. Verwendung der Alkenylgruppen aufweisenden Siloxancopolymere als Antimisting Additive:

Beispiel 4:

Bei hohem Auftragsgewicht und bestimmten Beschichtungsformulierungen kann die Aerosolbildung bereits bei Maschinengeschwindigkeiten deutlich unter 500 m/min auftreten. Die Anwendung der erfindungsgemäßen verzweigten Siloxancopolymere zur Reduktion der Aerosolbildung erfolgte als Additiv in vernetzbaren Siliconbeschichtungssystemen für den Einsatz in solchen Beschichtungsprozessen.

Als Standardformulierung wurde eine Mischung aus

- 100 Gew.-teilen eines verzweigten Polysiloxans mit
5 Vinyltrimethylsiloxyendgruppen, das eine Viskosität von 420
mPa.s (25°C) und eine Jodzahl von 8,0 aufweist und gemäß
Beispiel 3 von US 6,034,225 hergestellt wird,
3,6 Gew.-teile eines linearen Polysiloxans aus
Hydrogenmethylsiloxan- und Trimethylsiloxaneinheiten im
10 Molverhältnis 24 : 1,
1,04 Gew.-teile einer 1 Gew.-%igen (bezogen auf elementares
Platin) Lösung eines Platin-1,3-Divinyl-1,1,3,3-tetramethyl-
disiloxan-Komplexes in einem α,ω -Divinyltrimethylpolysiloxan mit
einer Viskosität von 1000 mPa.s bei 25°C und
15 0,3 Gew.-teile 1-Ethynylcyclohexanol
eingesetzt.

- Die erfindungsgemäßen Additive gemäß den in Tabelle 1
angegebenen Herstellungsbeispielen wurden der
20 Standardformulierung gemäß den in Tabelle 1 angegebenen Mengen
zugesetzt. Als Vergleich wurde eine Standardformulierung ohne
erfindungsgemäßes Additiv eingesetzt. Diese Mischungen wurden
zur Papierbeschichtung eingesetzt.

- 25 Als Substrat wurde Papier der Fa. Ahlstrom mit der Bezeichnung
Glassine Larice Tipo 325 mit 62 g/m² verwendet. Die
Beschichtung erfolgte auf der Pilotbeschichtungsanlage der Fa.
Dixon der Modellnummer 1060 mit einem 5-Walzen Auftragswerk,
bei 150 m/min. Dabei wurde die Auftragsrolle mit 95% der
30 Papiergeschwindigkeit gefahren. Die Beschichtung wurde im
Trockenofen mit 3 m Länge bei 140°C ausgehärtet.

- Die Aerosolbildung wurde mit dem Dusttrak Aerosol Monitor Model
8520 bestimmt. Die Probennahme erfolgte zwischen
35 Siliconauftragswalze und Walzenspalt in einem Abstand von 12 cm
zur Siliconauftragswalze. Zusätzlich wurde die Aerosolbildung
visuell beurteilt und mit den Ziffern 1 - 3 bewertet:

- 1 keine sichtbare Aerosolbildung
- 2 schwach sichtbare Aerosolbildung
- 3 starke Aerosolbildung.

- 5 Während der Beschichtungsversuche wurden die maximal angezeigten Aerosolwerte protokolliert. Das Beschichtungsgewicht wurde mittels Röntgenfluoreszenzanalyse in Referenz zu einem geeigneten Standard bestimmt und betrug 4 g/m².
- 10 Weiterhin wurde Einfluss der erfindungsgemäßen Antimisting Additive auf die Aushärtung des Beschichtungssystems mittels Migrationstest bestimmt. Die Migration wird entsprechend ihres Ausmaßes mit den Noten 1 bis 6 beurteilt, wobei die Note 1 keine Migration (vollständige Aushärtung), die Note 3 eine
- 15 leichte und die Note 6 eine starke Migration (unvollständige Aushärtung) bedeutet. Der Migrationstest ist in der Broschüre DEHESIVE® Silicones Testmethoden der Fa. Wacker-Chemie GmbH beschrieben.
- 20 Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

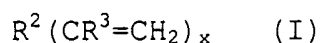
Tabelle 1:

Additiv	Menge Additiv in %	Misting, mg/m ³ (Dusttrak)	Misting (visuell)	Migration
Beispiel 1	4	11	2,5	2,5
Beispiel 2	4	1,15	1	1,5
Beispiel 3	4	2,1	1	1
Beispiel 3	1	3,5	1	1,5
-	-	17	3	2

- 25 Die Vergleichsversuche zeigen, dass der Zusatz der erfindungsgemäßen, verzweigten Si-gebundene Wasserstoffatome aufweisenden Siloxanopolymere als Antimisting Additive die Aerosolbildung vernetzbarer Siliconbeschichtungssysteme in schnellen Beschichtungsprozessen deutlich reduziert.

Patentansprüche:

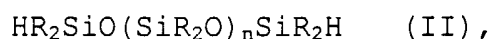
1. Verwendung von Antimisting Additiven in vernetzbaren
5 Siliconbeschichtungszusammensetzungen zur Reduktion der
Aerosolbildung, dadurch gekennzeichnet, dass
als Antimisting Additive Si-gebundene Wasserstoffatome
aufweisende Siloxancopolymere herstellbar, indem
eine mindestens drei aliphatische Doppelbindungen
10 aufweisende Verbindung (1) der allgemeinen Formel



wobei R^2 einen dreiwertigen oder vierwertigen
15 Kohlenwasserstoffrest mit vorzugsweise 1 bis 25
Kohlenstoffatomen je Rest, der ein oder mehrere von
einander separate Heteroatome ausgewählt aus der Gruppe von
Sauerstoff, Silizium und Titan enthalten kann,
 R^3 ein Wasserstoffatom oder einen Alkylrest mit 1 bis 6
20 Kohlenstoffatomen je Rest und
 x 3 oder 4, bedeutet,
mit einem Organosiloxan (2) mit endständigen Si-gebundenen
Wasserstoffatomen
in Gegenwart von die Anlagerung von Si-gebundenem
25 Wasserstoff an aliphatische Doppelbindung förderndem
Katalysator (3) umgesetzt wird,
wobei das eingesetzte Verhältnis von Si-gebundenem
Wasserstoff im Organosiloxan (2) zu aliphatischer
Doppelbindung in organischer Verbindung (1) 1,3 bis 10
30 beträgt,
und gegebenenfalls in einem zweiten Schritt
die so erhaltenen Si-gebundene Wasserstoffatome
aufweisenden Siloxancopolymere mit Organopolysiloxan (4),
ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus linearen,
35 endständige Triorganosiloxygruppen aufweisenden

Organopolysiloxanen, linearen, endständige Hydroxylgruppen aufweisenden Organopolysiloxanen, verzweigten, gegebenenfalls Hydroxylgruppen aufweisenden Organopolysiloxanen, cyclischen Organopolysiloxanen und
5 Mischpolymerisaten aus Diorganosiloxan- und Monoorganosiloxaneinheiten, equilibriert werden, eingesetzt werden.

- 10 2. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet dass als Organosiloxan (2) solches der allgemeinen Formel



- 15 wobei R gleiche oder verschiedene, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen je Rest und n 0 oder eine ganze Zahl bedeutet, eingesetzt wird.

20

3. Verwendung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass n eine ganze Zahl von 50 bis 2000 bedeutet.

25

4. Verwendung nach Anspruch 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass als organische Verbindung (1) solche eingesetzt wird, bei der R² einen dreiwertigen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 25 Kohlenstoffatomen je
30 Rest und x den Wert 3 bedeutet.

5. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass als organische Verbindung (1)
35 1,2,4-Trivinylcyclohexan eingesetzt wird.

6. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass das eingesetzte Verhältnis von Si-
5 gebundenem Wasserstoff im Organosiloxan (2) zu aliphatischer Doppelbindung in organischer Verbindung (1) 1,6 bis 3,0 beträgt.
- 10 7. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass als vernetzbare Siliconbeschichtungszusammensetzung solche enthaltend
(A) Organosiliciumverbindungen, die Reste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisen,
15 (B) Organosiliciumverbindungen mit Si-gebundenen Wasserstoffatomen
(C) Die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindung fördernde Katalysatoren und gegebenenfalls
20 (D) Inhibitoren eingesetzt werden.
8. Vernetzbare Siliconbeschichtungszusammensetzung mit
25 reduzierter Aerosolbildung enthaltend
(X) Antimisting Additive nach einem der Ansprüche 1 bis 6
(A) Organosiliciumverbindungen, die Reste mit aliphatischen Kohlenstoff-Kohlenstoff-Mehrfachbindungen aufweisen,
(B) Organosiliciumverbindungen mit Si-gebundenen
30 Wasserstoffatomen
(C) Die Anlagerung von Si-gebundenem Wasserstoff an aliphatische Mehrfachbindung fördernde Katalysatoren und gegebenenfalls
(D) Inhibitoren

9. Formkörper hergestellt durch Vernetzung der Zusammensetzungen gemäß Anspruch 8.

5

10. Formkörper gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um Beschichtungen handelt.

10 11. Formkörper gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um klebrige Stoffe abweisende Überzüge handelt.

12. Verfahren zur Herstellung von Beschichtungen durch
15 Auftragen von vernetzbaren Zusammensetzungen gemäß Anspruch 8 auf die zu beschichtenden Oberflächen und anschließende Vernetzung der Zusammensetzungen.

20 13. Verfahren zur Herstellung von klebrige Stoffe abweisende Überzüge durch Auftragen von vernetzbaren Zusammensetzungen gemäß Anspruch 8 auf die klebrige Stoffe abweisend zu machenden Oberflächen und anschließende Vernetzung der Zusammensetzungen.

25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/EP 03/01761

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C08G77/50 C09D183/04

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)
IPC 7 C08G C09D 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 practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 01 98418 A (DOW CORNING) 27 December 2001 (2001-12-27) cited in the application claims 1-19 page 11, line 6 -page 13, line 22 ---	1-13
X	EP 1 008 615 B (WACKER CHEMIE GMBH) 14 June 2000 (2000-06-14) claims 1,10,13-16 ---	1-13
P,A	EP 1 277 786 A (WACKER CHEMIE GMBH) 22 January 2003 (2003-01-22) claims 1-17 page 21 -page 22; examples 1,2 page 3, line 53 -page 4, line 35 --- -/--	1

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in 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 document 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

13 May 2003

Date of mailing of the international search report

21/05/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Depijper, R

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 03/01761

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 01 98420 A (DOW CORNING) 27 December 2001 (2001-12-27) claims 1,2,6,12 ---	1
A	DE 196 29 053 A (WACKER CHEMIE GMBH) 22 January 1998 (1998-01-22) claims 1-9 page 9, line 2 - line 16 ---	1
A	DE 195 22 144 A (WACKER CHEMIE GMBH) 2 January 1997 (1997-01-02) claim 1 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/01761

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0198418	A	27-12-2001	US 6489407 B1 AU 7525501 A EP 1294819 A2 WO 0198418 A2	03-12-2002 02-01-2002 26-03-2003 27-12-2001
EP 1008615	B	14-06-2000	DE 19856115 A1 DE 59900125 D1 EP 1008615 A1 JP 3120081 B2 JP 2000169586 A US 6265497 B1	21-06-2000 19-07-2001 14-06-2000 25-12-2000 20-06-2000 24-07-2001
EP 1277786	A	22-01-2003	DE 10135305 A1 EP 1277786 A1 JP 2003048987 A US 2003055194 A1	06-02-2003 22-01-2003 21-02-2003 20-03-2003
WO 0198420	A	27-12-2001	AU 6537101 A EP 1294818 A2 WO 0198420 A2	02-01-2002 26-03-2003 27-12-2001
DE 19629053	A	22-01-1998	DE 19629053 A1	22-01-1998
DE 19522144	A	02-01-1997	DE 19522144 A1	02-01-1997

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Zeichen

PCT/EP 03/01761

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08G77/50 C09D183/04

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08G C09D 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, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 01 98418 A (DOW CORNING) 27. Dezember 2001 (2001-12-27) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1-19 Seite 11, Zeile 6 -Seite 13, Zeile 22 ---	1-13
X	EP 1 008 615 B (WACKER CHEMIE GMBH) 14. Juni 2000 (2000-06-14) Ansprüche 1,10,13-16 ---	1-13
P,A	EP 1 277 786 A (WACKER CHEMIE GMBH) 22. Januar 2003 (2003-01-22) Ansprüche 1-17 Seite 21 -Seite 22; Beispiele 1,2 Seite 3, Zeile 53 -Seite 4, Zeile 35 --- -/--	1

☒ 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 älteres Dokument, 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 anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Mai 2003

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/05/2003

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Depijper, R

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Patente

PCT/EP 03/01761

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 01 98420 A (DOW CORNING) 27. Dezember 2001 (2001-12-27) Ansprüche 1,2,6,12 ---	1
A	DE 196 29 053 A (WACKER CHEMIE GMBH) 22. Januar 1998 (1998-01-22) Ansprüche 1-9 Seite 9, Zeile 2 - Zeile 16 ---	1
A	DE 195 22 144 A (WACKER CHEMIE GMBH) 2. Januar 1997 (1997-01-02) Anspruch 1 -----	1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die der Patentfamilie gehören

Internationales Zeichen

PCT/EP 03/01761

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0198418	A	27-12-2001	US 6489407 B1 03-12-2002
		AU 7525501 A	02-01-2002
		EP 1294819 A2	26-03-2003
		WO 0198418 A2	27-12-2001
EP 1008615	B	14-06-2000	DE 19856115 A1 21-06-2000
		DE 59900125 D1	19-07-2001
		EP 1008615 A1	14-06-2000
		JP 3120081 B2	25-12-2000
		JP 2000169586 A	20-06-2000
		US 6265497 B1	24-07-2001
EP 1277786	A	22-01-2003	DE 10135305 A1 06-02-2003
		EP 1277786 A1	22-01-2003
		JP 2003048987 A	21-02-2003
		US 2003055194 A1	20-03-2003
WO 0198420	A	27-12-2001	AU 6537101 A 02-01-2002
		EP 1294818 A2	26-03-2003
		WO 0198420 A2	27-12-2001
DE 19629053	A	22-01-1998	DE 19629053 A1 22-01-1998
DE 19522144	A	02-01-1997	DE 19522144 A1 02-01-1997