(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0037276
(43) 공개일자 2020년04월08일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08G 77/08 (2006.01) *C08G 77/12* (2006.01)
C08G 77/18 (2006.01) *C08G 77/20* (2006.01)
C08G 77/26 (2006.01) *C08K 5/5415* (2006.01)
C08K 5/544 (2006.01) *C08L 83/04* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08G 77/08 (2013.01)
C08G 77/12 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2020-7004444
(22) 출원일자(국제) 2018년07월30일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2020년02월14일
(86) 국제출원번호 PCT/US2018/044372
(87) 국제공개번호 WO 2019/027897
국제공개일자 2019년02월07일
(30) 우선권주장
62/538,847 2017년07월31일 미국(US)

(71) 출원인
다우 실리콘즈 코포레이션
미국 미시간 미들랜드 웨스트 잘츠부르크 로드 2200 (우:48686)
(72) 발명자
존슨, 윌리엄 엠.
미국 48686-0994 미시간, 미들랜드 피.오. 박스 994 더블유. 살츠버그 로드 2200 다우 실리콘즈 코포레이션 내
머천드, 크리스틴
미국 48686-0994 미시간, 미들랜드 피.오. 박스 994 더블유. 살츠버그 로드 2200 다우 실리콘즈 코포레이션 내
(74) 대리인
장훈

전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 **수분 경화성 조성물**

(57) 요 약

2-파트 수분 경화 유기실록산 조성물이 개시된다. 2-파트 수분 경화 유기실록산 조성물은 베이스 성분 및 촉매 패키지를 포함한다. 촉매 패키지는 저장 동안 최소의 상분리를 겪는다.

(52) CPC특허분류
C08G 77/18 (2013.01)
C08G 77/20 (2013.01)
C08G 77/26 (2013.01)
C08K 5/5415 (2013.01)
C08K 5/544 (2013.01)
C08L 83/04 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

베이스 성분; 및

촉매 패키지 성분

을 갖는 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물로서,

상기 촉매 패키지 성분은

(i) 점도가 25℃에서 약 5 내지 약 100,000 mPa·s인, 하기 일반 화학식을 갖는 폴리다이알킬실록산:

[화학식 2]

R^3_3-Si-O-((R^2)$_2$SiO)$_d$-Si-R^3_3

(상기 식에서, 각각의 R^2는 알킬 기 또는 페닐 기이고, 각각의 R^3은 동일하거나 상이할 수 있으며 R^2, 알킬, 페닐, 알케닐 또는 알키닐 기로부터 선택됨);

(ii) 하기 화학식에 따른 하나 이상의 다이포달(dipodal) 실란:

(R^4O)$_m$(Y^1)$_{3-m}$-Si(CH_2)$_x$-(($NHCH_2CH_2$)$_t$-Q(CH_2)$_x$)$_n$-Si(OR^4)$_m$(Y^1)$_{3-m}$

(상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 Y^1은 1 내지 8개의 탄소를 함유하는 알킬 기이고, Q는 고립 전자쌍을 갖는 헤테로원자를 함유하는 화학 기이고, 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1이고, 각각의 m은 독립적으로 1, 2 또는 3이고, n은 0 또는 1임);

(iii) 가교결합제; 및

(iv) 주석계 촉매

를 포함하는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 베이스 성분은

(a) 점도가 25℃에서 약 1,500 내지 약 150,000 mPa·s인, 2개 이상의 말단 하이드록실 또는 가수분해성 기를 갖는 실록산 중합체;

(b) 하나 이상의 보강 충전제; 및 선택적으로

(c) 하나 이상의 비-보강 충전제

를 포함하는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 3

베이스 성분; 및

촉매 패키지 성분

을 갖는 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물로서,

상기 베이스 성분은

(a) 점도가 25℃에서 약 1,500 내지 약 150,000 mPa·s인, 2개 이상의 말단 하이드록실 또는 가수분해성 기를 갖는 실록산 중합체;

(b) 하나 이상의 보강 충전제; 및 선택적으로

(c) 하나 이상의 비-보강 충전제

를 포함하고;

상기 촉매 패키지는

(i) 상기 베이스 성분의 상기 실록산 중합체 (a)와 비반응성이며, 점도가 25℃에서 약 5 내지 약 100,000 mPa·s인, 하기 일반 화학식을 갖는 폴리다이알킬실록산:

[화학식 2]

R^3_3-Si-O-((R^2)$_2$SiO)$_d$-Si-R^3_3

(상기 식에서, 각각의 R^2는 알킬 기 또는 페닐 기이고, 각각의 R^3은 동일하거나 상이할 수 있으며 알킬, 페닐, 알케닐 또는 알키닐 기로부터 선택됨);

(ii) 하기 화학식에 따른 하나 이상의 다이포달 실란:

(R^4O)$_m$(Y^1)$_{3-m}$-Si(CH_2)$_x$-(($NHCH_2CH_2$)$_t$-Q(CH_2)$_x$)$_n$-Si(OR^4)$_m$(Y^1)$_{3-m}$

(상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 Y^1은 1 내지 8개의 탄소를 함유하는 알킬 기이고, Q는 고립 전자쌍을 갖는 헤테로원자를 함유하는 화학 기이고, 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1이고, 각각의 m은 독립적으로 1, 2 또는 3이고, n은 0 또는 1임);

(iii) 가교결합제; 및

(iv) 주석계 촉매

를 포함하는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 다이포달 실란 (ii)는

비스(트라이메톡시실릴)헥산, 1,2-비스(트라이에톡시실릴)에탄, 비스(알콕시실릴알킬)아민,

비스(다이알콕시알킬실릴알킬)아민, 비스(트라이알콕시실릴알킬) N-알킬아민,

비스(다이알콕시알킬실릴알킬) N-알킬아민, 비스(트라이알콕시실릴알킬)우레아,

비스(다이알콕시알킬실릴알킬)우레아, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 다이포달 실란 (ii)는

비스(3-트라이메톡시실릴프로필)아민, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민,

비스(4-트라이메톡시실릴부틸)아민, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸)아민,

비스(3-트라이메톡시실릴프로필) N-메틸아민, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필) N-메틸아민,

비스(4-트라이메톡시실릴부틸) N-메틸아민, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸) N-메틸아민,

비스(3-트라이메톡시실릴프로필)우레아, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)우레아,

비스(4-트라이메톡시실릴부틸)우레아, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸)우레아,

비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필)아민, 비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필)아민,

비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸)아민, 비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸)아민,

비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필) N-메틸아민,

비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필) N-메틸아민,

비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸) N-메틸아민,

비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸) N-메틸아민,

비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필)우레아, 비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필)우레아,

비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸)우레아,

비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸)우레아, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필)아민,

비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필)아민, 비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸)아민,

비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸)아민, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필) N-메틸아민,

비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필) N-메틸아민,

비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸) N-메틸아민,

비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸) N-메틸아민, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필)우레아,

비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필)우레아, 비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸)우레아,

비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸)우레아, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 다이포달 실란 (ii)는 하기 일반 구조식을 갖는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물:

$(R^4O)_3$-Si$(CH_2)_x$-$(NHCH_2CH_2)_t$-NH$(CH_2)_x$-Si$(OR^4)_3$

(상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1 임).

청구항 7

제5항에 있어서, 상기 다이포달 실란 (ii)는

비스(3-트라이프로필옥시실릴프로필)아민, 비스(3-메틸다이에톡시실릴프로필)아민,

비스(3-메틸다이메톡시실릴프로필)아민, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민,

비스(3-트라이메톡시실릴프로필)아민, N,N'-비스[(3-트라이메톡시실릴)프로필]에틸렌다이아민, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 8

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 촉매 패키지의 성분 (i), 성분 (ii), 성분 (iii), 및 성분 (iv)는 실질적으로 또는 완전히 혼화성인, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 9

제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 실록산 중합체 (a)는 상기 베이스 성분의 총 중량을 기준으로 약 10 내지 약 70 중량%의 양으로 상기 조성물에 존재하는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 10

제1항 내지 제9항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 보강 충전제 (b)는 건식 실리카, 침강 실리카, 침강 탄산칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되는, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 11

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서, 혼합 시에, 상기 베이스 성분:촉매 패키지의 중량비는 약 15:1 내지 약 1:1인, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 12

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 베이스 성분은

20 내지 80 중량%의 실록산 중합체 (a);

20 내지 70 중량%의 보강 충전제 (b); 및

0 내지 20 중량%의 비-보강 충전제 (c)

를 포함하며,

상기 베이스 성분의 총 중량%는 100 중량%인, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 13

제1항 내지 제12항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 촉매 패키지는

중합체 (a)와 비반응성인 30 내지 80 중량%의 폴리다이알킬실록산 (i);

5 내지 50 중량%의 다이포달 실란 (ii);

1 내지 30 중량%의 가교결합제 (iii); 및

0 내지 3 중량%의 주석계 촉매 (iv)와; 선택적으로

0 내지 30%의 착색 충전제 및/또는 안료; 및 선택적으로

0 내지 20 중량%의 보강 충전제

를 포함하며,

상기 촉매 패키지의 총 중량%는 100 중량%인, 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물.

청구항 14

제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 상기 베이스 성분과 상기 촉매 패키지의 혼합물을 포함하는, 1-파트 수분 경화 조성물.

청구항 15

코팅, 코킹(caulking), 금형 제조 및 봉지(encapsulating) 재료로서의 또는 이를 위한 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 2-파트 수분 경화 조성물의 용도.

청구항 16

제15항에 있어서, 건축 및/또는 구조 글레이징 및/또는 단열 글레이징 응용 및/또는 건물 파사드(façade) 요소 및/또는 가스 충전 단열 건축 패널, 태양광 응용, 자동차 응용, 전자기기 응용 및 산업적 조립 및 유지보수 응용에서의 용도.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 출원은 2017년 7월 31일자로 출원된 미국 특허 출원 제62/538,847호에 대한 우선권 및 이 출원의 모든 이점을 주장하며, 이 출원의 내용은 본 명세서에 참고로 포함된다.

[0002] 본 발명은 베이스 성분(또는 베이스 성분 조성물) 및 촉매 패키지(또는 촉매 패키지 조성물)를 포함하는 2-파트(또는 2성분) 수분 경화 유기실록산 조성물에 관한 것이다. 촉매 패키지는 저장 동안 최소의 상분리를 겪는다.

[0003] 탄성중합체성 고형물로 경화되는 축합 경화성 유기실록산 조성물이 당업계에서 이해된다. 전형적으로, 그러한 조성물은 반응성 말단 기, 예를 들어, 하이드록시 기 또는 가수분해성 기를 갖는 폴리다이오르가노실록산을, 적합한 촉매의 존재 하에, 예컨대 폴리다이오르가노실록산과 반응성인 실란 가교결합제, 예를 들어, 아세톡시 실란, 옥시모실란, 아미노실란 또는 알콕시실란과 혼합함으로써 얻어진다. 생성되는 조성물은 실온에서 대기 중 수분에 노출 시에 경화 가능하며, 구조 밀봉제/접착제로서 사용될 수 있다.

[0004] 밀봉제로서 사용 시에, 조성물이 비교적 두꺼운 층으로 경화되어 탄성중합체성 본체(body)를 제공할 수 있는 것이 중요하다. 유기폴리실록산 조성물은, 수 시간 이내에 완전한 밀봉을 제공할 만큼 충분히 신속하지만 적용 직후에 원하는 형태로 표면이 툴링(tool)될 수 없을 만큼 신속하지는 않게 경화되는 것이 종종 바람직하다. 경화 수단(예를 들어, 가교결합제 및 촉매)에 따라, 그러한 조성물은 기재(substrate) 상에 바로 적용될 수 있는 1-파트 경화성 제품으로, 또는 대안적으로 사용 직전에 다수의 파트를 함께 혼합할 필요가 있는 다중-파트, 전형적으로 2-파트 조합으로 사용자에게 제공될 수 있다.

[0005] 상기 다중-파트 조성물의 개별 파트의 특성은 일반적으로 대기 중 수분에 의해 영향을 받지 않으며, 일단 함께 혼합되면, 생성되는 혼합물은 탁월한 깊은 경화성을 가지며, 밀봉 재료의 전체에 걸쳐, 즉 표면으로부터 내측 부분까지 실질적으로 균일한 경화를 가능하게 한다. 전형적으로, 그러한 2성분 조성물은 실라놀-말단화된(terminated) 다이오르가노폴리실록산 및 보강 충전제, 예를 들어 탄산칼슘을 함유하는 제1 (베이스) 성분, 및 알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산, 주석계 촉매, 가교결합제 및 접착 촉진제, 예를 들어 아미노실란을 함유하는 제2 성분(촉매 또는 경화 패키지)을 포함한다.

[0006] 두 성분을 함께 혼합한 후, 이러한 유형의 2성분 조성물의 경화 속도는 주석 촉매 수준 및 접착 촉진제 수준 중 어느 하나 또는 둘 모두를 증가시킴으로써 용이하게 가속될 수 있다는 것이 일반적으로 인정된다. 그러나, 접착 촉진제의 증가에 따라, 특히 일차 아미노 실란의 경우, 촉매 패키지 내의 알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산은 랜덤 사슬 절단을 겪으며, 이는 점도가 감소되게 하고 혼합물을 불안정하게 만든다. 또한, 촉매 패키지 내의 성분들이 항상 혼화성은 아니다. 이러한 비혼화성으로 인해 알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산이 용기의 상부로 상승함으로써 상분리되며, 그 결과, 촉매 패키지 내의 실란 및 충전제가 혼합물의 하부로 침강된다. 상기의 상분리의 결과로서, 촉매 패키지의 저장 안정성이 극적으로 영향을 받을 수 있다.

[0007] 상분리는 최종 사용자에게 중요한 문제이다. 저장 기간 후에, 특히 대규모로 그러한 2-파트 조성물의 촉매 패키지를 사용 전에 재혼합하는 것은 극히 성가시고 시간 소모적인 것인데, 그 이유는 사용되는 촉매의 일부가 가연성일 수 있어서 잠재적인 안전성 위험을 야기할 수 있기 때문이다. 더욱이, 담체 유체, 예를 들어, 비반응성 실리콘은 재료의 상부에서 상부 상(upper phase)에 축적되는 경향이 있는 반면에 충전제는 실란 풍부 하부 상(lower phase)에 침강될 가능성이 있어서, 대규모의 재혼합이 적어도 문제가 되지만, 극단적인 경우에, 특히 산업적 규모에서, 상당한 상분리가 명백할 때, 촉매 패키지를 대체해야만 할 수 있다.

[0008] 베이스 성분 및 촉매 패키지 성분을 갖는 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물이 본 명세서에 제공된다. 촉매 패키지 성분은

[0009] (i) 점도가 25℃에서 약 5 내지 약 100,000 mPa·s인, 하기 일반 화학식을 갖는 폴리다이알킬실록산:

[0010] [화학식 2]

[0011] R^3_3-Si-O-((R^2)$_2$SiO)$_d$-Si-R^3_3

[0012] (상기 식에서, 각각의 R^2는 알킬 기 또는 페닐 기이고, 각각의 R^3은 동일하거나 상이할 수 있으며 R^2, 알킬, 페닐, 알케닐 또는 알키닐 기로부터 선택되며, d는 상기 점도 범위를 제공하는 정수임);

[0013] (ii) 하기 화학식에 따른 하나 이상의 다이포달(dipodal) 실란:

[0014] (R^4O)$_m$(Y^1)$_{3-m}$-Si(CH_2)$_x$-(($NHCH_2CH_2$)$_t$-Q(CH_2)$_x$)$_n$-Si(OR^4)$_m$(Y^1)$_{3-m}$

[0015] (상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 Y^1은 1 내지 8개의 탄소를 함유하는 알킬 기이고, Q는 고립 전자쌍을 갖는 헤테로원자를 함유하는 화학 기이고, 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1이고, 각각의 m은 독립적으로 1, 2 또는 3이고, n은 0 또는 1임);

[0016] (iii) 가교결합제; 및

[0017] (iv) 주석계 촉매

[0018] 를 포함한다.

[0019] 임의의 적합한 베이스 성분이 이용될 수 있다. 예를 들어, 베이스 성분은

[0020] (a) 점도가 25℃에서 약 1,500 내지 약 150,000 mPa·s인, 2개 이상의 말단 하이드록실 또는 가수분해성 기를 갖는 실록산 중합체;

[0021] (b) 하나 이상의 보강 충전제; 및 선택적으로

[0022] (c) 하나 이상의 비-보강 충전제

[0023] 를 포함할 수 있다.

[0024] 대안적으로, 베이스 성분 및 촉매 패키지 성분을 갖는 2-파트 수분 경화 실리콘 조성물이 본 명세서에 제공된다. 베이스 성분은

[0025] (a) 점도가 25℃에서 약 1,500 내지 약 150,000 mPa·s인, 2개 이상의 말단 하이드록실 또는 가수분해성 기를 갖는 실록산 중합체;

[0026] (b) 하나 이상의 보강 충전제; 및 선택적으로

[0027] (c) 하나 이상의 비-보강 충전제

[0028] 를 포함하고;

[0029] 촉매 패키지는

[0030] (i) 베이스 성분의 중합체 (a)와 비반응성이며, 점도가 25℃에서 약 5 내지 약 100,000 mPa·s인, 하기 일반 화학식을 갖는 폴리다이알킬실록산:

[0031] [화학식 2]

[0032] R^3_3-Si-O-((R^2)$_2$SiO)$_d$-Si-R^3_3

[0033] (상기 식에서, 각각의 R^2는 알킬 기 또는 페닐 기이고, 각각의 R^3은 동일하거나 상이할 수 있으며 R^2, 알킬, 페닐, 알케닐 또는 알키닐 기로부터 선택되며, d는 상기 점도 범위를 제공하는 정수임);

[0034] (ii) 하기 화학식에 따른 하나 이상의 다이포달 실란:

[0035] (R^4O)$_m$(Y^1)$_{3-m}$-Si(CH_2)$_x$-(($NHCH_2CH_2$)$_t$-Q(CH_2)$_x$)$_n$-Si(OR^4)$_m$(Y^1)$_{3-m}$

[0036] (상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 Y^1은 1 내지 8개의 탄소를 함유하는 알킬 기이고, Q는 고립 전자쌍을 갖는 헤테로원자를 함유하는 화학 기이고, 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1이고, 각각의 m은 독립적으로 1, 2 또는 3이고, n은 0 또는 1임);

[0037] (iii) 가교결합제; 및

[0038] (iv) 주석계 촉매

[0039] 를 포함한다.

[0040] 달리 지시되지 않는 한, 모든 점도 측정은 중합체 점도에 따라 속도를 조정하여 40,000 mPa·s 이하의 점도에 대해 콘 플레이트(cone plate) CP-52를 사용하고 40,000 mPa·s 초과의 점도를 갖는 재료에 대해 콘 플레이트 CP-41을 사용하는 브룩필드(Brookfield)(등록상표) 콘 플레이트 점도계(RV DIII)를 사용하여 결정하였고, 모든 점도는 달리 지시되지 않는 한 25℃에서 측정하였다.

[0041] 베이스 성분은 (a) 점도가 25℃에서 약 1,500 내지 약 150,000 mPa·s, 대안적으로 25℃에서 약 1,500 내지 약 100,000 mPa·s, 대안적으로 25℃에서 약 1,500 내지 약 80,000 mPa·s인 2개 이상의 말단 하이드록실 또는 가수분해성 기를 갖는 실록산 중합체를 포함할 수 있다. 실록산 중합체 (a)는 하기 분자 화학식 1로 기재될 수

있다:

[0042] [화학식 1]

[0043] $X_{3-a}R_aSi-Z_b-O-(R^1_ySiO_{(4-y)/2})_z-Z_b-Si-R_aX_{3-a}$

[0044] 상기 식에서, a는 0, 1, 2 또는 3이고, b는 0 또는 1이고, z는 300 내지 5000(종점 포함)의 정수이고, y는 0, 1 또는 2, 대안적으로 2이다.

[0045] $R^1_ySiO_{(4-y)/2}$의 97% 이상은 y=2인 것을 특징으로 한다. X는 하이드록실 기 또는 임의의 축합성 또는 임의의 가수분해성 기이다. 각각의 Z는 독립적으로 1개 내지 10개의 탄소 원자를 갖는 알킬렌 기로부터 선택된다.

[0046] 각각의 R은 개별적으로 알킬, 아미노알킬, 폴리아미노알킬, 에폭시알킬 또는 알케닐 기로부터, 대안적으로, 각각의 경우에 기당 1 내지 10개의 탄소 원자를 갖는, 알킬, 아미노알킬, 폴리아미노알킬, 또는 에폭시알킬 기, 또는 각각의 경우에 기당 2 내지 10개의 탄소 원자를 갖는 알케닐 기로부터 선택되는 지방족 유기 기로부터 선택되거나, 또는 방향족 아릴 기, 대안적으로 6 내지 20개의 탄소 원자를 갖는 방향족 아릴 기이다. 소정의 실시 형태에서, 각각의 R은 개별적으로 메틸, 에틸, 옥틸, 비닐, 알릴 및 페닐 기로부터 선택된다.

[0047] 각각의 R^1은 개별적으로 X; 알킬 기, 대안적으로 1 내지 10개의 탄소 원자를 갖는 알킬 기; 알케닐 기, 대안적으로 2 내지 10개의 탄소 원자를 갖는 알케닐 기; 및 방향족 기, 대안적으로 6 내지 20개의 탄소 원자를 갖는 방향족 기로 이루어진 군으로부터 선택된다. 소정의 실시 형태에서, 각각의 R^1은 개별적으로 메틸, 에틸, 옥틸, 트라이플루오로프로필, 비닐 및 페닐 기로부터 선택된다. 일부 R^1 기는 전술한 바와 같은 말단 기를 가질 수 있는 중합체 골격으로부터의 실록산 분지일 수 있음이 가능하다. 구체적인 실시 형태에서, 각각의 R^1은 메틸 기이다.

[0048] 실록산 중합체 (a)의 각각의 X 기는 동일하거나 상이할 수 있으며, 하이드록실 기 또는 축합성 또는 가수분해성 기일 수 있다. 용어 "가수분해성 기"는 규소에 부착된 임의의 기를 의미하는데, 이 기는 실온에서 물에 의해 가수분해된다. 가수분해성 기 X는 화학식 -OT의 기를 포함하며, 여기서 T는 알킬 기, 예를 들어 메틸, 에틸, 아이소프로필, 또는 옥타데실; 알케닐 기, 예를 들어 알릴, 헥세닐; 환형 기, 예를 들어 사이클로헥실, 페닐, 벤질, 또는 베타-페닐에틸; 탄화수소 에테르 기, 예를 들어 2-메톡시에틸, 2-에톡시아이소프로필, 2-부톡시아이소부틸, p-메톡시페닐 또는 $-(CH_2CH_2O)_2CH_3$; 또는 임의의 N,N-아미노 라디칼, 예를 들어 다이메틸아미노, 다이에틸아미노, 에틸메틸아미노, 다이페닐아미노, 또는 다이사이클로헥실아미노이다.

[0049] 소정의 실시 형태에서, 각각의 X 기는 하이드록실 기 또는 알콕시 기로부터 선택된다. 예시적인 알콕시 기는 메톡시, 에톡시, 프로폭시, 아이소프로폭시, 부톡시, 아이소부톡시, 펜톡시, 헥속시 옥타데실옥시 및 2-에틸헥속시; 및 다이알콕시 라디칼, 예를 들어 메톡시메톡시 또는 에톡시메톡시 및 알콕시아릴옥시, 예를 들어 에톡시페녹시이다. 구체적인 실시 형태에서, 각각의 X 기는 메톡시 기 또는 에톡시 기로부터 선택된다.

[0050] 각각의 Z는 독립적으로 1개 내지 10개의 탄소 원자를 갖는 알킬렌 기로부터 선택된다. 하나의 대안에서, 각각의 Z는 독립적으로 2 내지 6개의 탄소 원자를 갖는 알킬렌 기로부터 선택되고; 추가의 대안에서, 각각의 Z는 독립적으로 2 내지 4개의 탄소 원자를 갖는 알킬렌 기로부터 선택된다.

[0051] 베이스 성분의 실록산 중합체 (a)는 화학식 1로 표시되는 단일 실록산일 수 있거나, 전술한 화학식으로 표시되는 실록산들의 혼합물일 수 있다. 베이스 성분의 성분 (a)와 관련하여 용어 "실록산 중합체 혼합물"은 임의의 개별 실록산 중합체 (a) 또는 실록산 중합체 (a)들의 혼합물을 포함하는 것을 의미한다. 본 명세서에 사용되는 바와 같이, 용어 "실리콘 함량"은, 공급원과 관계없이, 실록산 중합체 (a), 중합체 혼합물, 및/또는 수지를 포함하지만 이로 한정되지 않는, 베이스 성분 및 촉매 패키지에 사용되는 실리콘의 총량을 의미한다.

[0052] 중합도(DP)(즉, 상기 화학식에서 실질적으로 하첨자 z)는 보통 실리콘의 거대분자 또는 중합체 또는 올리고머 분자 내의 단량체 단위의 수로서 정의된다. 합성 중합체는 상이한 중합도 및 따라서 상이한 분자량을 갖는 거대분자 화학종들의 혼합물로 변함없이 이루어진다. 상이한 실험에서 측정될 수 있는, 상이한 유형의 평균 중합체 분자량이 있다. 2가지 가장 중요한 것은 수 평균 분자량(Mn) 및 중량 평균 분자량(Mw)이다. 실리콘 중합체의 Mn 및 Mw는 겔 투과 크로마토그래피(GPC)에 의해 약 10 내지 15%의 정밀도로 결정될 수 있다. 이 기술은 표준이며 Mw, Mn 및 다분산 지수(PI)를 산출한다. 중합도(DP) = Mn/Mu이고, 여기서 Mn은 GPC 측정에 의한 수 평

균 분자량이고, Mu는 단량체 단위의 분자량이다. PI = Mw/Mn. DP는 Mw를 통해 중합체의 점도와 연관되고, DP가 높을수록 점도가 더 높다. 다양한 실시 형태에서, 실록산 중합체 (a)는 베이스 성분의 약 20 내지 약 80 중량%, 대안적으로 약 35 내지 약 65 중량%의 양으로 존재한다.

[0053] 베이스 성분 보강 충전제 (b)는 예를 들어, 쌀겨 회분(rice hull ash)을 비롯하여 침전 탄산칼슘, 고 표면적 건식 실리카 및/또는 고 표면적 침강 실리카와 같은 하나 이상의 미분된 보강 충전제를 함유할 수 있다. 전형적으로, 보강 충전제 (b)의 표면적은 50 ㎡/g 이상이다. 고 표면적 건식 실리카 및/또는 고 표면적 침강 실리카의 경우에, 이들은 BET 방법에 따라 측정되는 표면적이, 예를 들어 100 내지 400 ㎡/g, 대안적으로 100 내지 300 ㎡/g일 수 있다. 다양한 실시 형태에서, 보강 충전제는 베이스 성분의 약 20 내지 약 70 중량%, 대안적으로 약 35 내지 약 65 중량%의 양으로 존재한다.

[0054] 베이스 성분의 선택적인 비-보강 충전제 (c)는 분쇄 탄산칼슘, 파쇄 석영, 규조토, 황산바륨, 산화철, 이산화티타늄 및 카본 블랙, 활석, 규회석과 같은 비-보강 충전제를 포함할 수 있다. 단독으로 또는 상기에 더하여 사용될 수 있는 다른 충전제에는 알루미나이트, 황산칼슘(경석고), 석고, 황산칼슘, 탄산마그네슘, 점토, 예컨대 카올린, 삼수산화알루미늄, 수산화마그네슘(수활석), 흑연, 탄산구리, 예컨대 공작석, 탄산니켈, 예컨대 자라카이트(zarachite), 탄산바륨, 예컨대 독중석 및/또는 탄산스트론튬, 예컨대 스트론티아나이트;

[0055] 산화알루미늄, 감람석군; 석류석군; 알루미노실리케이트; 고리 실리케이트; 사슬 실리케이트; 및 시트 실리케이트로 이루어진 군으로부터의 실리케이트가 포함된다. 감람석군은 고토감람석 및 Mg_2SiO_4와 같은 그러나 이로 한정되지 않는 실리케이트 광물을 포함한다. 석류석군은 홍석류석; $Mg_3Al_2Si_3O_{12}$; 회반석류석; 및 $Ca_2Al_2Si_3O_{12}$와 같은 그러나 이로 한정되지 않는 분쇄 실리케이트 광물을 포함한다. 알루미노실리케이트는 규선석; Al_2SiO_5; 멀라이트; $3Al_2O_3.2SiO_2$; 남정석; 및 Al_2SiO_5와 같은 그러나 이로 한정되지 않는 분쇄 실리케이트 광물을 포함한다.

[0056] 고리 실리케이트 군은 근청석 및 $Al_3(Mg,Fe)_2[Si_4AlO_{18}]$과 같은 그러나 이로 한정되지 않는 실리케이트 광물을 포함한다. 사슬 실리케이트 군은 규회석 및 $Ca[SiO_3]$과 같은 그러나 이로 한정되지 않는 분쇄 실리케이트 광물을 포함한다.

[0057] 시트 실리케이트 군은 운모; $K_2AI_{14}[Si_6Al_2O_{20}](OH)_4$; 엽랍석; $Al_4[Si_8O_{20}](OH)_4$; 활석; $Mg_6[Si_8O_{20}](OH)_4$; 사문석, 예를 들어, 석면; 고령석; $Al_4[Si_4O_{10}](OH)_8$; 및 질석과 같은 그러나 이로 한정되지 않는 실리케이트 광물을 포함한다. 선택적인 비-보강 충전제가 이용되는 다양한 실시 형태에서, 비-보강 충전제는 베이스 성분의 20 중량% 이하의 양으로 존재한다.

[0058] 또한, 예를 들어 지방산 또는 지방산 에스테르, 예를 들어 스테아레이트에 의해, 또는 유기실란, 유기실록산 또는 유기실라잔 헥사알킬 다이실라잔 또는 단쇄 실록산 다이올에 의해 베이스 성분의 보강 충전제 (b) 및 베이스 성분의 선택적인 비-보강 충전제 (c)의 표면 처리가 수행되어 충전제(들)를 소수성으로 만들고, 따라서 취급이 더 용이해지게 할 수 있으며 다른 밀봉제 성분을 갖는 균질 혼합물을 수득할 수 있다. 충전제의 표면 처리는 베이스 성분의 실록산 중합체 (a)에 의해 충전제가 용이하게 습윤화되게 한다. 이러한 표면 개질된 충전제는 뭉쳐지지(clump) 않으며, 베이스 성분의 실리콘 중합체 (i) 내에 균질하게 포함될 수 있다. 이는 미경화 조성물의 실온에서의 기계적 특성의 개선을 가져온다. 충전제는 전처리될 수 있거나, 또는 중합체 (a)와 혼합될 때 원위치에서 처리될 수 있다.

[0059] **촉매 패키지**

[0060] 본 발명의 촉매 패키지는 저장 동안 최소한의 상분리를 가지며 종종 상분리를 갖지 않는 것으로 밝혀졌다.

[0061] 전술한 바와 같이, 2-파트 조성물의 촉매 패키지는 베이스 성분(즉, 상기 중합체 (a)) 내의 임의의 반응성 중합체와 비반응성인 폴리다이알킬실록산 (i)을 포함한다. 폴리다이알킬실록산 (i)은 하기 일반 화학식을 가질 수 있다:

[0062] [화학식 2]

[0063] R^3_3-Si-O-$((R^2)_2SiO)_d$-Si-R^3_3

[0064] 상기 식에서, 각각의 R^2는 동일하거나 상이할 수 있으며 알킬 기 또는 페닐 기, 대안적으로 C_{1-10} 알킬 기, 대안

적으로 C_{1-6} 알킬 기, 대안적으로 메틸 또는 에틸 기이고; 각각의 R^3은 동일하거나 상이할 수 있으며 상기 R^2 또는 알케닐 또는 알키닐 기로부터 선택된다. 전형적으로, 폴리다이알킬실록산 (i)은 점도가 25℃에서 약 5 내지 약 100,000 mPa·s이며, 이때 d는 명시된 점도 범위 내의 폴리다이알킬실록산을 생성하도록 하는 정수이다. 전형적으로, 이는 조성물의 실록산 중합체와 비반응성인 폴리다이메틸실록산, 예를 들어, 각각의 R^2가 메틸 기이고 각각의 R^3이 예를 들어 메틸, 비닐 또는 페닐이거나, 이들 R^3 기의 조합인 폴리다이메틸실록산이다. 전형적으로, 폴리다이알킬실록산 (i)은 선형이지만 소정 정도의 분지를 함유할 수 있다. 중합체 (a)와 비반응성인 폴리다이알킬실록산 (i)은 전형적으로 담체로서 촉매 패키지 내에 존재한다. 다양한 실시 형태에서, 폴리다이알킬실록산 (i)은 촉매 패키지의 약 30 내지 약 80 중량%, 대안적으로 약 40 내지 약 65 중량%의 양으로 존재한다.

[0065] 2-파트 조성물의 촉매 패키지는 또한 하나 이상의 다이포달 실란 (ii)를 함유한다. 촉매 패키지의 다이포달 실란은 하기 화학식에 의해 정의될 수 있다:

[0066] $(R^4O)_m(Y^1)_{3-m}-Si(CH_2)_x-((NHCH_2CH_2)_t-Q(CH_2)_x)_n-Si(OR^4)_m(Y^1)_{3-m}$

[0067] 상기 식에서, 각각의 R^4는 C_{1-10} 알킬 기이고, 각각의 Y^1은 1 내지 8개의 탄소를 함유하는 알킬 기이고, Q는 고립 전자쌍을 갖는 헤테로원자를 함유하는 화학 기, 대안적으로 아민 또는 우레아이고; 각각의 x는 1 내지 6의 정수이고, t는 0 또는 1이고, 각각의 m은 독립적으로 1, 2 또는 3, 대안적으로 2 또는 3이고, 추가의 대안에서 m은 3이고, n은 0 또는 1, 대안적으로 1이다.

[0068] 한 가지 대안에서, 촉매 패키지는 하기 화학식에 의해 정의될 수 있다:

[0069] $(R^4O)_m(Y^1)_{3-m}-Si(CH_2)_x-(NHCH_2CH_2)_t-Q(CH_2)_x-Si(OR^4)_m(Y^1)_{3-m}$ (즉 n = 1인 경우).

[0070] 하나의 대안에서, Q는 2차 아민이고 각각의 x는 2 내지 4이다.

[0071] 다이포달 실란 (ii)의 예에는

[0072] 비스(트라이메톡시실릴)헥산, 1,2-비스(트라이에톡시실릴)에탄, 1,2-비스(트라이메톡시실릴)에탄,

[0073] 비스(트라이알콕시실릴알킬)아민, 비스(다이알콕시알킬실릴알킬)아민,

[0074] 비스(트라이알콕시실릴알킬) N-알킬아민, 비스(다이알콕시알킬실릴알킬) N-알킬아민,

[0075] 비스(트라이알콕시실릴알킬)우레아, 및/또는 비스(다이알콕시알킬실릴알킬)우레아가 포함된다.

[0076] 다이포달 실란 (ii)의 구체적인 적합한 예에는

[0077] 비스(3-트라이메톡시실릴프로필)아민, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민,

[0078] 비스(4-트라이메톡시실릴부틸)아민, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸)아민,

[0079] 비스(3-트라이메톡시실릴프로필) N-메틸아민, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필) N-메틸아민,

[0080] 비스(4-트라이메톡시실릴부틸) N-메틸아민, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸) N-메틸아민,

[0081] 비스(3-트라이메톡시실릴프로필)우레아, 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)우레아,

[0082] 비스(4-트라이메톡시실릴부틸)우레아, 비스(4-트라이에톡시실릴부틸)우레아,

[0083] 비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필)아민, 비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필)아민,

[0084] 비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸)아민, 비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸)아민,

[0085] 비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필) N-메틸아민,

[0086] 비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필) N-메틸아민,

[0087] 비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸) N-메틸아민,

[0088] 비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸) N-메틸아민, 비스(3-다이메톡시메틸실릴프로필)우레아,

[0089] 비스(3-다이에톡시메틸실릴프로필)우레아, 비스(4-다이메톡시메틸실릴부틸)우레아,

[0090] 비스(4-다이에톡시메틸실릴부틸)우레아, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필)아민,

[0091] 비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필)아민, 비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸)아민,

[0092] 비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸)아민, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필) N-메틸아민,

[0093] 비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필) N-메틸아민,

[0094] 비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸) N-메틸아민,

[0095] 비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸) N-메틸아민, 비스(3-다이메톡시에틸실릴프로필)우레아,

[0096] 비스(3-다이에톡시에틸실릴프로필)우레아, 비스(4-다이메톡시에틸실릴부틸)우레아, 및/또는

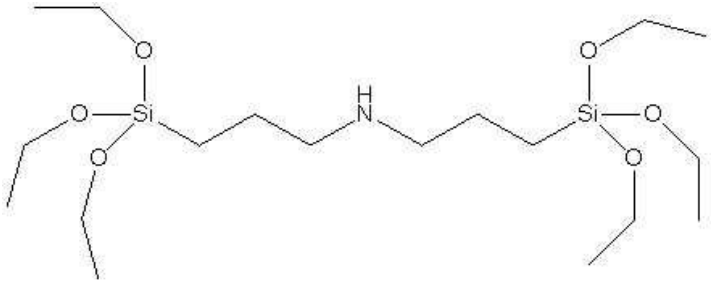
[0097] 비스(4-다이에톡시에틸실릴부틸)우레아가 포함된다.

[0098] 또한 추가의 대안에서, 다이포달 실란 (ii)는 하기 화학식을 갖는다:

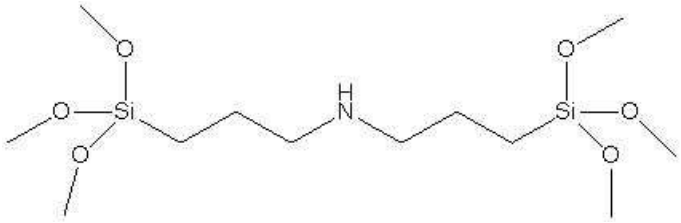
[0099] $(R^4O)_3\text{-}Si(CH_2)_x\text{-}(NHCH_2CH_2)_t\text{-}NH(CH_2)_x\text{-}Si(OR^4)_3$.

[0100] 이 경우, 다이포달 실란은 비스(트라이알콕시실릴알킬)아민, 예를 들어 비스(3-트라이프로필옥시실릴프로필)아민, 비스(3-메틸다이에톡시실릴프로필)아민,

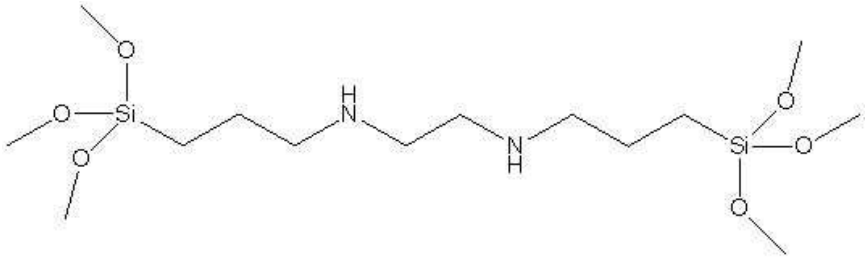
[0101] 비스(3-메틸다이메톡시실릴프로필)아민뿐만 아니라 비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민

[0102] 

[0103] 또는 비스(3-트라이메톡시실릴프로필)아민으로부터 선택될 수 있다.

[0104] 

[0105] 대안적으로, 다이포달 실란 (ii)는 비스(트라이알콕시실릴알킬) 알킬렌다이아민, 예를 들어 N,N'-비스[(3-트라이메톡시실릴)프로필]에틸렌다이아민일 수 있다.

[0106] 

[0107] 다이포달 실란 (ii)는 촉매 패키지 내의 폴리다이알킬실록산 (i)과 상용성이다.

[0108] 본 발명의 유형의 2-파트 조성물은 신속한 깊은 경화를 제공하며, 따라서 그러한 접착 촉진제는 경화 속도, 및 당연히 조성물이 도포되는 기재 표면에 대한 접착성을 보장하기 위해 그러한 조성물 내의 필수 성분이다. 접착

촉진제로서 상기의 기능을 잘 수행하는 것으로 확인되었을 뿐만 아니라 촉매 패키지의 다른 성분들과 더 상용성인 것으로 여겨지므로, 다른 아미노-작용성 접착 촉진제, 예를 들어, 비-다이포달 아민 작용성 접착 촉진제를 단독으로 사용하는 경우, 그러한 조성물에서 이전에 나타난 상분리의 회피를 위해 필수적인 이유이다. 다양한 실시 형태에서, 다이포달 실란 (ii)는 촉매 패키지의 약 5 내지 약 50 중량%, 대안적으로 약 10 내지 약 30 중량%의 양으로 존재한다.

[0109] 임의의 적합한 가교결합제가 촉매 패키지의 가교결합제 (iii)으로서 사용될 수 있다. 전술한 바와 같은 경화성 조성물 내의 가교결합제 (iii)은 규소-결합된 가수분해성 기, 예를 들어 아실옥시 기(예를 들어, 아세톡시, 옥타노일옥시, 및 벤조일옥시 기); 케톡시미노 기(예를 들어, 다이메틸 케톡시모, 및 아이소부틸케톡시미노); 알콕시 기(예를 들어, 메톡시, 에톡시, 아이소-부톡시 및 프로폭시); 및 알케닐옥시 기(예를 들어, 아이소프로페닐옥시 및 1-에틸-2-메틸비닐옥시)를 함유하는 하나 이상의 실란 또는 실록산일 수 있다.

[0110] 실록산계 가교결합제의 경우에, 분자 구조는 직쇄형, 분지형, 또는 환형일 수 있다.

[0111] 촉매 패키지의 가교결합제 (iii)은 바람직하게는 유기폴리실록산 중합체 (a) 내의 축합성 기와 반응성인, 분자당 3개 또는 4개 이상의 규소-결합된 축합성(바람직하게는, 하이드록실 및/또는 가수분해성) 기를 갖는다. 가교결합제가 실란인 경우 그리고 실란이 분자당 3개의 규소-결합된 가수분해성 기를 갖는 경우, 네 번째 기는 적합하게는 비-가수분해성 규소-결합된 유기 기이다. 이들 규소-결합된 유기 기는 적합하게는 불소 및 염소와 같은 할로겐으로 선택적으로 치환된 하이드로카르빌 기이다. 그러한 네 번째 기의 예에는 알킬 기(예를 들어, 메틸, 에틸, 프로필, 및 부틸); 사이클로알킬 기(예를 들어, 사이클로펜틸 및 사이클로헥실); 알케닐 기(예를 들어, 비닐 및 알릴); 아릴 기(예를 들어, 페닐 및 톨릴); 아르알킬 기(예를 들어, 2-페닐에틸) 및 전술한 유기 기 내의 수소 중 전부 또는 일부를 할로겐으로 대체하여 얻은 기가 포함된다. 그러나, 바람직하게는, 네 번째 규소-결합된 유기 기는 메틸이다.

[0112] 촉매 패키지의 가교결합제 (iii)으로서 사용될 수 있는 실란 및 실록산에는 알킬트라이알콕시실란, 예를 들어, 메틸트라이메톡시실란(MTM) 및 메틸트라이에톡시실란, 알케닐트라이알콕시 실란, 예를 들어, 비닐트라이메톡시실란 및 비닐트라이에톡시실란, 아이소부틸트라이메톡시실란(iBTM)이 포함된다. 다른 적합한 실란에는 에틸트라이메톡시실란, 비닐트라이에톡시실란, 페닐트라이메톡시실란, 알콕시트라이옥시모실란, 알케닐트라이옥시모실란, 3,3,3-트라이플루오로프로필트라이메톡시실란, 메틸트라이아세톡시실란, 비닐트라이아세톡시실란, 에틸 트라이아세톡시실란, 다이-부톡시 다이아세톡시실란, 페닐-트라이프로피온옥시실란, 메틸트리스(메틸에틸케톡시모)실란, 비닐-트리스-메틸에틸케톡시모)실란, 메틸트리스(메틸에틸케톡시미노)실란, 메틸트리스(아이소프로페녹시)실란, 비닐트리스(아이소프로페녹시)실란, 에틸폴리실리케이트, n-프로필오르토실리케이트, 테트라에틸오르토실리케이트, 테트라프로필오르토실리케이트, 테트라아밀오르토실리케이트, 및 다이메틸테트라아세톡시다이실록산이 포함된다.

[0113] 촉매 패키지의 가교결합제 (iii)으로서 사용되는 가교결합제는 또한 상기한 것들 중 둘 이상의 임의의 조합을 포함할 수 있다. 총 조성물에 존재하는 가교결합제의 양(즉, 베이스 성분 및 촉매 패키지가 함께 혼합된 때의 총 조성물)은 가교결합제의 특정 속성 및 특히 선택된 분자의 분자량에 따라 좌우될 것이다. 본 조성물은 적합하게는 전술된 실록산 중합체 (a)와 비교하여 적어도 화학량론적 양으로 가교결합제를 함유한다. 다양한 실시 형태에서, 가교결합제 (iii)은 촉매 패키지의 약 1 내지 약 30 중량%, 대안적으로 약 5 내지 약 25 중량%의 양으로 존재한다.

[0114] 촉매 패키지 내의 네 번째 필수 성분은, 베이스 성분과 촉매 패키지 성분을 함께 혼합한 후에 경화 반응을 위한 촉매로서 사용하기 위한 적합한 주석계 축합 촉매 (iv)이다. 예에는 주석 트라이플레이트, 유기 주석 금속 촉매, 예를 들어 트라이에틸주석 타르트레이트, 주석 옥토에이트, 주석 올레에이트, 주석 나프테이트, 부틸주석트라이-2-에틸헥소에이트, 주석 부티레이트, 카르보메톡시페닐 주석 트라이수베레이트, 아이소부틸주석트라이세로에이트, 및 다이오르가노주석 염, 특히 다이오르가노주석 다이카르복실레이트 화합물, 예를 들어 다이부틸주석 다이라우레이트, 다이메틸주석 다이부티레이트, 다이부틸주석 다이메톡사이드, 다이부틸주석 다이아세테이트, 다이메틸주석 비스네오데카노에이트, 다이부틸주석 다이벤조에이트, 제1주석 옥토에이트, 다이메틸주석 다이네오데카노에이트(DMTDN) 및 다이부틸주석 다이옥토에이트가 포함된다. 다양한 실시 형태에서, 주석 촉매는 촉매 패키지의 약 0.01 내지 약 3 중량%, 대안적으로 약 0.1 내지 약 0.5 중량%의 양으로 존재한다.

[0115] 선택적으로, 촉매 패키지는 또한 안료 (v) 및/또는 충전제 (vi) 중 하나 이상을 포함할 수 있다.

[0116] **안료**

[0117] 안료는 조성물을 필요한 대로 착색시키기 위해 이용된다. 임의의 적합한 안료가, 조성물과 상용성이라면, 이용될 수 있다. 2-파트 조성물에서, 안료 및/또는 착색(비-백색의) 충전제, 예를 들어 카본 블랙이 최종 봉지제 제품을 착색시키기 위해 촉매 패키지에 이용될 수 있다. 존재하는 경우, 카본 블랙은 충전제 및 착색제 둘 모두로서 기능할 것이다.

[0118] **충전제**

[0119] 베이스 성분에 사용되는 충전제 중 하나가 또한 적절한 것으로 간주되는 경우에/때에 촉매 패키지에 사용될 수 있다. 실리카, 예를 들어 건식 실리카 및/또는 탄산칼슘이 바람직하다. 충전제는 조성물의 두 파트의 혼합비에 따라 0 내지 약 50 중량%의 양으로 촉매 패키지에 존재할 수 있다.

[0120] 필요하다면, 다른 첨가제가 사용될 수 있다. 다른 첨가제에는 비-다이포달 접착 촉진제, 열 안정제, 난연제, UV 안정제, 경화 조절제, 전기 전도성 충전제, 열 전도성 충전제, 및 살진균제 및/또는 살생제 등이 포함될 수 있다.

[0121] **리올로지 조절제**

[0122] 본 발명에 따른 수분 경화성 조성물에 포함될 수 있는 리올로지 조절제에는 폴리에테르 또는 폴리에스테르의 폴리올을 기반으로 하는 유럽 특허 EP0802233호에 기재된 것과 같은 실리콘 유기 공중합체; 폴리에틸렌 글리콜, 폴리프로필렌 글리콜, 에톡실화 피마자유, 올레산 에톡실레이트, 알킬페놀 에톡실레이트, 에틸렌 옥사이드와 프로필렌 옥사이드의 공중합체, 및 실리콘 폴리에테르 공중합체로 이루어진 군으로부터 선택되는 비이온성 계면활성제뿐만 아니라; 실리콘 글리콜이 포함된다. 일부 시스템에서, 이들 리올로지 조절제, 특히 에틸렌 옥사이드와 프로필렌 옥사이드의 공중합체 및 실리콘 폴리에테르 공중합체는 기재, 특히 플라스틱 기재로의 밀봉제의 접착성을 향상시킬 수 있다.

[0123] **비-다이포달 접착 촉진제**

[0124] 본 발명에 따른 수분 경화성 조성물에 포함될 수 있는 비-다이포달 접착 촉진제의 예에는 알콕시실란, 예를 들어 (에틸렌다이아민프로필)트라이메톡시 실란, 아미노알킬알콕시실란, 예를 들어 감마-아미노프로필트라이에톡시실란 또는 감마-아미노프로필트라이메톡시실란, 에폭시알킬알콕시실란, 예를 들어 3-글리시독시프로필트라이메톡시실란 및 글리시독시프로필트라이에톡시실란, 메르캅토-알킬알콕시실란, 및 에틸렌다이아민과 실릴아크릴레이트의 반응 생성물이 포함된다. 규소 기를 함유하는 아이소시아누레이트, 예컨대 1,3,5-트리스(트라이알콕시실릴알킬) 아이소시아누레이트가 추가로 사용될 수 있다. 추가로 적합한 접착 촉진제는 에폭시알킬알콕시실란, 예컨대 3-글리시독시프로필트라이메톡시실란과 아미노-치환된 알콕시실란, 예컨대 3-아미노프로필트라이메톡시실란 및 선택적으로 알킬알콕시실란, 예컨대 메틸트라이메톡시실란의 반응 생성물이다. 전형적으로, 접착 촉진제는 접착성을 향상시키기 위해 소량으로, 예를 들어, 촉매 패키지의 10 중량% 이하로 사용될 수 있지만, 앞서 나타낸 바와 같이, 이들의 적어도 부분적인 대체가, 이러한 조성물에서 역사적으로 직면하게 되는 상분리 문제를 위해서뿐만 아니라 1차 아민계 접착 촉진제 화학종의 높은 로딩이 예를 들어 촉매 패키지에 사용되는 비반응성 실리콘의 랜덤 사슬 절단으로 인한 촉매 불안정성을 야기할 수 있기 때문에 유리하다.

[0125] **살생제**

[0126] 살생제는, 필요한 경우, 조성물에 추가적으로 사용될 수 있다. 용어 "살생제"는 살균제, 살진균제 및 살조제 등을 포함하는 것으로 의도된다. 본 명세서에 기재된 바와 같이 조성물에 이용될 수 있는 유용한 살생제의 적합한 예에는, 예를 들어 하기가 포함된다:

[0127] 카르바메이트, 예컨대 메틸-N-벤즈이미다졸-2-일카르바메이트 (카르벤다짐) 및 다른 적합한 카르바메이트, 10,10'-옥시비스페녹사르신, 2-(4-티아졸릴)-벤즈이미다졸,

[0128] N-(플루오로다이클로로메틸티오)프탈이미드, 다이요오도메틸 p-톨릴 설폰, 적절한 경우, UV 안정제와의 조합, 예컨대 2,6-다이(tert-부틸)-p-크레졸, 3-요오도-2-프로피닐 부틸카르바메이트(IPBC), 아연 2-피리딘티올 1-옥사이드, 트라이아졸릴 화합물 및 아이소티아졸린온, 예컨대 4,5-다이클로로-2-(n-옥틸)-4-아이소티아졸린-3-온(DCOIT), 2-(n-옥틸)-4-아이소티아졸린-3-온(OIT) 및 n-부틸-1,2-벤즈아이소티아졸린-3-온(BBIT). 다른 살생제에는, 예를 들어 아연 피리딘티온, 1-(4-클로로페닐)-4,4-다이메틸-3-(1,2,4-트라이아졸-1-일메틸)펜탄-3-올 및/또는 1-[[2-(2,4-다이클로로페닐)-4-프로필-1,3-다이옥솔란-2-일] 메틸]-1H-1,2,4-트라이아졸이 포함될 수 있다.

[0129] 살진균제 및/또는 살생제는 적합하게는 조성물의 0 내지 약 0.3 중량%의 양으로 존재할 수 있고, 유럽 특허

EP2106418호에 기재된 바와 같이 필요한 경우 봉지된 형태로 존재할 수 있다.

[0130] 함께 혼합될 때, 베이스 성분과 촉매 패키지의 총 조성물은 대략적으로

[0131] 18 내지 72 중량%의 실록산 중합체 (a);

[0132] 18 내지 63 중량%의 보강 충전제 (b);

[0133] 0 내지 18 중량%의 비-보강 충전제 (c);

[0134] 0 내지 4.5 중량%의 저점도 중합체 (d);

[0135] 중합체 (a)와 비반응성인 3 내지 8 중량%의 폴리다이알킬실록산 (i);

[0136] 0.5 내지 5 중량%의 다이포달 실란 (ii);

[0137] 0 내지 3 중량%의 가교결합제 (iii); 및

[0138] 0 내지 0.3 중량%의 주석계 촉매 (iv)를 포함하며,

[0139] 조합된 조성물의 총 중량%는 100 중량%이다.

[0140] 2-파트 조성물의 경우, 베이스 성분은

[0141] 20 내지 80 중량%의 실록산 중합체 (a);

[0142] 20 내지 70 중량%의 보강 충전제 (b); 및

[0143] 0 내지 20 중량%의 비-보강 충전제 (c)를 포함하며;

[0144] 베이스 성분의 총 중량%는 100 중량%이다.

[0145] 촉매 패키지는

[0146] 중합체 (a)와 비반응성인 30 내지 80 중량%의 폴리다이알킬실록산 (i), 대안적으로 중합체 (a)와 비반응성인 40 내지 65 중량%의 폴리다이알킬실록산 (i);

[0147] 5 내지 50 중량%의 다이포달 실란 (ii), 대안적으로 15 내지 30 중량%의 다이포달 실란 (ii);

[0148] 1 내지 30 중량%의 가교결합제 (iii), 대안적으로 2 내지 20 중량%의 가교결합제 (iii); 및

[0149] 0 내지 3 중량%의 주석계 촉매; 대안적으로 0.1 내지 3 중량%의 주석계 촉매, 대안적으로 0.1 내지 0.5 중량%의 주석계 촉매;

[0150] 0 내지 30 중량%의 착색 충전제(예를 들어, 카본 블랙) 또는 안료, 대안적으로 존재하는 경우 1 내지 20 중량%의 착색 충전제;

[0151] 0 내지 20 중량%의 보강 충전제, 대안적으로 1 내지 10 중량%의 보강 충전제를 포함하며;

[0152] 촉매 패키지의 총 중량%는 100 중량%이다.

[0153] 2-파트 밀봉제 조성물의 경우, 각 파트의 성분들은 위에서 주어진 범위 내의 양으로 함께 혼합되고, 이어서 두 파트가 함께 혼합될 때, 베이스 성분 및 촉매 패키지는 미리 결정된 비, 예를 들어 15:1 내지 1:1, 대안적으로 15:1 내지 5:1로 상호 혼합된다. 베이스 성분:촉매 패키지의 의도된 혼합비가 15:1 이상인 경우, 어떠한 충전제도 일반적으로 촉매 패키지에 사용되지 않을 것이다. 그러나, 베이스 성분:촉매 패키지의 의도된 혼합비가 15:1 미만인 경우, 촉매 패키지의 최대 50 중량%(의도된 비가 1:1인 경우)까지 증가된 양의 충전제가 촉매 패키지에 사용될 것이다. 수분 경화성 조성물은 임의의 적합한 혼합 장비를 사용하여 성분들을 혼합함으로써 제조될 수 있다.

[0154] 생성되는 조성물은, 예를 들어, 유리, 알루미늄, 스테인리스 강, 페인팅된 금속, 분말-코팅된 금속 등과 같은 기재와 함께 사용하기 위한 코팅, 코킹(caulking), 금형 제조 및 봉지 재료로서 다양한 응용에 사용될 수 있다. 특히, 이는 건축 및/또는 구조 글레이징 및/또는 단열 글레이징 응용에 사용하기 위한 것이다. 예를 들어, 각각의 경우에 전술한 바와 같은 실리콘 밀봉제 조성물로 밀봉되는, 단열 유리 유닛 및/또는 건물 파사드 (façade) 요소, 예컨대 섀도 박스(shadow box) 및/또는 구조 글레이징 유닛 및/또는 가스 충전 단열 건축 패

널. 다른 잠재적인 응용에는 태양광, 자동차, 전자기기 및 산업적 조립 및 유지보수 응용이 포함된다.

[0155] 하기 실시예는 본 명세서에 제공된 바와 같은 촉매 패키지가 최소의 상분리로 장기간 동안 저장/에이징될 수 있음을 보여주기 위해 제공된다.

[0156] 언급된 모든 점도는 중합체 점도에 따라 속도를 조정하여 40,000 mPa·s 이하의 점도에 대해 콘 플레이트 CP-52를 사용하고 40,000 mPa·s 초과의 점도를 갖는 재료에 대해 콘 플레이트 CP-41을 사용하는 브룩필드(등록상표) 콘 플레이트 점도계(RV DIII)를 사용하여 측정되었다. 모든 양은 달리 언급되지 않는 한 중량 퍼센트(중량%) 단위이다.

[0157] **실시예 1**

[0158] 다이포달 실란 접착 촉진제를 사용하는 전술된 바와 같은 2-파트 조성물의 촉매 패키지(실시예 1) 및 표준의(종래 기술의) 접착 촉진제를 사용하는 비교용 시판 촉매 패키지 다우 코닝(Dow Corning)(등록상표) 983 SGS 경화제(비교예 1)에서의 상분리의 비교

[0159] [표 1a]

	실시예 1 (중량%)
트라이알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산 (25℃에서 60,000 mPa·s)	46.9
카본 블랙	16.75
건식 실리카	3.35
비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민	16.401
테트라에틸 오르토실리케이트	16.401
DMTDN (촉매)	0.198

[0160]

[0161] 실시예 1을 10 리터 투렐로(Turello) 혼합기 내에서 제조하였다. 하기 공정을 사용한다:

[0162] 단계 (i): 알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산(25℃에서 60,000 mPa·s)을 먼저 혼합기에 도입하였다.

[0163] 단계 (ii): 카본 블랙을 첨가하고 수 분 동안 알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산 중에 혼합하였다.

[0164] 단계 (iii): 이어서, 실리카를 첨가하고 단계 (ii)의 생성물 중에 혼합하였다.

[0165] 단계 (iv): 이어서, 단계 (iii)의 생성물을 완전 진공이 적용된 채로 2000 rpm의 속도로 추가 10분 동안 혼합하였다.

[0166] 단계 (v): 이어서, 단계 (iv)의 조성물을 실온으로 냉각한 후, 각각의 실란 및 촉매를 단계 (iv)의 생성물 중에 도입하고 혼합하였다.

[0167] 실시예 1은, 일단 베이스 성분과 혼합되면, 2-파트 조성물의 경화를 달성하는 것과 관련하여 잘 작용하는 것으로 밝혀졌다. 물리적 특성을 시험하기 위한 경화물을 제조하기 위해 실시예 1 및 비교예 1 둘 모두와 사용되는 베이스 성분은 다우 코닝으로부터의 시판 베이스 성분(다우 코닝(등록상표) 983 실리콘 글레이징(Silicone Glazing) 및 커튼월 베이스(Curtainwall Base))이었다.

[0168] 플라스-팩(Plas-Pak) 공압 건(gun) 및 레이시오-팩(Ratio-Pak)(등록상표) 8:1 카트리지를 사용하여 베이스 성분과 각각의 촉매 패키지를 혼합하였다. 카트리지를 건 상에 장착한 후에, 캡을 제거하고 플런저를 전진시켜, 경화제와 베이스 둘 모두가 노즐로부터 유동하게 하였다. 36-요소 정적 혼합기를 부착하였고, 혼합된 재료에서 줄무늬(streak)가 관찰되지 않을 때까지 재료를 압출하였다. 일단 균일한 혼합이 달성되면, 시험 샘플을 제조하였다. 모든 재료를 대략 97 psi(668.8 ㎪)에서 압출하였다.

[0169] 이어서, 생성된 실시예 1의 촉매 패키지를 5 갤런 통(pail)에 넣고 실온에서 1년의 기간 동안 에이징되게 두었다. 마찬가지로, 비교예 1의 기성품 샘플을 동일한 방식으로 에이징하였다. 5 갤런 통에서 1년 실온 저장 후에, 실시예 1은 2 ㎜ 미만의 분리를 나타내었다. 2개월의 실온 저장 후에, 비교예 1은 최대 40 ㎜의 상분리를 나타내었다. 이들 값은 자(ruler)로 측정하였다.

[0170] **실시예 2**

[0171] 전술된 바와 같은 다양한 촉매 패키지 샘플을 상기 실시예 1의 공정에 따라 제조하였다. 촉매 패키지에 이용한

조성물은 하기 표 2a에 정의된 바와 같았다:

[0172] [표 2a]

	샘플 1	샘플 2	샘플 3	샘플 4
트라이알킬-말단화된 다이오르가노폴리실록산 (25℃에서 60,000 mPa·s)	53.60	53.60	50.25	46.90
카본 블랙	9.38	9.38	13.07	16.75
건식 실리카	4.02	4.02	3.69	3.35
비스(3-트라이에톡시실릴프로필)아민	16.40	16.40	12.19	12.19
테트라에틸 오르토실리케이트(TEOS)	16.40	16.40	20.61	20.61
다이메틸주석 다이네오데카노에이트(DMTDN)	0.20	0.20	0.20	0.20

[0173]

[0174] 이어서, 하기 표 2b에 나타낸 바와 같이 경화 지속 시간 동안 QUV 가속 내후성 시험기 모델 QUV/se(QUV Accelerated Weathering Tester Model QUV/se)를 사용하여 상이한 샘플들을 에이징하였다. QUV 에이징은 0.89 방사조도(irradiance) 및 60℃에서 8시간 UVA, 이어서 50℃에서 4시간의 축합의 사이클이었다. 제2 시판 촉매 패키지 다우 코닝(등록상표) 982 경화제(비교예 2)를 또한 추가의 비교로서 에이징하였다.

[0175] 이들 촉매 패키지를 실시예 1에 대해 기재된 방식으로 에이징한 후에 다우 코닝(등록상표) 983 실리콘 글레이징 및 커튼월 베이스와 다시 상호 혼합하였고, 생성된 경화된 재료의 물리적 특성을 결정하였다. ASTM D412-98A(2002) e1 시험 방법 A에 따라 인장 강도 및 연신율을 시험하였다. 재료의 100 밀(2.54 mm) 슬래브를 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET) 상에 드로잉 다운하고, 실온 및 50% 상대 습도(RH)에서 7일 경화시켰다. 후경화 조건은 보고된 바와 같다. 다이 DIN S2를 사용하여 도그본(dogbone)을 절단하고, MTS 얼라이언스(ALLIANCE) R/5에서 5 kN 로드 셀을 사용하여 20.0 인치/분(0.01 ms^{-1})으로 당겼다. 데이터를 수집하고, 테스트 웍스 엘리트(Test Works Elite) v. 2.3.6을 사용하여 분석하였다.

[0176] 쇼어(Shore)(등록상표) 컨벨로더(Conveloader) CV-71200 타입 A에서 듀로미터(durometer)를 측정하였다. 샘플들을 1-2"(1.27 mm) 두께로 적층하였고, 보고된 값은 3회의 평균이다.

[0177] [표 2b]

쇼어 듀로미터 A

	듀로미터 쇼어 A (7 일)	듀로미터 쇼어 A (10,000 시간 QUV)
샘플 1	37	35
샘플 2	39	38
샘플 3	38	34
샘플 4	41	36
비교예 2	37	42
비교예 1	39	29

[0178]

[0179] 다이포달 샘플들(샘플 1 내지 샘플 4)의 듀로미터는 QUV 에이징 후에 안정하게 유지되었다. 이러한 에이징 시험 후에 약간 더 낮은 듀로미터를 나타낼 것으로 예상될 것이다. 비교예 2(다우 코닝(등록상표) 982 실리콘 절연 유리 밀봉제)는 실제로는 듀로미터가 증가하는데, 이는 어느 정도의 움직임이 바람직한 현장 응용에서 문제가 될 수 있다. 다우 코닝(등록상표) 983 SGS 경화제(비교예 1)는 다이포달 실시예들보다 듀로미터가 훨씬 더 저하되며 가수분해적으로 덜 안정한 것으로 보인다.

[0180] [표 2c]

인장 강도

	인장 강도 (PSI) (7 일)	인장 강도 (PSI) (10,000 시간 QUV)
샘플 1	354.5	290.7
샘플 2	330.3	297.3
샘플 3	348.6	292.4
샘플 4	311	233.5
비교예 2	282.2	143.8
비교예 1	301.1	193.5

[0181]

[0182] 다이포달 실시예들은 QUV 에이징 후에 비교예 1 및 비교예 2 둘 모두보다 가수분해적으로 더 안정함을 나타내는 더 높은 인장 강도를 유지하였다.

[0183] [표 2d]

연신율

	연신율 (%) (7 일)	연신율 (%) (10,000 시간 QUV)
샘플 1	440.206	353.932
샘플 2	355.63	381.351
샘플 3	389.814	449.018
샘플 4	276.907	321.498
비교예 2	311.655	168.159
비교예 1	383.428	407.317

[0184]

[0185] [표 2e]

50% 모듈러스

	50% 모듈러스 (7 일)	50% 모듈러스 (10,000 시간 QUV)
샘플 1	66.34	65.272
샘플 2	70.957	66.563
샘플 3	69.562	59.729
샘플 4	84.738	64.938
비교예 2	63.585	74.609
비교예 1	71.696	51.373

[0186]

[0187] 다이포달 실시예들(실시예 1 내지 실시예 4)의 모듈러스는 QUV 에이징 후에 안정하게 유지되었다. 이러한 에이징 시험 후에 약간 더 낮은 모듈러스를 나타낼 것으로 예상될 것이다. 비교예 2는 실제로는 모듈러스가 증가하는데, 이는 어느 정도의 움직임이 바람직한 현장 응용에서 문제가 될 수 있다. 비교예 1은 다이포달 실시예들보다 모듈러스가 다소 더 저하되며 가수분해적으로 덜 안정한 것으로 보인다.

[0188] [표 2f]

100% 모듈러스

	100% 모듈러스 (7 일)	100% 모듈러스 (10,000 시간 QUV)
샘플 1	107.832	105.304
샘플 2	117.521	104.811
샘플 3	115.762	92.207
샘플 4	138.408	102.467
비교예 2	108.645	112.185
비교예 1	112.702	75.724

[0189]

[0190] 실시예들의 QUV 내구성은 비교예 1과 동등하며, 비교예 2의 단점인, 현저한 열화도 모듈러스의 증가도 없다.

[0191] 용어 "포함하는" 또는 "포함하다"는 본 명세서에서 "구비한", "구비하다", "본질적으로 이루어지다(이루어진)" 및 "이루어지다(이루어진)"의 개념을 의미하고 포괄하기 위해 가장 넓은 의미로 사용된다. 예시적인 예를 열거하기 위한 "예를 들어", "예를 들면", "~와 같은" 및 "비롯한"의 사용은 단지 열거된 예들로만 제한되지 않는다. 따라서, "예를 들어" 또는 "~와 같은"은 "예를 들어, 그러나 이에 한정되지 않는" 또는 "~와 같은, 그러나 이에 한정되지 않는"을 의미하고, 다른 유사하거나 동등한 예를 포함한다. 본 명세서에 사용되는 바와 같이, 용어 "약"은 기기 분석으로 측정되거나 샘플 취급의 결과로서의 수치 값의 작은 변화(minor variation)를 합리적으로 포함하거나 설명하는 역할을 한다. 이러한 작은 변화는 ±(0 내지 25), ±(0 내지 10), ±(0 내지 5) 또는 ±(0 내지 2.5)%의 수치 값 정도일 수 있다. 추가로, 용어 "약"은 값의 범위와 관련될 때 모든 수치 값에 적용된다. 더욱이, 용어 "약"은 심지어 분명하게 언급되지 않는 경우에도 수치 값에 적용될 수 있다.

[0192] 일반적으로, 본 명세서에 사용되는 바와 같이 값들의 범위에서 하이픈 "-" 또는 대시 "-"는 "~ 내지 ~" 또는 "~부터 ~까지"이고; ">"는 "초과" 또는 "보다 큰"이고; "≥"는 "이상" 또는 "크거나 같은"이고; "<"는 "미만" 또는 "보다 작은"이고; "≤"는 "이하" 또는 "작거나 같은"이다. 개별 기준에 따라, 전술한 특허 출원, 특허 및/또는 특허 출원 공개의 각각은 하나 이상의 비제한적인 실시 형태에서 전체적으로 본 명세서에 참고로 명백하게 포함된다.

[0193] 첨부된 청구범위는 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용에 기재된 명확하고 특정한 화합물, 조성물 또는 방법에 한정되지 않으며, 이들은 첨부된 청구범위의 범주 내에 속하는 특정 실시 형태들 사이에서 변화될 수 있음이 이해되어야 한다. 다양한 실시 형태의 특정 특징 또는 태양을 기술함에 있어서 본 명세서에서 필요로 하는 임의

의 마쿠쉬 군(Markush group)과 관련하여, 상이한, 특별한, 및/또는 예기치 않은 결과가 개별 마쿠쉬 군의 각각의 구성원으로부터 모든 다른 마쿠쉬 구성원들과는 독립적으로 얻어질 수 있음이 인식되어야 한다. 마쿠쉬 군의 각각의 구성원은 개별적으로 및/또는 조합적으로 필요로 하게 될 수 있으며, 첨부된 청구범위의 범주 내의 특정 실시 형태에 대한 적절한 지지를 제공한다.

[0194] 또한, 본 발명의 다양한 실시 형태를 기술함에 있어서 필요로 하는 임의의 범위 및 하위 범위는 첨부된 청구범위의 범주 내에 독립적으로 그리고 집합적으로 속하고, 모든 범위 - 본 명세서에 명시적으로 기재되어 있지 않더라도 상기 범위 내의 정수 및/또는 분수 값을 포함함 - 를 기술하고 고려하는 것으로 여겨짐이 이해되어야 한다. 당업자는 열거된 범위 및 하위 범위가 본 발명의 다양한 실시 형태를 충분히 기술하고 가능하게 하며, 그러한 범위 및 하위 범위는 관련된 절반, 1/3, 1/4, 1/5 등으로 추가로 세분될 수 있음을 용이하게 인식한다. 단지 한 예로서, "0.1 내지 0.9의" 범위는 아래쪽의 1/3, 즉 0.1 내지 0.3, 중간의 1/3, 즉 0.4 내지 0.6, 및 위쪽의 1/3, 즉 0.7 내지 0.9로 추가로 세분될 수 있으며, 이는 첨부된 청구범위의 범주 내에 개별적으로 및 집합적으로 속하며, 개별적으로 및/또는 집합적으로 필요로 하게 될 수 있으며, 첨부된 청구범위의 범주 내의 구체적인 실시 형태에 대한 적절한 지지를 제공할 수 있다. 또한, 범위를 한정하거나 수식하는 언어, 예를 들어 "이상", "초과", "미만", "이하" 등과 관련하여, 그러한 언어는 하위 범위 및/또는 상한 또는 하한을 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 다른 예로서, "10 이상"의 범위는 본질적으로 10 이상 내지 35의 하위 범위, 10 이상 내지 25의 하위 범위, 25 내지 35의 하위 범위 등을 포함하며, 각각의 하위 범위는 개별적으로 및/또는 집합적으로 필요로 하게 될 수 있으며, 첨부된 청구범위의 범주 내의 구체적인 실시 형태에 대한 적절한 지지를 제공할 수 있다. 마지막으로, 개시된 범위 내의 개별 수치가 필요로 하게 될 수 있으며, 이는 첨부된 청구범위의 범주 내의 특정 실시 형태에 대한 적절한 지지를 제공한다. 예를 들어, "1 내지 9의" 범위는 다양한 개별 정수, 예컨대 3뿐만 아니라 소수점 (또는 분수)을 포함하는 개별 수치, 예컨대 4.1을 포함하는데, 이들은 필요로 하게 될 수 있으며, 첨부된 청구범위의 범주 내의 특정 실시 형태에 대한 적절한 지지를 제공할 수 있다.

[0195] 본 발명은 본 명세서에서 예시적인 방식으로 설명되었으며, 사용된 용어는 본질적으로 제한보다는 설명의 관점이고자 하는 것으로 이해되어야 한다. 상기 교시 내용에 비추어 본 발명의 많은 변경 및 변형이 가능하다. 본 발명은 첨부된 청구범위의 범주 내에 구체적으로 기술된 것과 달리 실시될 수 있다. 독립항과 종속항, 즉 단일 인용 종속항 및 다중 인용 종속항 둘 모두의 모든 조합의 발명의 요지가 본 명세서에서 명백하게 고려된다.