



(12) Translation of  
European patent specification

(11) NO/EP 3280766 B1

NORWAY

(19) NO  
(51) Int Cl.  
*C08L 9/06 (2006.01)*  
*B60C 1/00 (2006.01)*  
*C07F 7/10 (2006.01)*  
*C08F 12/26 (2006.01)*  
*C08F 212/14 (2006.01)*  
*C08F 236/10 (2006.01)*

**Norwegian Industrial Property Office**

---

(21) Translation Published 2019.01.21

(80) Date of The European Patent Office Publication of the Granted Patent 2018.08.15

(86) European Application Nr. 16719032.1

(86) European Filing Date 2016.04.08

(87) The European Application's Publication Date 2018.02.14

(30) Priority 2015.04.10, EP, 15461525

(84) Designated Contracting States: AL ; AT ; BE ; BG ; CH ; CY ; CZ ; DE ; DK ; EE ; ES ; FI ; FR ; GB ; GR ; HR ; HU ; IE ; IS ; IT ; LI ; LT ; LU ; LV ; MC ; MK ; MT ; NL ; NO ; PL ; PT ; RO ; RS ; SE ; SI ; SK ; SM ; TR

Designated Extension States: BA

Designated Validation States: MA

(73) Proprietor Synthos S.A., ul. Chemików 1, 32-600 Oswiecim, Polen

(72) Inventor JANOWSKI, Bartlomiej, ul. Wielopolska 42/6, PL-39-200 Debica, Polen  
ROGOZA, Jaroslaw, Kryspinow 422, 32-060 Kryspinow, Polen  
KOZAK, Radoslaw, ul. Gwarecka 17/7, PL-41-500 Chorzow, Polen  
WEDA, Pawel, ul. Szttygarska 3a/3, 44-193 Knurow, Polen  
ROBAK, Barbara, Jasna 14A/30, PL-44-122 Gliwice, Polen

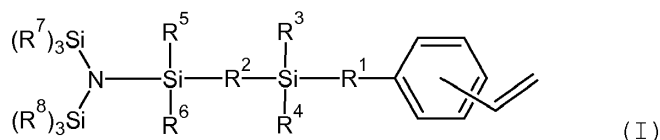
(74) Agent or Attorney TANDBERG INNOVATION AS, Postboks 1570 Vika, 0118 OSLO, Norge

---

(54) Title **ELASTOMERIC COPOLYMERS BASED ON [BIS(TRIHYDROCARBYLSILYL)AMINOSILYL]-FUNCTIONALIZED STYRENE AND THEIR USE IN THE PREPARATION OF RUBBERS**

(56) References Cited: US-A1- 2007 123 631, US-A- 4 894 409, US-A1- 2009 023 861, JP-A- 2004 059 781, EP-A1- 2 772 515

Enclosed is a translation of the patent claims in Norwegian. Please note that as per the Norwegian Patents Acts, section 66i the patent will receive protection in Norway only as far as there is agreement between the translation and the language of the application/patent granted at the EPO. In matters concerning the validity of the patent, language of the application/patent granted at the EPO will be used as the basis for the decision. The patent documents published by the EPO are available through Espacenet (<http://worldwide.espacenet.com>) or via the search engine on our website here: <https://search.patentstyret.no/>

**Patentkrav**5 **1.** Anvendelse av et styrenderivat med formel (I)

hvor  $R^1$  og  $R^2$  kan være like eller forskjellige og representerer et element valgt fra gruppen som består av:

- (a) en enkeltbinding;
- 10 b)  $-(CH_2)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12;
- c)  $-(CH_2CH_2Y)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $Y$  kan uavhengig være oksygen eller svovel;
- d)  $-CH_2-(CH_2CH_2Y)_n-CH_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $Y$  kan uavhengig være oksygen eller svovel;
- 15 e)  $-(CH_2CH_2NR)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- f)  $-CH_2-(CH_2CH_2NR)_n-CH_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller
- 20 en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- g)  $-(CH_2SiR_2)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- h)  $-CH_2-(CH_2SiR_2)_n-CH_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- 25 i)  $-(OSiR_2)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer; og
- 30 j)  $-CH_2-(OSiR_2)_n-CH_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- hvor  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  og  $R^6$  kan være like eller forskjellige og representerer en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra
- 35 6 til 10 karbonatomer; og

$R^7$  og  $R^8$  kan være like eller forskjellige og hver  $R^7$  og  $R^8$  uavhengig representerer en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer, i fremstillingen av en elastomer kopolymer.

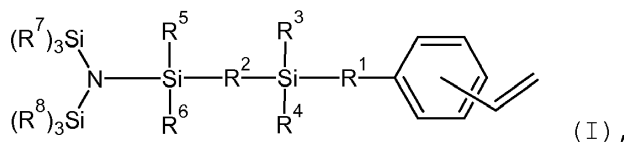
5

**2.** Anvendelsen ifølge krav 1, hvori kopolymeren omfatter, i tillegg til enheter avledet fra styrenderivatet med formel (I), enheter avledet fra en eller flere dienmonomerer og eventuelt en eller flere vinylaromatiske monomerer, fortrinnsvis hvori dienmonomerer er en konjugert dienmonomer.

10

**3.** Fremgangsmåte for fremstilling av en elastomer kopolymer som omfatter å utsette

- en eller flere dienmonomerer,
- eventuelt en eller flere vinylaromatiske monomerer, og
- en eller flere styrenderivater med formel (I)



15

hvor  $R^1$  og  $R^2$  kan være like eller forskjellige og representerer et element valgt fra gruppen som består av:

(a) en enkeltbinding;

b)  $-(\text{CH}_2)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12;

20 c)  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Y})_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $Y$  kan uavhengig være oksygen eller svovel;

d)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Y})_n-\text{CH}_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $Y$  kan uavhengig være oksygen eller svovel;

e)  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NR})_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig

25 representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

f)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NR})_n-\text{CH}_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

30 g)  $-(\text{CH}_2\text{SiR}_2)_n-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

h)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{SiR}_2)_n-\text{CH}_2-$ , hvori  $n$  representerer et heltall fra 1 til 12, og  $R$  kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller

35 aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

i)  $-(\text{OSiR}_2)_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer; og

5 j)  $-\text{CH}_2-(\text{OSiR}_2)_n-\text{CH}_2-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

hvori  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  og  $\text{R}^6$  kan være like eller forskjellige og representerer en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer; og

10  $\text{R}^7$  og  $\text{R}^8$  kan være like eller forskjellige og hver  $\text{R}^7$  og  $\text{R}^8$  uavhengig representerer en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer,

for anioniske polymerisasjonsforhold,

fortrinnsvis hvori polymerisasjonen er satsvis eller kontinuerlig.

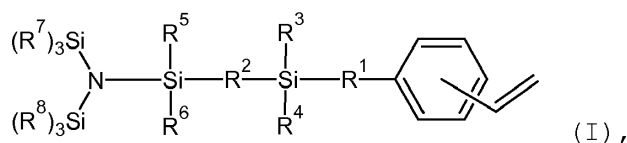
15

**4.** Elastomer kopolymer som omfatter repeterende enheter som avledes fra

A) 20 til 99,95 vekt-% av kopolymeren, av en eller flere dienmonomerer;

B) 0 til 60 vekt-% av kopolymeren, av en eller flere vinylaromatiske monomerer; og

C) 0,05 til 50 vekt-% av kopolymeren, av en eller flere styrenderivatet med formel (I)



hvori  $\text{R}^1$  og  $\text{R}^2$  kan være like eller forskjellige og representerer et element valgt fra gruppen som består av:

(a) en enkeltbinding;

b)  $-(\text{CH}_2)_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12;

25 c)  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Y})_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og Y kan uavhengig være oksygen eller svovel;

d)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Y})_n-\text{CH}_2-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og Y kan uavhengig være oksygen eller svovel;

e)  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NR})_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig

30 representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

f)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NR})_n-\text{CH}_2-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;

- g)  $-(\text{CH}_2\text{SiR}_2)_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- 5 h)  $-\text{CH}_2-(\text{CH}_2\text{SiR}_2)_n-\text{CH}_2-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- i)  $-(\text{OSiR}_2)_n-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer; og
- 10 j)  $-\text{CH}_2-(\text{OSiR}_2)_n-\text{CH}_2-$ , hvori n representerer et heltall fra 1 til 12, og R kan uavhengig representere en alkylgruppe som inneholder fra 1 til ca. 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer;
- hvori  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  og  $\text{R}^6$  kan være like eller forskjellige og representerer en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra
- 15 6 til 10 karbonatomer; og
- $\text{R}^7$  og  $\text{R}^8$  kan være like eller forskjellige og hver  $\text{R}^7$  og  $\text{R}^8$  representerer uavhengig en alkylgruppe som inneholder fra 1 til 10 karbonatomer, eller en aryl- eller aralkylgruppe som inneholder fra 6 til 10 karbonatomer.

20 **5.** Den elastomere kopolymeren ifølge krav 4, hvori dienmonomeren er en konjugert dienmonomer, fortrinnsvis hvori den konjugerte dienmonomeren er valgt fra 1,3-butadien, isopren, 1,3-pentadien, 2,3-dimetyl-1,3-butadien, 2-metyl-1,3-pentadien, 2,3-dimetyl-1,3-pentadien, 2-fenyl-1,3-butadien og 4,5-dietyl-1,3-oktadien,

25 mer foretrukket hvori den konjugerte dienmonomeren er valgt fra 1,3-butadien og isopren, særlig hvori den konjugerte dienmonomeren er 1,3-butadien.

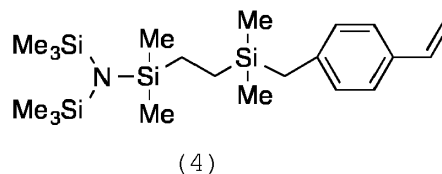
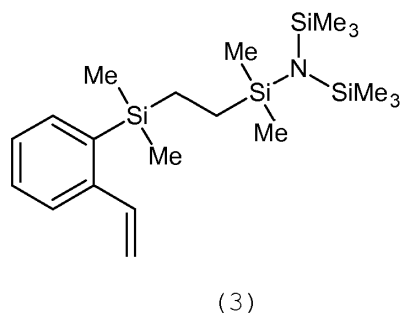
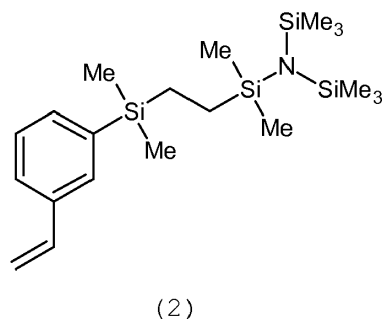
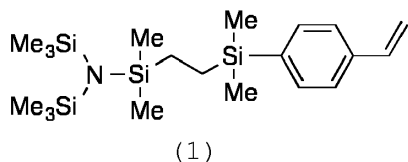
**6.** Den elastomere kopolymeren ifølge krav 5, hvori mengden av A) konjugert(e) dienmonomer(er) er 40 til 90 vekt-% av kopolymeren, fortrinnsvis 50 til 90 vekt-% av kopolymeren, særlig 60 til 90 vekt-% av vekten av kopolymeren.

**7.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 6, hvori den vinylaromatiske monomeren er valgt fra styren, 1-vinylnaftalen, 3-metylstyren, 3,5-dietylstyren, 4-propylstyren, 2,4,6-trimetylstyren, 4-dodecylstyren, 3-metyl-5-n-  
35 heksylstyren, 4-fenylstyren, 2-etyl-4-benzylstyren, 3,5-difenylstyren, 2,3,4,5-tetraetylstyren, 3-etyl-1-vinylnaftalen, 6-isopropyl-1-vinylnaftalen, 6-sykloheksyl-1-vinylnaftalen, 7-dodecyl-2-vinylnaftalen og  $\alpha$ -metylstyren,

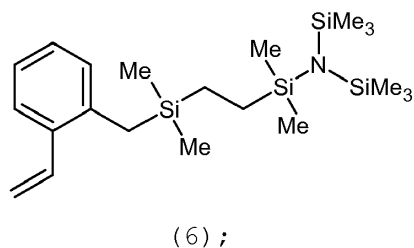
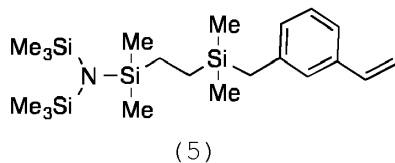
fortrinnsvis hvori den vinylaromatiske monomeren er valgt fra styren, 3-metylstyren og  $\alpha$ -metylstyren,  
særlig hvori den vinylaromatiske monomeren er styren.

5 **8.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 7, hvori mengden av B) vinylaromatiske monomere er 10 til 60 vekt-% av kopolymeren, fortrinnsvis 10 til 50 vekt-% av kopolymeren, særlig 20 til 50 vekt-% av kopolymeren.

10 **9.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 8, hvori  $R^2$  til styrenderivatet med formel (I) er  $(CH_2)_2$ ;  
fortrinnsvis hvori styrenderivatet er valgt fra en hvilken som helst av formlene (1), (2), (3), (4), (5) og (6),



15



mer foretrukket hvori styrenderivatet med formel (I) er valgt fra en hvilken som helst av formlene (1), (2), (4), og (5);

20 mest foretrukket hvori styrenderivatet med formel (I) er valgt fra en hvilken som helst av formlene (1), (4) og (5).

**10.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 9, hvori mengden av C) er 0,05 til 50 vekt-% av kopolymeren, fortrinnsvis 0,2 til 10 vekt-% av kopolymeren, særlig 0,5 til 2 vekt-% av kopolymeren.

5 **11.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 10, hvori kopolymeren omfatter enheter som har en stjernestruktur og fremstilles ved reaksjon mellom metallterminert levende lineær kopolymer og ett eller flere koblingsmidler.

**12.** Den elastomere kopolymeren ifølge krav 11, hvori koblingsmidlet er et  
10 tinnhalogenidkoblingsmiddel,  
fortrinnsvis hvori tinnhalogenidkoblingsmidlet er tinntetraklorid.

**13.** Kopolymeren ifølge krav 11, hvori koblingsmidlet er et  
silisiumhalogenidkoblingsmiddel,  
15 fortrinnsvis hvori silisiumhalogenidkoblingsmidlet er valgt blant silisiumtetraklorid,  
silisiumtetrabromid, silisiumtetrafluorid, silisiumtetrajodid, heksaklordisilan,  
heksabromdisilan, heksafluordisilan, heksajoddisilan, oktaklortrisilan, oktabromtrisilan,  
oktafluortrisilan, oktajodtrisilan, heksaklordisiloksan, 2,2,4,4,6,6-heksaklor-2,4,6-  
trisilaheptan, 1,2,3,4,5,6-heksakis-[2-(metyldiklorsilyl)etyl]benzen, og  
20 alkylsilisiumhalogenider med den generelle formelen (III)

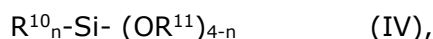


25 hvori  $R^9$  er en enverdig alifatisk hydrokarbongruppe som har 1 til 20 karbonatomer eller  
en enverdig aromatisk hydrokarbongruppe som har 6 til 18 karbonatomer; n er et heltall  
fra 0 til 2; og X kan være et klor-, brom-, fluor- eller jodatom.

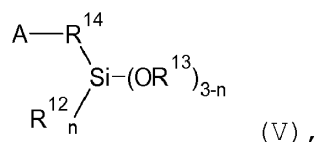
**14.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 11 til 13, hvori  
30 fraksjonen av enheter som har stjernestruktur er mellom 15 og 75 vekt-% av  
kopolymeren.

**15.** Den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 14, hvori én  
eller flere rester reaktive mot silisiumoverflaten er til stede,  
fortrinnsvis hvori delen avledes fra enheter med generell formel (IV) eller (V)

35







hvori, i generell formel (IV), er  $\text{R}^{10}$  og  $\text{R}^{11}$  uavhengig en enverdig alifatisk hydrokarbongruppe som har 1 til 20 karbonatomer eller en enverdig aromatisk hydrokarbongruppe som har 6 til 18 karbonatomer;  $n$  er et heltall på 0 til 2; når det er en flerhet av  $\text{OR}^{11}$ s, kan flerheten av  $\text{OR}^{11}$ s være lik eller forskjellig fra hverandre; og det er intet aktivt proton i molekylet, og

hvori, i generell formel (V), er A en enverdig gruppe som har minst én funksjonell gruppe valgt blant gruppen som består av epoksy, tioepoksy, isocyanat, imin, syklisk tertiær amin, asyklisk tertiær amin, pyridin, silazan og disulfid;  $\text{R}^{14}$  er en enkeltbinding eller en divalent hydrokarbongruppe;  $\text{R}^{12}$  og  $\text{R}^{13}$  er hver uavhengig en enverdig alifatisk hydrokarbongruppe som har 1 til 20 karbonatomer eller en enverdig aromatisk hydrokarbongruppe som har 6 til 18 karbonatomer;  $b$  er et heltall på 0 til 2; når det er en flerhet av  $\text{OR}^{13}$ s, kan flerheten av  $\text{OR}^{13}$ s være det samme eller forskjellig fra hverandre; og det er intet aktivt proton i molekylet.

**16.** Fremgangsmåte for fremstilling av en gummi som omfatter vulkanisering av den elastomere kopolymeren ifølge et hvilket som helst av kravene 4 til 15 i nærvær av ett eller flere vulkaniseringsmidler.

20

**17.** Gummi som oppnåelig ifølge fremgangsmåten ifølge krav 16.

**18.** Gummisammensetning som omfatter x) en gummikomponent som omfatter gummien ifølge krav 17.

25

**19.** Gummisammensetningen ifølge krav 18, som videre omfatter y) ett eller flere fyllstoffer,

fortrinnsvis hvori fyllstoffet er valgt blant gruppen som består av silisium og Carbon black,

fortrinnsvis hvori gummisammensetningen omfatter y) både silisium og Carbon black.

**20.** Gummisammensetningen ifølge krav 19, hvori mengden av fyllstoffkomponent y) er 10 til 150 vektdeler i forhold til 100 vektdeler av gummikomponenten x) (phr), fortrinnsvis hvori mengden av komponent y) er 20 til 140 phr, mer foretrukket hvori mengden av komponent y) er 30 til 130 phr.

35

**21.** Gummisammensetningen ifølge et hvilket som helst av kravene 18 til 20, hvori gummikomponenten x) også omfatter en eller flere ytterligere gummiiformige polymerer.

5 **22.** Gummisammensetningen ifølge krav 21, hvori den ytterligere gummiaktige polymeren er valgt fra gruppen som består av naturgummi, syntetisk isoprengummi, butadiengummi, styren-butadiengummi, etylen- $\alpha$ -olefin-kopolymergummi, etylen- $\alpha$ -olefin-dienkopolymergummi, akrylonitril-butadienkopolymergummi, klorprengummi og halogenert butylgummi.

10 **23.** Dekkkomponent som omfatter gummisammensetningen ifølge krav 22, fortrinnsvis hvori dekkkomponenten er den delen av dekket som slites.

**24.** Dekk som omfatter dekkkomponenten ifølge krav 23.