(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年5月6日(06.05.2021)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2021/085103 A1

(51) 国際特許分類:
C08K 9/06 (2006.01) *C08L 101/02* (2006.01)
C08L 83/07 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2020/038514

(22) 国際出願日： 2020年10月12日(12.10.2020)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2019-197901 2019年10月30日(30.10.2019) JP

(71) 出願人:株式会社スリーボンド(**THREEBOND CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ Tokyo (JP).

(72) 発明者: 橋本 卓宏 (**HASHIMOTO Takahiro**); 〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ 株式会社スリーボンド内 Tokyo (JP). 曽我 哲徳 (**SOGA Tetsunori**); 〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ 株式会社スリーボンド内 Tokyo (JP).

(74) 代理人:田中 伸一郎，外 (**TANAKA Shinichiro et al.**); 〒1008355 東京都千代田区丸の内３丁目３番１号 新東京ビル 中村合同特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) Title: RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称： 樹脂組成物

(57) Abstract: The present invention relates to a curable resin composition, etc., having excellent applyability and workability. Specifically, the present invention relates to a resin composition, etc., that includes (A) a polymer having two or more alkenyl groups, (B) one or more base polymers selected from the group consisting of polyorganosiloxanes having a hydroxyl group bonded to a silicon atom, (C) silica powder surface treated by an alkyl silane, and (D) a compound including one or more elements selected from the group consisting of boron, phosphorus, sulfur, and nitrogen.

(57) 要約：本発明は、塗布性、作業性に優れた硬化性樹脂組成物等に関する。具体的には、（A）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（B）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、（C）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び（D）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む化合物、を含む樹脂組成物等に関する。

WO 2021/085103 A1

明　細　書

発明の名称 ： 樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、塗布性、作業性に優れた樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 接着剤やシール剤、コーティング剤などは塗布する際の作業性を良くするために、粘度やチクソ性の調整が一般的に行われている。なかでも、チクソ性を上げて、垂直面への塗布を可能にし、必要以上の範囲に樹脂が流れ込んで不具合が起きることを防止するために流れ性を調整することは接着剤やシール剤を使用する上で必要不可欠な技術である。このチクソ性を上げる一般的な手法としては、充填剤を接着剤やシール剤に添加する方法や、ベースとなるバインダー樹脂と相溶性の悪い化合物を接着剤やシール剤に添加してベースとなる樹脂と化学的に反発を引き起こし、チクソ性を発現させる方法などの各種手法がとられている（特許文献１）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１５－０１０１３１号公報

発明の概要

[0004] しかしながら、従来の充填剤を入れる方法では、充填剤含有量の増加に伴い粘度が上昇することから、充填剤の含有量が一定量を超えるとディスペンサーでの吐出が困難になる問題や、スクリーン印刷において目詰まりの原因となるなど作業性を著しく低下させてしまう問題があった。また、ベースとなるバインダー樹脂と相溶性の悪い化合物を添加し、チクソ性を向上させる方法では、塗布後の樹脂が時間の経過と共にブリードアウトを起こしてしまい硬化不良を招くなどの問題があった。

[0005] 本発明者らは、上記目的を達成するべく鋭意検討した結果、粘度の上昇を抑え、チクソ性を効果的に付与することで、塗布性、作業性に優れた樹脂組成

物を得る手法を見出し、本発明に至った。なお、チクソ性とは、揺変性やチクソトロピック特性とも呼ばれ、チクソ性がよいほど、塗料を塗布する際のような高剪断速度状態では低粘度となるが、塗布後のような低剪断速度状態では高粘度となり、塗布後の塗料が下方に流れてくる（たれてくる）ことなく、適切な塗布を完了できることとなる。

[0006] 本願発明は次の〔１〕～〔１３〕のいずれかであり得る。〔１〕～〔１３〕に記載された具体的な各要素を適宜組み合わせたものも本願発明の範囲内である。

〔１〕

（Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む化合物、

を含む樹脂組成物。

〔２〕

前記（Ｄ）成分が、酸または酸エステル化合物である、前記〔１〕に記載の樹脂組成物。

〔３〕

前記（Ｄ）成分が、ホウ酸、ホウ酸エステル、リン酸、リン酸エステル、硫酸、及び硝酸からなる群から選択される、前記〔１〕に記載の樹脂組成物。

〔４〕

前記（Ｃ）成分のシリカ粉が、フュームドシリカ粉である、前記〔１〕～〔３〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔５〕

前記（Ｃ）成分が、オクチルシランにより表面処理されたシリカ粉である、前記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔６〕

前記（Ａ）成分が、アルケニル基を２以上有するビニル系重合体（Ａ－１）もしくはアルケニル基を２以上有するポリオルガノシロキサン（Ａ－２）である、前記〔１〕～〔５〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔７〕

前記（Ｃ）成分対前記（Ｄ）成分の質量比が、９：１～１：９である、前記〔１〕～〔６〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔８〕

前記〔１〕～〔７〕のいずれかに記載の樹脂組成物と、架橋剤と、硬化触媒とを含む、硬化性樹脂組成物。

〔９〕

前記〔８〕に記載の硬化性樹脂組成物を硬化させてなる硬化物。

〔１０〕

前記〔８〕に記載の硬化性樹脂組成物を含む、接着剤。

〔１１〕

前記〔８〕に記載の硬化性樹脂組成物を含む、シール剤。

〔１２〕

（Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む酸、及びその誘導体からなる群から選択される１種以上の化合物、

を混合する、樹脂組成物の製造方法。

〔１３〕

（Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以

上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む酸、及びその誘導体からなる群から選択される１種以上の化合物、

を混合して樹脂組成物を製造する工程、

前記樹脂組成物に、架橋剤及び硬化触媒を混合する工程、及び

（Ａ）成分をベースポリマーとする場合、硬化温度を３０～３００℃とする条件下、（Ｂ）成分をベースポリマーとする場合、水蒸気の存在下、硬化温度を１０～５０℃とする条件下、前記樹脂組成物を硬化して硬化物を製造する工程、

を含む、硬化物の製造方法。

[0007] 本発明の樹脂組成物は、粘度を上げずにチクソ性を調整でき、経時でのブリードアウトがなく、塗布後の形状保持性に優れているため、塗布性、作業性の向上に非常に有用である。

発明を実施するための形態

[0008] 本発明の詳細を次に説明する。なお、以下で例示する好ましい態様やより好ましい態様等は、「好ましい」や「より好ましい」等の表現にかかわらず適宜相互に組み合わせて使用することができる。また、数値範囲の記載は例示であって、「好ましい」や「より好ましい」等の表現にかかわらず各範囲の上限と下限並びに実施例の数値とを適宜組み合わせた範囲も好ましく使用することができる。さらに、「含有する」又は「含む」等の用語は、適宜「本質的になる」や「のみからなる」と読み替えてもよい。

[0009] ＜樹脂組成物＞

本発明の態様の一つは、（Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む酸、及びその誘導体からなる群から選択される１種以上の化合物、

を含む樹脂組成物である。

[0010] ［（Ａ）成分］

本発明で使用される前記（Ａ）成分はベースポリマーであり、樹脂組成物の特性を発揮する主要な成分であり、バインダーとしての特性を有する場合はベースバインダーとも呼ばれる。（Ａ）成分はアルケニル基を２以上有する重合体であり、主鎖を構成する重合体分子の末端または分子鎖にアルケニル基が２以上付属・結合したものであり得る。

（Ａ）成分を構成する重合体の主鎖は特に限定されず、各種の主鎖を使用することができる。汎用性の観点から、重合体の主鎖がビニル系共重合体またはポリオルガノシロキサンである場合が好ましく、かかる場合、前記（Ａ）成分は、それぞれ、アルケニル基を２以上有するビニル系共重合体（Ａ－１）、及びアルケニル基を２以上有するポリオルガノシロキサン（Ａ－２）となり得る。前記主鎖を構成する重合体の数平均分子量は、例えば５００～１，０００，０００の範囲、好ましくは１０００～１００，０００が適当である。なお、特に断らない限り、本明細書において数平均分子量は、サイズ排除クロマトグラフィー（ＳＥＣ）を用いた標準ポリスチレン換算法により算出される。（Ａ－１）成分の２５℃における粘度は、例えば０．０３Ｐａ・ｓ～１５００Ｐａ・ｓが好ましく、より好ましくは０．０５Ｐａ・ｓ～１００Ｐａ・ｓであり、特に好ましくは０．３Ｐａ・ｓ～８００Ｐａ・ｓである。特に断らない限り、本明細書における粘度の試験方法はＪＩＳ　Ｚ　８８０３に準拠する。（Ａ）成分のアルケニル基含有量は、例えば０．０１ｍｍｏｌ／ｇ～５ｍｍｏｌ／ｇであり得、好ましくは、０．０５ｍｍｏｌ／ｇ～１ｍｍｏｌ／ｇの範囲が適当である。

[0011] （Ａ）成分を構成するアルケニル基としては、それぞれ独立して、一般式（Ｉ）：$R^2R^3C=C(R^1)-$で表される二重結合を少なくとも１つ有する１価

の基であり、式（Ｉ）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、及びＲ[3]は、それぞれ独立して水素又は炭素数１～２０の有機基であり得る。炭素数１～２０の有機基としては特に限定されないが、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数６～２０のアリール基、炭素数７～２０のアラルキル基が好ましく、具体的には以下のような基：－（ＣＨ$_2$）$_n$－ＣＨ$_3$、－ＣＨ（ＣＨ$_3$）－（ＣＨ$_2$）$_n$－ＣＨ$_3$、－ＣＨ（ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）－（ＣＨ$_2$）$_n$－ＣＨ$_3$、－ＣＨ（ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）$_2$、－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－（ＣＨ$_2$）$_n$－ＣＨ$_3$、－Ｃ（ＣＨ$_3$）（ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）－（ＣＨ$_2$）$_n$－ＣＨ$_3$、－Ｃ$_6$Ｈ$_5$、－Ｃ$_6$Ｈ$_4$（ＣＨ$_3$）、－Ｃ$_6$Ｈ$_3$（ＣＨ$_3$）$_2$、－（ＣＨ$_2$）$_n$－Ｃ$_6$Ｈ$_5$、－（ＣＨ$_2$）$_n$－Ｃ$_6$Ｈ$_4$（ＣＨ$_3$）、－（ＣＨ$_2$）$_n$－Ｃ$_6$Ｈ$_3$（ＣＨ$_3$）$_2$（ｎは０以上、１以上、３以上、又は５以上の整数で、各基の合計炭素数は２０以下、１８以下、１５以下、又は１０以下）が例示される。これらの基では、Ｒ[1]としては水素又はメチル基が、Ｒ[2]及びＲ[3]としては水素がより好ましい。

（Ａ）成分を構成するアルケニル基の数は２つ以上であるが、好ましくは重合体分子の両末端に１つずつアルケニル基が存在することが好ましい。

[0012] （Ａ－１）成分の主鎖を構成する共重合体の構成単位となるビニル系モノマーとしては特に限定されず、各種のモノマーを用いることができる。例示するならば、当該モノマーとしては、（メタ）アクリル酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸－ｎ－プロピル、（メタ）アクリル酸イソプロピル、（メタ）アクリル酸－ｎ－ブチル、（メタ）アクリル酸イソブチル、（メタ）アクリル酸－ｔｅｒｔ－ブチル、（メタ）アクリル酸－ｎ－ペンチル、（メタ）アクリル酸－ｎ－ヘキシル、（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、（メタ）アクリル酸－ｎ－ヘプチル、（メタ）アクリル酸－ｎ－オクチル、（メタ）アクリル酸－２－エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸ノニル、（メタ）アクリル酸デシル、（メタ）アクリル酸ドデシル、（メタ）アクリル酸フェニル、（メタ）アクリル酸トルイル、（メタ）アクリル酸ベンジル、（メタ）アクリル酸－２－メトキシエチル、（メタ）アクリル酸－３－メトキシブチル、（メタ）アクリル酸－２－ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸－２－アミノエチル、γ－（メタク

リロイルオキシプロピル）トリメトキシシラン、（メタ）アクリル酸のエチレンオキサイド付加物、（メタ）アクリル酸トリフルオロメチルメチル、（メタ）アクリル酸２－トリフルオロメチルエチル、（メタ）アクリル酸－２－パーフルオロエチルエチル、（メタ）アクリル酸－２－パーフルオロエチルメチル、（メタ）アクリル酸－２－パーフルオロヘキシルエチル、（メタ）アクリル酸－２－パーフルオロデシルエチル、及び（メタ）アクリル酸－２－パーフルオロヘキサデシルエチル等の（メタ）アクリル酸系モノマー；スチレン、ビニルトルエン、α－メチルスチレン、クロルスチレン、スチレンスルホン酸及びその塩等のスチレン系モノマー；パーフルオロエチレン、パーフルオロプロピレン、及びフッ素ビニリデン等のフッ素含有ビニルモノマー；ビニルトリメトキシシラン、及びビニルトリエトキシシラン等のケイ素含有ビニル系モノマー；無水マレイン酸、マレイン酸、及びマレイン酸のモノアルキルエステル及びジアルキルエステル；フマル酸、及びフマル酸のモノアルキルエステル及びジアルキルエステル；マレイミド、メチルマレイミド、オクチルマレイミド、ドデシルマレイミド、ステアリルマレイミド、フェニルマレイミド、及びシクロヘキシルマレイミド等のマレイミド系モノマー；アクリロニトリル、及びメタクリロニトリル等のニトリル基含有ビニル系モノマー；アクリルアミド、及びメタクリルアミド等のアミド基含有ビニル系モノマー；酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、ピバリン酸ビニル、安息香酸ビニル、及び桂皮酸ビニル等のビニルエステル類；エチレン、及びプロピレン等のアルケン類；ブタジエン、及びイソプレン等の共役ジエン類；塩化ビニル、塩化ビニリデン、塩化アリル、及びアリルアルコール等が挙げられる。これらは、単独で用いても良いし、複数を共重合させても構わない。なかでも、生成物の物性等から、スチレン系モノマー及び（メタ）アクリル酸系モノマーが好ましい。より好ましくは、アクリル酸エステルモノマー及びメタクリル酸エステルモノマーであり、特に好ましくはアクリル酸エステルモノマーであり、最も好ましくは、アクリル酸ブチルである。本発明においては、上記モノマーを他のモノマーと共重合、更にはブロック共重合さ

せても構わなく、その際は、上記モノマーが質量比で例えば４０％以上、好ましくは５０％以上、より好ましくは６０％以上、さらに好ましくは７０％以上含まれていることが好ましい。なお上記表現形式で例えば（メタ）アクリル酸とは、アクリル酸および／あるいはメタクリル酸を表す。

[0013] 本発明のビニル系重合体（（Ａ－１）成分の主鎖を構成する重合体）の数平均分子量は５００以上１，０００，０００未満の範囲であり、１０００以上１００，０００未満がさらに好ましい。分子量５００以上であれば、硬化物におけるヒドロシリル結合の存在量が適度なため、ビニル系重合体の本来の特性が発現されやすく、また、１，０００，０００未満であれば、ディスペンス塗布がしにくいなど取扱いが困難になることがない。

[0014] ビニル系重合体は種々の重合法により得ることができ、その方法は特に限定されないが、モノマーの汎用性、制御の容易性の観点からラジカル重合法が好ましい。ラジカル重合の中でも制御ラジカル重合が好ましく、リビングラジカル重合がより好ましく、原子移動ラジカル重合が特に好ましい。

[0015] 本発明の（Ａ－１）成分が有するアルケニル基は、後述する架橋剤とヒドロシリル反応するものが好ましく、一般式（ＩＩ）：$H_2C=C(R^4)-$で表されるものであることが好ましい。

上記（ＩＩ）式において、R^4は水素又は炭素数１～２０の有機基である。炭素数１～２０の有機基としては特に限定されないが、炭素数１～２０のアルキル基、炭素数６～２０のアリール基、炭素数７～２０のアラルキル基が好ましく、具体的には以下のような基が例示される。$-(CH_2)_n-CH_3$、$-CH(CH_3)-(CH_2)_n-CH_3$、$-CH(CH_2CH_3)-(CH_2)_n-CH_3$、$-CH(CH_2CH_3)_2$、$-C(CH_3)_2-(CH_2)_n-CH_3$、$-C(CH_3)(CH_2CH_3)-(CH_2)_n-CH_3$、$-C_6H_5$、$-C_6H_4(CH_3)$、$-C_6H_3(CH_3)_2$、$-(CH_2)_n-C_6H_5$、$-(CH_2)_n-C_6H_4(CH_3)$、$-(CH_2)_n-C_6H_3(CH_3)_2$（ｎは０以上、１以上、３以上、又は５以上の整数で、各基の合計炭素数は２０以下、１８以下、１５以下、又は１０以下）これらの内では、R^4としては水素又はメチル基がより好ましい。

[0016] （Ａ－１）成分は２５℃における粘度が０．０３Ｐａ・ｓ以上１５００Ｐａ・ｓ未満が好ましく、より好ましくは０．０５Ｐａ・ｓ以上１０００Ｐａ・ｓ未満であり、特に好ましくは０．３Ｐａ・ｓ以上８００Ｐａ・ｓ未満である。

前記（Ａ－１）成分のアルケニル基含有量は０．０１ｍｍｏｌ／ｇ以上、５ｍｍｏｌ／ｇ以下であり、より好ましくは、０．０５ｍｍｏｌ／ｇ以上１ｍｍｏｌ／ｇ以下の範囲が好ましい。上記範囲内であることで、反応性と柔軟性に優れた樹脂組成物を得ることができる。

[0017] 特に好ましい（Ａ－１）成分は、両末端にビニル基（H_2C＝ＣＨ－）を有する（メタ）アクリル共重合体であり、そのような（Ａ－１）成分の市販品としては、株式会社カネカ製のＸＭＡＰ　ＳＡ１００ＡやＸＭＡＰ　ＯＲ１００Ａなどが挙げられる。

[0018] 前記（Ａ－２）成分のアルケニル基を有するポリオルガノシロキサンとしては特に限定されず、各種のものを用いることができる。アルケニル基を有するポリオルガノシロキサンの分子構造は実質的に直線状であるが、一部に分岐構造があってもよい。例えば分子鎖両末端ビニル基封鎖ポリジメチルシロキサン；分子鎖末端ビニル基封鎖ジメチルシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体；分子鎖両末端ビニル基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体；分子鎖片末端がビニル基で封鎖され、もう一方の分子鎖片末端がトリメトキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン；分子鎖片末端がビニル基で封鎖され、もう一方の分子鎖片末端がトリメチルシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン；分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体が挙げられる。これらの中でも汎用性があり、硬化性に優れることから、分子鎖両末端ビニル基封鎖ポリジメチルシロキサンが好ましい。これらは単独で１種のみで用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。但し、（Ａ－２）成分は、ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサン（（Ｂ）成分）ではあり得ない。

[0019] 本発明の（Ａ－２）成分が有するアルケニル基は、後述する架橋剤とヒドロシリル反応するものが好ましく、上記（Ａ）及び（Ａ－１）で例示されたアルケニル基であってもよく、好ましくは主鎖であるポリオルガノシロキサンのＳｉに結合するビニル基（H_2C＝ＣＨ－）であることが好ましい。

[0020] （Ａ－２）成分は２５℃における粘度が０．０３Ｐａ・ｓ以上１５００Ｐａ・ｓ未満が好ましく、より好ましくは０．０５Ｐａ・ｓ以上１０００Ｐａ・ｓ未満であり、特に好ましくは０．３Ｐａ・ｓ以上８００Ｐａ・ｓ未満である。

本発明の（Ａ－２）成分中のポリオルガノシロキサンの数平均分子量は５００以上１，０００，０００未満の範囲であり、１０００以上１００，０００未満がさらに好ましい。分子量５００以上であれば、硬化物におけるヒドロシリル結合の存在量が適度なため、ビニル系重合体の本来の特性が発現されやすく、また、１，０００，０００未満であれば、ディスペンス塗布がしにくいなど取扱いが困難になることがない。

[0021] 前記（Ａ－２）成分のアルケニル基含有量は０．０１ｍｍｏｌ／ｇ以上、５ｍｍｏｌ／ｇ以下であり、より好ましくは、０．０５ｍｍｏｌ／ｇ以上１ｍｍｏｌ／ｇ以下の範囲が好ましい。上記範囲内であることで、反応性と柔軟性に優れた樹脂組成物を得ることができる。

[0022] （Ａ）成分において、アルケニル基を主鎖の重合体に導入する方法は、公知の方法を適宜使用することができるが、アルケニル基をビニル系重合体に導入する方法を例に取ると、以下の方法が挙げられる。

（１）ラジカル重合、好ましくはリビングラジカル重合によりビニル系重合体を合成する際に、一分子中に重合性の低いアルケニル基と比較的重合性の高いアルケニル基を併せ持つ化合物を第２のモノマーとして反応させる方法。

（２）リビングラジカル重合によりビニル系重合体を合成する際に、重合反応の終期あるいは所定のモノマーの反応終了後に、例えば１，５－ヘキサジエン、１，７－オクタジエン、１，９－デカジエンなどのような重合性の低

いアルケニル基を少なくとも２個有する化合物を反応させる方法。

（３）反応性の高い炭素－ハロゲン結合を少なくとも１個有するビニル系重合体に、例えばアリルトリブチル錫、アリルトリオクチル錫などの有機錫のようなアルケニル基を有する各種の有機金属化合物を反応させてハロゲンを置換する方法。

（４）反応性の高い炭素－ハロゲン結合を少なくとも１個有するビニル系重合体に、アルケニル基を有する安定化カルバニオンを反応させてハロゲンを置換する方法。

（５）反応性の高い炭素－ハロゲン結合を少なくとも１個有するビニル系重合体に、例えば亜鉛のような金属単体あるいは有機金属化合物を作用させてエノレートアニオンを調製し、しかる後にハロゲンやアセチル基のような脱離基を有するアルケニル基含有化合物、アルケニル基を有するカルボニル化合物、アルケニル基を有するイソシアネート化合物、アルケニル基を有する酸ハロゲン化物等の、アルケニル基を有する求電子化合物と反応させる方法。

（６）反応性の高い炭素－ハロゲン結合を少なくとも１個有するビニル系重合体に、アルケニル基を有するオキシアニオンあるいはカルボキシレートアニオンを反応させてハロゲンを置換する方法。

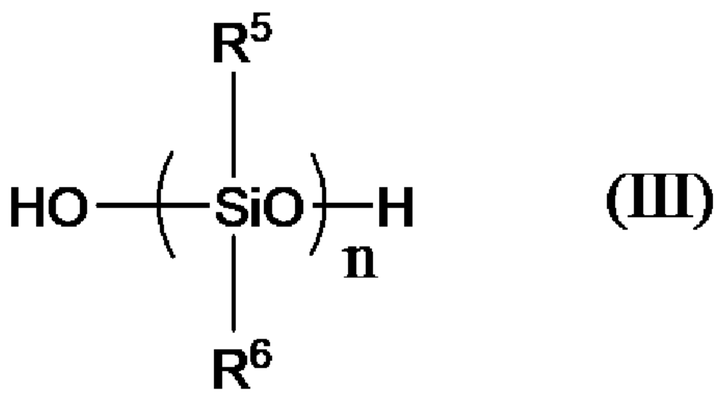
（７）水酸基を少なくとも１個有するビニル系重合体の水酸基にアルケニル基含有ハロゲン化物、アルケニル基含有イソシアネート化合物、アルケニル基含有カルボン酸またはアルケニル基含有酸ハロゲン化物を反応させる方法、あるいは上記水酸基にジイソシアネートを反応させ、さらに水酸基とアルケニル基を含有する化合物を反応させる方法。

この中でも制御がより容易である点から（２）、（６）、（７）の方法が好ましい。

[0023] ［（Ｂ）成分］

本発明で使用される（Ｂ）成分は、ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンである。但し、（Ｂ）成分は、前記（Ａ）成分とは異

なる成分である。なかでも下記の一般式（ＩＩＩ）で示される両末端基が水酸基である、即ち水酸基で封鎖されたポリオルガノシロキサンが（Ｂ）成分として好ましい。



(III)

（式（ＩＩＩ）中、Ｒ[5]及びＲ[6]は、同一でも異なっていてもよい、置換又は非置換の１価の炭化水素基を表わし、好ましくは炭素数が１２以下の炭化水素基であり、より好ましくは炭素数が１～１０、１～８又は２～６のアルキル基であり、より好ましくは、メチル、エチル、プロピルなどのアルキル基；シクロヘキシルなどのシクロアルキル基；ビニル、アリルなどのアルケニル基；フェニル、トリルなどのアリール基であり得る。Ｒ[5]及びＲ[6]は、基の水素原子が部分的にハロゲン原子等で置換された置換炭化水素基であってもよい。

式（ＩＩＩ）中、ｎは、例えば５以上、好ましくは１０～１００、より好ましくは１５～５０の整数である。）

[0024] （Ｂ）成分の２５℃における粘度は、好ましくは１０ｍｍ[2]／ｓ以上１０００ｍｍ[2]／ｓ未満であり、さらに好ましくは２０ｍｍ[2]／ｓ以上５００ｍｍ[2]／ｓ未満であり、最も好ましくは３０ｍｍ[2]／ｓ～１００ｍｍ[2]／ｓである。１０ｍｍ[2]／ｓ以上１０００ｍｍ[2]／ｓ未満であれば、樹脂組成物としての経時での粘度変化を抑制させることができる。

（Ｂ）成分の数平均分子量は、例えば５００～１，０００，０００の範囲、好ましくは１０００～１００，０００が適当である。

[0025] （Ｂ）成分の市販品としては、信越化学工業株式会社社製のＸ－２１－５８４１、ＫＦ－９７０１や東レ・ダウコーニング株式会社製のＢＹ１６－８７３、モメンティブ社製のＸＣ９６－７２３などが挙げられる。

上記（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分のベースポリマーは、（Ａ）成分又は（Ｂ）成分のいずれか、若しくは双方を含み得る。

[0026] ［（Ｃ）成分］

本発明で使用される（Ｃ）成分はアルキルシランで表面処理されたシリカ粉である。本発明の（Ｃ）成分は、後述する（Ｄ）成分と併用することで、際だったチクソ性を発現することができる。

前記アルキルシランとしては、一般式（ＩＶ）：Ｓｉ（Ｒ^{7}）$_{4}$で示されるアルキルシラン化合物が挙げられる。前記（Ａ）成分および前記（Ｂ）成分に対する分散性に優れ、前記（Ｄ）成分との高いチクソ性を発現させる効果の観点から、当該一般式（ＩＶ）中、Ｒ^{7}は、同一でも異なっていてもよい、炭素数３～１５のアルキル基であることが好ましく、さらに好ましくは炭素数５～１０のアルキル基、最も好ましくは炭素数８～１０のアルキル基である。

上記一般式（ＩＶ）のＲ^{7}の具体例としては、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、イソヘプチル基、オクチル基、イソオクチル基、ノニル基、イソノニル基、デシル基、イソデシル基が挙げられるが、オクチル基が好ましい。

[0027] （Ｃ）成分のシリカ粉は、フュームドシリカ粉であることが好ましい。フュームドシリカ粉とは、火炎加水分解法によって得られた二酸化硅素からなり、真球状の粒子を形成し、複数の粒子が数珠状に凝集、融着し、嵩高い凝集体を形成したものである。

[0028] （Ｃ）成分のアルキルシランで表面処理されたシリカ粉の一次粒子の平均粒径は、１ｎｍ以上３００ｎｍ未満であることが好ましく、さらに好ましくは３ｎｍ以上１００ｎｍ未満であり、最も好ましくは５ｎｍ以上５０ｎｍ未満である。なお、本発明でいう一次粒子の平均粒径は、遠心沈降光透過法やレーザー回折法、透過型電子顕微鏡で計測した手法などの一般的な方法で測定・算出されるが、特に断りがない限り、本明細書で言う一次粒子の平均粒径は、ＪＩＳ　Ｈ　７８０４：２００５に準拠し、透過型電子顕微鏡を用い、

各一次粒子の二次元投影像の長径と短径を測定し、その平均から求めた数値である。

[0029] （Ｃ）成分のアルキルシランで表面処理されたシリカ粉のＢＥＴ比表面積は、３００m^2／ｇ未満であることが好ましく、さらに好ましくは２５０m^2／ｇ未満である。なおＢＥＴ比表面積の下限値としては、前記（Ａ）成分および前記（Ｂ）成分との充填率の観点から、例えば１００m^2／ｇ以上、好ましくは１５０m^2／ｇ以上であることが適当である。

[0030] 樹脂組成物中での（Ｃ）成分の経時での沈降を防止する観点から、（Ｃ）成分の表面処理されたシリカ粉の見掛比重は１ｇ／Ｉ以上１００ｇ／Ｉ未満であることが好ましく、より好ましくは１０ｇ／Ｉ以上８０ｇ／Ｉ未満である。なお、本明細書で言う見掛比重は、ＤＩＮ　ＩＳＯ　７８７－１１に準拠し、十分にタップを行った後の見掛け密度の測定によって測定された値である。

[0031] （Ｃ）成分は、（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対して、０．０１～１００質量部含むことが好ましく、０．１～５０質量部含むことがさらに好ましく、０．５～３０質量部含むことが最も好ましい。０．０１～１００質量部であることで、ベースポリマーの特性を維持しながら粘度特性をコントロールすることができる。

[0032] （Ｃ）成分の市販品としては、ＡＥＲＯＳＩＬ　Ｒ８０５（エボニック社製）、ＣＡＢ－Ｏ－ＳＩＬ　ＴＳ－５３０（ＣＡＢＯＴ社製）などが挙げられる。

[0033] ［（Ｄ）成分］

本発明で使用することができる（Ｄ）成分としては、ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む化合物である。（Ｄ）成分は（Ｃ）成分による粘度の上昇を抑え、チクソ性付与効果を増大させる主要な成分である。（Ｄ）成分は、上記元素を含む酸、並びに、当該酸のエステル（酸エステル化合物）や当該酸の塩等の当該酸の誘導体であってもよい。（Ｄ）成分としては、例えば、ホウ酸、ホウ酸エステル、リン酸

、リン酸エステル、硫酸、硫酸エステル、硝酸、硝酸エステルなどが挙げられる。なかでも、硬化性、保存安定性の観点から、ホウ酸、ホウ酸エステル、リン酸、リン酸エステルが好ましく、チクソ性付与効果の観点から、ホウ酸エステル、リン酸エステルが好ましく、ホウ酸エステルが特に好ましい。

[0034] ホウ酸エステルとしては、任意のものを用いることができるが、本発明においてより好ましくは、分子中にホウ酸エステルを１つ有する以下一般式（Ｖ）で表される化合物である。

$$B-(OR^{8})_{3} \quad (V)$$

ここで式（Ｖ）中、R^{8}は水素、または置換基を有しても良い炭素数が１～６のアルキル基、アリール基、カルボニル基、アセチル基から選ばれる官能基であり、３つのうち全てが同一であっても異なっていてもよい。当該化合物としては、ホウ酸トリメチル、ホウ酸トリエチル、ホウ酸トリブチル等のホウ酸トリアルキルエステル化合物を挙げることができ、樹脂組成物の保存安定性の観点からホウ酸トリブチルが好適である。

[0035] リン酸エステルとしては、エチルアシッドホスフェート、ブチルアシッドホスフェート、ブトキシエチルアシッドホスフェート、オレイルアシッドホスフェート、２－エチルヘキシルアシッドホスフェート、２－ヒドロキシエチルメタクリレートアシッドホスフェート、ジブチルホスフェートなどが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0036] （Ｄ）成分は、（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対して、０．０５～２０質量部含むことが好ましく、０．１～１２質量部含むことがさらに好ましく、０．２～７質量部含むことが最も好ましい。０．０５～２０質量部であることで、樹脂組成物として特性に影響することなく、チクソ性を維持することができる。

[0037] 粘度の上昇を抑制しチクソ性のみを向上させるためには、樹脂組成物中の（Ｃ）成分対（Ｄ）成分の質量比が、例えば（Ｃ）成分：（Ｄ）成分＝１５：１～１：１５であり、９：１～１：９であることが好ましく、８：２～２：８であることがより好ましく、７：３～３：７であることが最も好ましい。

[0038] ［任意成分］

本発明の樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分の他に、本発明の目的を損なわない範囲で、充填材、酸化防止剤、光安定剤、保存安定剤、消泡剤、カップリング剤、レベリング剤、分散剤、ｐＨ調整剤、溶媒、密着付与剤、可塑剤、顔料、難燃剤、及び界面活性剤等の、上記（Ａ）～（Ｄ）成分とは異なる任意成分を含んでもよい。これらの添加により、塗布性、成膜性、保存安定性などに優れた樹脂組成物が得られる。

本発明に対し、硬化物の弾性率、樹脂強度、流動性などの改良を目的として、保存安定性を阻害しない程度の充填材を添加してもよい。具体的には有機質粉体、無機質粉体、金属質粉体等が挙げられる。無機質粉体の充填材としては、ガラス、アルミナ、マイカ、セラミックス、シリコーンゴム粉体、炭酸カルシウム、窒化アルミ、カーボン粉、カオリンクレー、乾燥粘土鉱物、乾燥珪藻土等が挙げられる。無機質粉体の配合量は、前記（Ａ）成分及び／又は前記（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対し、０．１～１００質量部程度が好ましい。１００質量部以下であれば樹脂組成物として十分な流動性が得られ、良好な作業性が得られる。

[0039] 有機質粉体の充填材としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ナイロン、架橋アクリル、架橋ポリスチレン、ポリエステル、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、ポリカーボネートが挙げられる。有機質粉体の配合量は、（Ａ）成分及び／又は前記（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対し、０．１～１００質量部程度が好ましい。０．１質量部より大きければ効果が小さくなることもなく、１００質量部以下であれ樹脂組成物として十分な流動性が得られ、良好な作業性が得られる。

[0040] 金属質粉体の充填材としては、例えば、金、白金、銀、銅、インジウム、パラジウム、ニッケル、アルミナ、錫、鉄、アルミニウム、ステンレスなどが挙げられる。金属質粉体の配合量は、（Ａ）成分及び／又は前記（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対し、０．１～１００質量部程度が好ましく、より好ましくは１～５０質量部である。

[0041] 酸化防止剤としては、例えば、βーナフトキノン、２ーメトキシー１，４ーナフトキノン、メチルハイドロキノン、ハイドロキノン、ハイドロキノンモノメチルエーテル、モノーｔｅｒｔーブチルハイドロキノン、２，５ージーｔｅｒｔーブチルハイドロキノン、ｐーベンゾキノン、２，５ージフェニルーｐーベンゾキノン、２，５ージーｔｅｒｔーブチルーｐーベンゾキノン等のキノン系化合物；フェノチアジン、２，２ーメチレンービス（４ーメチルー６ーｔｅｒｔーブチルフェノール）、カテコール、ｔｅｒｔーブチルカテコール、２ーブチルー４ーヒドロキシアニソール、２，６ージーｔｅｒｔーブチルーｐークレゾール、２ーｔｅｒｔーブチルー６－（３－ｔｅｒｔーブチルー２ーヒドロキシー５ーメチルベンジル）－４ーメチルフェニルアクリレート、２－〔１－（２ーヒドロキシー３，５ージーｔｅｒｔーペンチルフェニル）エチル〕－４，６ージーｔｅｒｔーペンチルフェニルアクリレート、４，４’－ブチリデンビス（６－ｔｅｒｔーブチルー３－メチルフェノール）、４，４’－チオビス（６－ｔｅｒｔーブチルー３－メチルフェノール）、３，９－ビス〔２－〔３－（３－ｔｅｒｔーブチルー４ーヒドロキシー５ーメチルフェニル）プロピオニロキシ〕－１，１－ジメチルエチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ〔５，５〕ウンデカン、ペンタエリスリトールテトラキス〔３－（３，５ージーｔｅｒｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、チオジエチレンビス〔３－（３，５ージーｔｅｒｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、オクタデシルー３－（３，５ージーｔｅｒｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート、Ｎ，Ｎ′－ヘキサンー１，６ージイルビス〔３－（３，５ージーｔｅｒｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオンアミド〕、ベンゼンプロパン酸，３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシ，Ｃ7－Ｃ9側鎖アルキルエステル、２，４－ジメチルー６－（１－メチルペンタデシル）フェノール、ジエチル〔〔３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシフェニル〕メチル〕フォスフォネート、３，３’，３’’，５，５’，５’’－ヘキサーｔｅｒｔーブチルーａ，ａ’，ａ’’－（メシチ

レン－２，４，６－トリル）トリ－ｐ－クレゾール、カルシウムジエチルビス〔〔３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシフェニル〕メチル〕フォスフォネート、４，６－ビス（オクチルチオメチル）－ｏ－クレゾール、エチレンビス（オキシエチレン）ビス〔３－（５－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－ｍ－トリル）プロピオネート〕、ヘキサメチレンビス〔３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、１，３，５－トリス（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン、１，３，５－トリス〔（４－ｔｅｒｔ－ブチル－３－ヒドロキシ－２，６－キシリル）メチル〕－１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン、Ｎ－フェニルベンゼンアミンと２，４，６－トリメチルペンテンとの反応生成物、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－（４，６－ビス（オクチルチオ）－１，３，５－トリアジン－２－イルアミノ）フェノール、ピクリン酸、クエン酸等のフェノール類；トリス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）フォスファイト、トリス〔２－〔〔２，４，８，１０－テトラ－ｔｅｒｔ－ブチルジベンゾ〔ｄ，ｆ〕〔１，３，２〕ジオキサフォスフェフィン－６－イル〕オキシ〕エチル〕アミン、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ペンタエリスリートールジフォスファイト、ビス〔２，４－ビス（１，１－ジメチルエチル）－６－メチルフェニル〕エチルエステル亜リン酸、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）〔１，１－ビスフェニル〕－４，４‘－ジイルビスホスフォナイト、６－〔３－（３－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロポキシ〕－２，４，８，１０－テトラ－ｔｅｒｔ－ブチルジベンズ〔ｄ、ｆ〕〔１，３，２〕ジオキサフォスフェフィン等のリン系化合物；フェノチアジン等のアミン系化合物；ラクトン系化合物；ビタミンＥ系化合物等が挙げられる。中でもフェノール系化合物が好適である。

[0042] 光安定剤としては、例えば、ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピ

ペリジル）セバケート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）セバケート、４－ベンゾイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－〔２－〔３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオニルオキシ〕エチル〕－４－〔３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオニルオキシ〕－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジニル－メタアクリレート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジニル）〔〔３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシフェニル〕メチル〕ブチルマロネート、デカン二酸ビス（２，２，６，６－テトラメチル－１（オクチルオキシ）－４－ピペリジニル）エステル，１，１－ジメチルエチルヒドロペルオキシドとオクタンの反応生成物、Ｎ，Ｎ’，Ｎ’’，Ｎ’’’－テトラキス－（４，６－ビス－（ブチル－（Ｎ－メチル－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－４－イル）アミノ）－トリアジン－２－イル）－４，７－ジアザデカン－１，１０－ジアミン、ジブチルアミン・１，３，５－トリアジン・Ｎ，Ｎ′－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル－１，６－ヘキサメチレンジアミンとＮ－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）ブチルアミンの重縮合物、ポリ〔〔６－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）アミノ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジイル〕〔（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ〕ヘキサメチレン〔（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ〕〕、コハク酸ジメチルと４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチル－１－ピペリジンエタノールの重合物、２，２，４，４－テトラメチル－２０－（β－ラウリルオキシカルボニル）エチル－７－オキサ－３，２０－ジアザジスピロ〔５，１，１１，２〕ヘネイコサン－２１－オン、β－アラニン，Ｎ，－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジニル）－ドデシルエステル／テトラデシルエステル、Ｎ－アセチル－３－ドデシル－１－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジニル）ピロリジン－２，５－ジオン、２，２，４，４－テトラメ

チル－７－オキサ－３，２０－ジアザジスピロ〔５，１，１１，２〕ヘネイコサン－２１－オン、２，２，４，４－テトラメチル－２１－オキサ－３，２０－ジアザジシクロ－〔５，１，１１，２〕－ヘネイコサン－２０－プロパン酸ドデシルエステル／テトラデシルエステル、プロパンジオイックアシッド，〔（４－メトキシフェニル）－メチレン〕－ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジニル）エステル、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジノールの高級脂肪酸エステル、１，３－ベンゼンジカルボキシアミド，Ｎ，Ｎ’－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジニル）等のヒンダートアミン系；オクタベンゾン等のベンゾフェノン系化合物；２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）フェノール、２－（２－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）ベンゾトリアゾール、２－〔２－ヒドロキシ－３－（３，４，５，６－テトラヒドロフタルイミド－メチル）－５－メチルフェニル〕ベンゾトリアゾール、２－（３－ｔｅｒｔ－ブチル－２－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール、２－（２－ヒドロキシ－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ペンチルフェニル）ベンゾトリアゾール、メチル３－（３－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－５－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネートとポリエチレングリコールの反応生成物、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－６－ドデシル－４－メチルフェノール等のベンゾトリアゾール系化合物；２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンゾエート等のベンゾエート系化合物；２－（４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－〔（ヘキシル）オキシ〕フェノール等のトリアジン系化合物等が挙げられる。特に好ましくは、ヒンダートアミン系化合物である。

本発明の樹脂組成物に含まれる任意成分の量は、例えば、（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対して、例えば０．０５～１００質量部、好ましくは０．１～５０質量部、より好ましくは０．２～２

０質量部であることが適当である。

[0043] ＜硬化性樹脂組成物＞

本発明の上記樹脂組成物は、さらに架橋剤、触媒、及びカップリング剤等の硬化性成分を適宜添加し、硬化性樹脂組成物として存在していてもよい。当該硬化性樹脂組成物を、任意の条件で硬化させることで、当該硬化性樹脂組成物の硬化物を得ることができる。本発明の本発明の硬化性樹脂組成物は、全ての成分を混合してなる一液型の硬化性樹脂組成物の他、いくつかの成分を別々に調製しかつ保管し、使用時に混合する二液型の硬化性樹脂組成物のキットとしても使用することができる。

[0044] （Ａ）成分をベースポリマーとして含む樹脂組成物を用いる場合、架橋剤として１分子中に１以上のヒドロシリル基を有する化合物を含むことができる。ヒドロシリル基とは、ＳｉＨ結合を有する基を表す。架橋剤としては、（Ａ）成分とヒドロシリル化反応により硬化できるものであれば特に制限はないが、ポリシロキサンなどが挙げられ、好ましくはオルガノハイドロジェンポリシロキサンであり、直鎖状、分岐状、環状または網状の分子からなる分子中にヒドロシリル基を含有するシリコーンなどが挙げられる。また樹脂強度と硬化性の観点から、ヒドロシリル基は１分子中に２以上有する化合物が好ましい。

[0045] 架橋剤の２５℃における粘度は、前記（Ａ）成分との相溶性の観点から１ｍＰａ・ｓ以上１０Ｐａ・ｓ未満が好ましく、さらに好ましくは５ｍＰａ・ｓ以上５Ｐａ・ｓ未満であり、特に好ましくは７ｍＰａ・ｓ以上１Ｐａ・ｓ未満である。また前記架橋剤のＳｉＨ価は樹脂組成物の硬化性の観点から、１０以上１０００ｇ／ｍｏｌ未満が好ましく、より好ましくは５０以上７００ｇ／ｍｏｌ未満、最も好ましくは１００以上５００ｇ／ｍｏｌ未満である。ここで、ＳｉＨ価とは、１分子中のＳｉＨ基の濃度（ｇ／ｍｏｌ）を意味する。

[0046] 架橋剤のケイ素原子に結合した水素原子以外の置換基は、炭素数１～２０のアルキル基、フェニル基が好ましいが、その他の基でもかまわない。

[0047] 架橋剤の市販品としては特に限定されないが、ＣＲ－３００、ＣＲ－５００（株式会社カネカ製）、ＨＭＳ－０１３、ＨＭＳ－１５１、ＨＭＳ－３０１（アズマックス株式会社製）、ＳＨ１１０７フルイド（東レ・ダウコーニング株式会社製）などが挙げられる。

[0048] 架橋剤の添加量は架橋剤中のヒドロシリル基と、前記（Ａ）成分に含まれるアルケニル基１個に対して、通常０．５当量以上１．５当量以下となる量が好ましい。さらに好ましくは０．８当量以上１．２当量以下となる量である。０．５当量より多い場合には、架橋密度が少なくなりすぎることがなく、１．５当量より少ない場合には、脱水素反応による発泡の問題が生じたり、耐熱性に影響を与えたりすることがない。また、前記（Ａ）成分と前記（Ｃ）成分の混合割合は、硬化性の観点から、（Ａ）成分のアルケニル基１モルに対する（Ｃ）成分のヒドロシリル基のモル比が０．２以上５以下の範囲にあることが好ましく、さらに０．４以上２．５以下であることが好ましい。モル比が５未満であると十分な硬化性を有することができ、０．２以上であれば硬化後の硬化物にクラックやボイドが発生しない均一で強度のある硬化物が得られる。

[0049] （Ａ）成分を用いる場合においては、触媒として付加反応型の硬化触媒を用いることが好ましい。当該付加反応型の硬化触媒としては、ヒドロシリル化触媒を含んでいることが好ましい。ヒドロシリル化触媒としては、ヒドロシリル化反応を触媒できるものであれば特に制限はなく、任意の触媒が使用でき、例えば、有機過酸化物やアゾ化合物等のラジカル開始剤、および遷移金属触媒が挙げられる。この中でも反応性が高いことから遷移金属触媒が好ましい。

[0050] 遷移金属触媒については、具体的に例示すると、白金単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に白金固体を担持させたもの；塩化白金酸；塩化白金酸とアルコール、アルデヒド、ケトン等との錯体；白金－オレフィン錯体；$Pt_n(ViMe_2SiOSiMe_2Vi)_n$、$Pt[(MeViSiO)_4]_m$等の白金－ビニルシロキサン錯体；$Pt(PPh_3)_4$、$Pt(PBu_3)_4$

等の白金－ホスフィン錯体；Ｐｔ〔Ｐ（ＯＰｈ）$_3$〕$_4$、Ｐｔ〔Ｐ（ＯＢｕ）$_3$〕$_4$等の白金－ホスファイト錯体；Ｐｔ（ａｃａｃ）$_2$が挙げられる。なお、上記各式中、Ｍｅはメチル基、Ｂｕはブチル基、Ｖｉはビニル基、Ｐｈはフェニル基、ａｃａｃはアセチルアセトナトを表し、ｎ、ｍは整数を表す。また、Ａｓｈｂｙらの米国特許第３１５９６０１号明細書及び米国特許第３１５９６６２号明細書中に記載された白金－炭化水素複合体；並びにＬａｍｏｒｅａｕｘらの米国特許第３２２０９７２号明細書中に記載された白金アルコラート触媒も挙げられる。硬化性の観点から好ましい触媒としては、塩化白金酸、白金の単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に固体白金を担持させたもの；塩化白金酸とアルコール、アルデヒド、ケトン等との錯体；Ｐｔ（CH_2＝CH_2）$_2$Ｃｌ$_2$などの白金－オレフィン錯体；白金ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体；Ｐｔ$_n$（$ViMe_2SiOSiMe_2Vi$）$_x$、Ｐｔ［（ＭｅＶｉＳｉＯ）$_4$］$_y$などの白金－ビニルシロキサン錯体；Ｐｔ（PPh_3）$_4$、Ｐｔ（PBu_3）$_4$などの白金－ホスファイト錯体が挙げられる。これらの中でも活性が優れるという観点から、塩化白金酸、白金－オレフィン錯体、及び白金－ビニルシロキサン錯体等が好ましい。

[0051] さらに、白金化合物以外の触媒の例としては、ＲｈＣｌ（PPh_3）$_3$、$RhCl_3$、Ｒｈ／Al_2O_3、$RuCl_3$、$IrCl_3$、$FeCl_3$、$AlCl_3$、$PdCl_2 \cdot xH_2O$、$NiCl_2$、$TiCl_4$、等が挙げられる。これらの触媒は単独で使用してもよく、２種以上併用しても構わない。

[0052] 触媒の量としては特に制限はないが、（Ａ）成分を使用する場合、（Ａ）成分のアルケニル基１ｍｏｌに対して１×１０$^{-8}$ｍｏｌ以上１×１０$^{-1}$ｍｏｌ未満の範囲で用いるのが好ましく、１×１０$^{-6}$ｍｏｌ以上１×１０$^{-2}$ｍｏｌ未満の範囲で用いるのがさらに好ましい。また、触媒としてヒドロシリル化触媒を用いる場合、ヒドロシリル化触媒は、一般に高価で腐食性であり、水素ガスを大量に発生して硬化物が発泡してしまう場合があるので１×１０$^{-1}$ｍｏｌ未満が好ましい。硬化性樹脂組成物中に存在する触媒の絶対量は、（Ａ）成分１００質量部に対し、例えば０．０１～１質量部であり、好ましくは、０

．０２０～０．５質量部、より好ましくは０．０３～０．１質量部である。触媒の形態は、固体または液体のいずれであっても良いが、例えば、アルコール溶液の形態、好ましくは、メタノール、エタノール、プロパノール等の溶液の形態、より好ましくはイソプロパノール溶液の形態で使用することが適当である。

[0053] （Ｂ）成分をベースポリマーとして含む樹脂組成物を使用し硬化性樹脂組成物を得る場合、多官能の加水分解性シリル基を有する化合物をさらに含むことが好ましい。さらに、当該化合物と（Ｂ）成分とを縮合反応させるために、有機錫錯体、アミン化合物、チタン又はジルコニウムの第四族元素からなる有機錯体を縮合反応触媒として使用することが適当である。加水分解基の種類により脱アルコール型、脱オキシム型、脱酢酸型、脱ケトン型などの縮合反応触媒が存在する。

[0054] 上記多官能の加水分解性シリル基を有する化合物は、１分子中に２～３の加水分解性シリル基を有する化合物であれば限定はなく、好ましくはシラン系カップリング剤である。加水分解シリル基の種類としては、アセトキシシリル基、オクタノイルオキシシリル基、ベンゾイルオキシシリル基等のアシロキシシリル基、ジメチルケトオキシムシリル基、メチルエチルケトオキシムシリル基、ジエチルケトオキシムシリル基等のケトオキシムシリル基；メトキシシリル基、エトキシシリル基、プロポキシ基等のアルコキシシリル基、イソプロペニルオキシシリル基、１－エチル－２－メチルビニルオキシシリル基等のアルケニルオキシシリル基；ジメチルアミノシリル基、ジエチルアミノシリル基、ブチルアミノシリル基、シクロヘキシルアミノシリル基等のアミノシリル基；ジメチルアミノキシシリル基、ジエチルアミノキシシリル基等のアミノキシシリル基；及びＮ－メチルアセトアミドシリル基、Ｎ－エチルアセトアミドシリル基、Ｎ－メチルベンズアミドシリル基等のアミドシリル基等を挙げる事ができるが、これらに限定されるものではない。人体や環境への配慮からメトキシシリル基、エトキシシリル基、及びプロポキシシリル基が好ましい。

[0055] 上記縮合反応触媒の具体例を挙げると、有機錫錯体ではジブチル錫ビストリエトキシシリケート、ジブチル錫ジオクトエート、ジブチル錫アセテート、ジブチル錫ジラウレート、ブチル錫－２－エチルヘキソエート、カプリル酸第一錫、ナフテン酸錫、オレイン酸錫、及びブチル酸錫などがある。また、チタン系触媒ではテトライソプロピルチタネート、テトラノルマルブチルチタネート、ブチルチタネートダイマー、テトラオクチルチタネート、チタンアセチルアセトナート、チタンオクチレングリコレート、チタンテトラアセチルアセトナート、チタンエチルアセトアセテート、ポリヒドロキシチタンステアレート、チタンラクテート、及びチタントリエタノールアミネートなどがある。ジルコニウム系触媒では、テトラノルマルプロポキシジルコニウム、テトラノルマルブトキシジルコニウム、ジルコニウムテトラアセチルアセトネート、ジルコニウムモノブトキシアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）、ジルコニウムジブトキシビス（エチルアセトアセテート）、ジルコニウムテトラアセチルアセトネート、及びジルコニウムトリブトキシステアレートなどがある。しかし、これらに特に限定されるものではない。また、架橋剤の構造中にアミンを有する化合物も触媒として使用できる。該アミン化合物の具体例を挙げると、３－（２－アミノエチル）アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、及び３－アミノプロピルトリエトキシシランなどがある。

[0056] 加水分解性シリル基を有する化合物と縮合反応触媒の添加量は、（Ｂ）成分１００質量部に対して、加水分解性シリル基を有する化合物は０．１～２５質量部、好ましくは１～２０質量部、縮合反応触媒は０．００１～１質量部、好ましくは０．０１～０．５質量部である。

[0057] ＜用途＞

本発明の樹脂組成物は、シール剤や接着剤等に使用するための硬化性樹脂組成物の材料の一部として使用される。本発明の硬化性樹脂組成物は、シール剤、接着剤及びコーティング剤等として利用され得る。本発明の硬化性樹脂組成物を硬化させてなる硬化物は、上記シール材が硬化して形成されたシール層やシール部、上記接着剤が硬化して形成された接着層又は接着部、又は上記コーティング剤が硬化して形成されたコーティング層又はコーティング部として利用され得る。

＜塗布方法＞

本発明の樹脂組成物及び硬化性樹脂組成物を被着体への塗布する方法としては、公知のシール剤や接着剤等の塗布方法が用いられる。例えば、自動塗布機を用いたディスペンシング、スプレー、インクジェット、スクリーン印刷、グラビア印刷、ディッピング、スピンコートなどの方法を用いることができる。なお、本発明の樹脂組成物及び硬化性樹脂組成物は、塗布性の観点から２５℃で液状であることが適当である。

[0058] ＜硬化方法と硬化物＞

本発明の硬化性樹脂組成物は、加熱や水分などを利用する公知の方法により硬化させて硬化物を得ることができる。硬化物の製造方法として、具体的には、上記（Ａ）～（Ｄ）成分並びに必要に応じて上記任意成分を混合して樹脂組成物を製造する工程、

前記樹脂組成物に、架橋剤及び硬化触媒を混合する工程、及び（Ａ）成分をベースポリマーとする場合、硬化温度を３０～３００℃とする条件下、（Ｂ）成分をベースポリマーとする場合、水蒸気の存在下、硬化温度を１０～５０℃とする条件下、前記樹脂組成物を硬化して硬化物を製造する工程、を含む、硬化物の製造方法を例示することができる。

[0059] 本発明の（Ａ）成分を用いた硬化性樹脂組成物を加熱硬化する場合、硬化温度としては特に限定されないが、３０～３００℃が好ましく、５０～２００℃がより好ましく、６０～１５０℃がさらに好ましい。硬化時間は特に限定されないが、６０～１５０℃の場合には２０分以上５時間未満が好ましく、

４０分以上３時間以内がさらに好ましい。

本発明の前記（Ｂ）成分を用いた硬化性樹脂組成物を水蒸気によって湿気硬化する場合、硬化温度としては特に限定されないが、１０℃～５０℃が好ましく、１５℃～３０℃が好ましい。また相対湿度は４０％ＲＨ以上であることが好ましく、硬化時間は１時間以上２週間未満が好ましい。

[0060] ＜樹脂組成物の製造方法＞

本発明の樹脂組成物は、各成分を混合することにより製造される。各成分の混合順序は特に限定されず、（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分に（Ｃ）成分をミキサーにて分散させた後、（Ｄ）成分を添加しても良いし、（Ａ）成分及び／又は（Ｂ）成分に（Ｄ）成分を添加し、ミキサーで撹拌後、（Ｃ）成分を添加し、分散させても良い。

本発明の樹脂組成物に、さらに架橋剤や触媒などの硬化性成分を加え、硬化性樹脂組成物とすることができる。具体的に、硬化性樹脂組成物は、以下の手順で製造される。

（Ａ）成分を使用する場合：

（Ａ）～（Ｄ）成分（但し（Ｂ）成分は任意）を添加した後、ミキサーにて撹拌し、架橋剤、触媒などの硬化性成分を添加し、撹拌する。

（Ｂ）成分を使用する場合：

（Ａ）～（Ｄ）成分（但し（Ａ）成分は任意）を添加した後、架橋剤、触媒などの硬化性成分を添加し、減圧撹拌する。

実施例

[0061] 次に実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。

[0062] ［実施例１～７、比較例１～７］

所望の樹脂組成物を調製するために下記成分を準備した。

[0063] （Ａ－１）成分：ＸＭＡＰ　ＯＲ１００Ａ（カネカ製）：アルケニル基として両末端にビニル基を１つずつ有するアクリル共重合体、粘度（２５℃）７００Ｐａ・ｓ

（Ａ－２）成分：ＸＦ４０－Ａ１９８７（信越化学工業株式会社製）：アルケニル基として両末端にビニル基を１つずつ有するポリオルガノシロキサン、粘度（２５℃）１３Ｐａ・ｓ、アルケニル基（ビニル基）含有量０．１３ｍｍｏｌ／ｇ

（Ｂ）成分：ＫＦ－９７０１（信越化学工業株式会社製）：両末端シラノールジメチルシリコーンオイル、粘度（２５℃）６０ｍｍ^2／ｓ

（Ｃ）成分：ＡＥＲＯＳＩＬ、Ｒ８０５（エボニック社製）：オクチルシランにて表面処理されたフュームドシリカ粉、一次粒子の平均粒径１２ｎｍ、ＢＥＴ比表面積１５０ｍ^2／ｇ、見掛比重６０ｇ／ｌ

（Ｃ’１）成分：ＡＥＲＯＳＩＬ　Ｒ９７２（日本アエロジル株式会社製）：ジメチルシリルにて表面処理されたフュームドシリカ粉、一次粒子の平均粒径１６ｎｍ、ＢＥＴ比表面積１１０ｍ^2／ｇ、見掛比重５０ｇ／ｌ

（Ｃ’２）成分：ＡＥＲＯＳＩＬ　２００（日本アエロジル株式会社製）：未処理のフュームドシリカ粉、一次粒子の平均粒径１２ｎｍ、ＢＥＴ比表面積２００ｍ^2／ｇ、見掛比重５０ｇ／ｌ

（Ｃ’３）成分：ＡＥＲＯＸＩＤＥ、Ｔ８０５（日本アエロジル株式会社製）オクチルシランにて表面処理されたチタン粉、一次粒子の平均粒径２１ｎｍ、ＢＥＴ比表面積４５ｍ^2／ｇ、見掛比重２００ｇ／ｌ

（Ｄ－１）成分：ホウ酸トリブチル（試薬）

（Ｄ－２）成分：リン酸（試薬）

（Ｄ－３）成分：硫酸（試薬）

（Ｄ－４）成分：硝酸（試薬）

（Ｄ’－１）成分：メタクリル酸（三菱レイヨン株式会社製）

（Ｄ’－２）成分：酢酸（試薬）

[0064] 下記表１、表２に示されるもの以外の各成分は以下である。いずれの添加量も（Ａ）成分又は（Ｂ）成分のベースポリマー１００質量部に対する添加量である。

（Ａ）成分を使用した場合

・ＣＲ－５００（架橋剤）　ヒドロシリル基含有化合物（株式会社カネカ製）　１６質量部（Ａ成分に対して１．０当量）ＳｉＨ価：２５３ｇ／ｍｏｌ

・Ｐｔ－ＶＴＳ－３．０ＩＰＡ（遷移金属触媒）　白金ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体のイソプロピルアルコール溶液（ユミコアプレシャスメタルズジャパン株式会社製）０．０３質量部

（Ｂ）成分を使用した場合

・３－（２－アミノエチル）アミノプロピルトリメトキシシラン（縮合反応触媒、Ｚ－６０２０　東レ・ダウコーニング株式会社製）　９質量部

・ジブチル錫ビストリエトキシシリケート（縮合反応触媒、ネオスタンＵ－３０３　日東化成株式会社製）　０．２質量部

[0065] 前記（Ａ）成分もしくは前記（Ｂ）成分を撹拌容器に秤量し、前記（Ｃ）成分を撹拌容器に秤量して、３０分間撹拌した。前記（Ｄ）成分を秤量し、１０分間撹拌した。その他、架橋剤や触媒を秤量投入し、各硬化性樹脂組成物を得た。詳細な調製量は表１および表２に従い、数値は全て質量部で表記する。

[0066] ［粘度］

コーンプレート型粘度計により下記の測定条件に基づき硬化性樹脂組成物の粘度（Ｐａ・ｓ）を測定した。下記の基準に基づき評価し、結果を表１に示す。

せん断速度：１．０s^{-1}

測定時間：３ｍｉｎ

温度条件：２５℃

樹脂量：０．５ｍＬ

当該粘度の測定により、試料のチクソ性のうち、試料塗布時の高剪断速度状態で低粘度であるか否かを評価することができる。

［タレ性評価］

タレ性とは、塗料等を被塗布面に塗布してから所定期間経過後に当該塗布した塗料が垂直方向にどれだけ移動するかを測定したものである。タレ性の測

定により、試料のチクソ性のうち、試料塗布後の低剪断速度状態で高粘度であるか否かを評価することができる。具体的には、ＳＵＳ３０４の試験片（厚さ１．０×短辺２５×長辺１００ｍｍ）の短辺から１０ｍｍの位置に標線を引き、標線の上にディスペンサーを用いてΦ＝２．５ｍｍの各樹脂のビートを塗布した。試験片を垂直に立て、経時（１０分、３０分、６０分）で樹脂が標線から移動した距離を測定した。試験は２５℃で行った。

＜評価基準＞

◎（優秀）：６０分経過後の移動距離が３ｍｍ未満

○（良）：６０分経過後の移動距離が５ｍｍ未満

△（可）：３０分経過後の移動距離が５ｍｍ未満

×（不可）：１０分経過後の移動距離が５ｍｍ以上

なお、タレ性の測定の際、塗布性と作業性に関しても塗布のしやすさ及びそれに伴う作業のしやすさを評価した。

[0067] 表１

			実施例１	実施例２	実施例３	実施例４	実施例５	実施例６	実施例７	実施例８
（A－１）	ＸＭＡＰ　ＯＲ１００Ａ		100	100	100			100	100	100
（A－２）	ＸＦ４０－Ａ１９８７					100				
（B）	ＫＦ－９７０１						100			
（C）	Ｒ８０５		7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4
（D）	ホウ酸トリブチル		3.7	1.8	12	3.7	3.7			
	リン酸							3.7		
	硫酸								0.6	
	硝酸									0.6
粘度　Ｐａ・ｓ			780	982	194	944	59	1290	1250	1025
タレ性		10min	0	0	0	0	0	1	1	1.5
		30min	0.2	1.2	1.5	0.5	0.2	1.5	1	3.5
		60min	0.2	3	3.2	0.7	0.4	3.1	3.5	5.3
タレ性（総合評価）			◎	○	○	◎	◎	○	○	△

[0068] 表２

		比較例１	比較例２	比較例３	比較例４	比較例５	比較例６	比較例７
（Ａ－１）	ＸＭＡＰ　ＯＲ１００Ａ	100	100	100	100	100	100	100
（Ａ－２）	ＸＦ４０－Ａ１９８７							
（Ｂ）	ＫＦ－９７０１							
（Ｃ）	Ｒ８０５				7.4	7.4		7.4
（Ｃ’）	Ｒ９７２	7.4						
	200		7.4					
	Ｔ８０５			7.4				
（Ｄ）	ホウ酸トリブチル	3.7	3.7	3.7			3.7	
（Ｄ’）	メタクリル酸				3.7			
	酢酸					3.7		
粘度　Ｐａ・ｓ		522	1	221	604	561	179	1228
タレ性	10min	5	12	15	5.2	5	17	5
	30min	11	26	23	5.7	5.5	29	7
	60min	20	38	30	6	6	41	10
タレ性（総合評価）		×	×	×	×	×	×	×

[0069] 表１に示されるように、実施例１～７、特に実施例１～５、中でも実施例３及び５は粘度が十分に低く、塗布しやすい状態にあることが理解できる。また、実際のタレ性の測定の際も塗布がしやすく、良好に作業を行うことができた。さらにタレ性については、実施例１～７の粘度の値に関わらず、良好なタレ性を有していた。一方で、表２に記載の（Ｃ’）成分や（Ｄ’）成分を用いた樹脂組成物はタレ性において満足のいく結果ではなかった。また比較例７のように（Ｄ）成分を含有していない粘度が高いものでもタレ性が悪い結果となった。

産業上の利用可能性

[0070] 本発明の樹脂組成物は、粘度にかかわらず、効果的にチクソ性を付与することができるため、作業性が良好で、各種塗布方法に展開できるため非常に有用なものである。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、
（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び
（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む化合物、
を含む樹脂組成物。

[請求項2] 前記（Ｄ）成分が、酸または酸エステル化合物である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項3] 前記（Ｄ）成分が、ホウ酸、ホウ酸エステル、リン酸、リン酸エステル、硫酸、及び硝酸からなる群から選択される、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項4] 前記（Ｃ）成分のシリカ粉が、フュームドシリカ粉である、請求項１～３のいずれかに記載の樹脂組成物。

[請求項5] 前記（Ｃ）成分が、オクチルシランにより表面処理されたシリカ粉である、請求項１～４のいずれかに記載の樹脂組成物。

[請求項6] 前記（Ａ）成分が、アルケニル基を２以上有するビニル系重合体（Ａ－１）もしくはアルケニル基を２以上有するポリオルガノシロキサン（Ａ－２）である、請求項１～５のいずれかに記載の樹脂組成物。

[請求項7] 前記（Ｃ）成分対前記（Ｄ）成分の質量比が、９：１～１：９である、請求項１～６のいずれかに記載の樹脂組成物。

[請求項8] 請求項１～７のいずれかに記載の樹脂組成物と、架橋剤と、硬化触媒とを含む、硬化性樹脂組成物。

[請求項9] 請求項８に記載の硬化性樹脂組成物を硬化させてなる硬化物。

[請求項10] 請求項８に記載の硬化性樹脂組成物を含む、接着剤。

[請求項11] 請求項８に記載の硬化性樹脂組成物を含む、シール剤。

[請求項12] （Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に

結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む酸、及びその誘導体からなる群から選択される１種以上の化合物、

を混合する、樹脂組成物の製造方法。

[請求項13] （Ａ）アルケニル基を２以上有する重合体、及び（Ｂ）ケイ素原子に結合した水酸基を有するポリオルガノシロキサンからなる群から選択される１種以上のベースポリマー、

（Ｃ）アルキルシランにて表面処理されたシリカ粉、及び

（Ｄ）ホウ素、リン、硫黄、並びに窒素からなる群から選択される１種以上の元素を含む酸、及びその誘導体からなる群から選択される１種以上の化合物、

を混合して樹脂組成物を製造する工程、

前記樹脂組成物に、架橋剤及び硬化触媒を混合する工程、及び

（Ａ）成分をベースポリマーとする場合、硬化温度を３０～３００℃とする条件下、（Ｂ）成分をベースポリマーとする場合、水蒸気の存在下、硬化温度を１０～５０℃とする条件下、前記樹脂組成物を硬化して硬化物を製造する工程、

を含む、硬化物の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/038514

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08K 9/00(2000.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C08L 101/02(2006.01)i
FI: C08L101/02; C08L83/07; C08K9/06
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)
C08K9/06; C08L83/07; C08L101/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
DWPI (Derwent Innovation)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-023683 A (NICCA CHEMICAL CO., LTD.) 04 February 2013 (2013-02-04) claim 4, paragraphs [0027], [0102] example 38	1-13
A	JP 2008-284408 A (ASAHI KASEI CHEMICALS CORP.) 27 November 2008 (2008-11-27) paragraphs [0116]-[0117], [0119], example 2	1-13
A	WO 2016/163333 A1 (MOMENTIVE PERFORMANCE MATERIALS JAPAN L. L. C.) 13 October 2016 (2016-10-13) claims 1-4	1-13
A	JP 2006-028311 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 02 February 2006 (2006-02-02) claim 3, paragraph [0033]	1-13
A	JP 62-143908 A (TOA-GOSEI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 27 June 1987 (1987-06-27) claim 1	1-13
A	JP 62-020577 A (KOATSU GAS KOGYO CO., LTD.) 29 January 1987 (1987-01-29) claim 1	1-13

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
16 December 2020 (16.12.2020)	28 December 2020 (28.12.2020)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/038514

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2013-023683 A	04 Feb. 2013	(Family: none)	
JP 2008-284408 A	27 Nov. 2008	(Family: none)	
WO 2016/163333 A1	13 Oct. 2016	US 2018/0079904 A1 claims 1-4 EP 3281985 A1 claims 1-4 CN 107 429064 A claims 1-4	
JP 2006-028311 A	02 Feb. 2006	(Family: none)	
JP 62-143908 A	27 Jun. 1987	(Family: none)	
JP 62-020577 A	29 Jan. 1987	US 4713405 A claim 1 EP 209067 A1 claim 1	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/038514

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08K 9/06(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C08L 101/02(2006.01)i
FI: C08L101/02; C08L83/07; C08K9/06

B.　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08K9/06; C08L83/07; C08L101/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

DWPI (Derwent Innovation)

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2013-023683 A (日華化学株式会社) 04.02.2013 (2013-02-04) Claim 4, [0027], [0102]Example38	1-13
A	JP 2008-284408 A (旭化成ケミカルズ株式会社) 27.11.2008 (2008-11-27) [0116]-[0117], [0119]Example2	1-13
A	WO 2016/163333 A1 (モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社) 13.10.2016 (2016-10-13) Claims 1-4	1-13
A	JP 2006-028311 A (信越化学工業株式会社) 02.02.2006 (2006-02-02) Claim 3, [0033]	1-13
A	JP 62-143908 A (東亞合成化学工業株式会社) 27.06.1987 (1987-06-27) Claim 1	1-13
A	JP 62-020577 A (高圧ガス工業株式会社) 29.01.1987 (1987-01-29) Claim 1	1-13

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

*　引用文献のカテゴリー
"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
"E" 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L" 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P" 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
"T" 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
"X" 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
"Y" 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
"&" 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
16.12.2020	28.12.2020

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
幸田　俊希 4J 4671
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2020/038514

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2013-023683 A	04.02.2013	（ファミリーなし）	
JP 2008-284408 A	27.11.2008	（ファミリーなし）	
WO 2016/163333 A1	13.10.2016	US 2018/0079904 A1 Claims 1-4 EP 3281985 A1 Claims 1-4 CN 107429064 A Claims 1-4	
JP 2006-028311 A	02.02.2006	（ファミリーなし）	
JP 62-143908 A	27.06.1987	（ファミリーなし）	
JP 62-020577 A	29.01.1987	US 4713405 A Claim 1 EP 209067 A1 Claim 1	