(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第6973307号
(P6973307)
(45)発行日　令和3年11月24日(2021.11.24)　(24)登録日　令和3年11月8日(2021.11.8)

(51)Int.Cl.		F I		
C08L 83/06	(2006.01)	C08L	83/06	
C08G 77/06	(2006.01)	C08G	77/06	
C10M 107/50	(2006.01)	C10M	107/50	
C10M 155/02	(2006.01)	C10M	155/02	
C08J 5/18	(2006.01)	C08J	5/18	CEV

請求項の数 2　(全 9 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2018-120494(P2018-120494)
(22)出願日　平成30年6月26日(2018.6.26)
(65)公開番号　特開2020-2195(P2020-2195A)
(43)公開日　令和2年1月9日(2020.1.9)
審査請求日　令和2年5月27日(2020.5.27)

(73)特許権者　000002060
信越化学工業株式会社
東京都千代田区丸の内一丁目４番１号
(74)代理人　110002240
特許業務法人英明国際特許事務所
(72)発明者　山田　邦弘
群馬県安中市松井田町人見１番地１０　信越化学工業株式会社　シリコーン電子材料技術研究所内
(72)発明者　木崎　弘明
群馬県安中市松井田町人見１番地１０　信越化学工業株式会社　シリコーン電子材料技術研究所内

審査官　吉田　早希

最終頁に続く

(54)【発明の名称】シリコーン粘着グリース組成物及びその製造方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
（Ａ）２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓであるオルガノポリシロキサン：１００質量部、
（Ｂ）$R^2{}_3SiO_{1/2}$単位（R^2はメチル基、エチル基、プロピル基、ビニル基、アリル基、フェニル基、トリル基から選ばれる基）と、SiO_2単位を含み、$R^2{}_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比（$R^2{}_3SiO_{1/2}$／SiO_2）が０．５～０．９５の範囲にあるオルガノポリシロキサンを、溶剤を用いて固形分２０～７０質量％の範囲に調整し、これをスプレードライヤーにて噴霧させたシリコーンレジンパウダー：１０～５００質量部、及び
（Ｃ）増ちょう剤：１～１００質量部
を、３本ロールを使用して混練りする工程を含むシリコーン粘着グリース組成物の製造方法。
【請求項２】
（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーの水分含有量が０．５質量％以下であり、溶剤含有量が０．１質量％以下であり、低分子シロキサン含有量が０．１質量％以下である請求項１記載のシリコーン粘着グリース組成物の製造方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】

本発明は、耐熱性の高いシリコーン粘着グリース組成物及びその製造方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
粘着グリースは、粘着性を有する潤滑剤として自動車、航空機、家電機器、事務用機器、精密機器、計測機器等の潤滑用途に広く使用されており、低温から高温までの厳しい条件下においても安定な粘着性を有することが要求される。
【０００３】
従来、粘着性組成物としては、グリースにポリイソブテンを添加したもの、あるいはポリイソブテンにシリカを配合した組成物が知られている。しかしながら、これらのものは、０℃を下回るような低温化では固化してしまい、また１３０℃を超えるような高温に暫く放置するとポリイソブテンが分解を始めてしまい、グリースが硬くなってしまうことから、機能が果たせる温度領域が非常に狭いという問題があった。
【０００４】
そこで、これらの問題を解決する手段として、シリコーンオイル中に、シリコーンレジンを分散させることで幅広い領域において好適な粘着性を有するシリコーンレジンを含有するシリコーン粘着グリースが開発された（特開昭５３－４３１７１号公報（特公昭６０－４５２４０号公報）：特許文献１）。しかしながら、従来のシリコーン粘着グリースは、１５０℃を超えるような高温時での経時ちょう度変化が大きいため、耐熱性が不十分な面があった。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００５】
【特許文献１】特開昭５３－４３１７１号公報（特公昭６０－４５２４０号公報）
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００６】
本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、耐熱性が高いシリコーン粘着グリース組成物及びその製造方法を提供することを目的とする。
【課題を解決するための手段】
【０００７】
本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、（Ａ）２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓであるオルガノポリシロキサン、（Ｂ）スプレードライヤー法で製造されたシリコーンレジンパウダー、及び（Ｃ）増ちょう剤を特定量含むシリコーン粘着グリース組成物が、高温時での経時ちょう度変化が少ないために耐熱性に優れることを見出し、本発明をなすに至った。
【０００８】
従って、本発明は、以下のシリコーン粘着グリース組成物及びその製造方法を提供する。
１．　下記（Ａ）～（Ｃ）成分を含むシリコーン粘着グリース組成物。
（Ａ）２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓであるオルガノポリシロキサン：　１００質量部、
（Ｂ）スプレードライヤー法で製造されたシリコーンレジンパウダー：　１０～５００質量部、
（Ｃ）増ちょう剤：　１～１００質量部。
２．　（Ａ）成分のオルガノポリシロキサンが、炭素数４～１８の飽和１価炭化水素基及び炭素数１～１０のパーフルオロアルキル基を含まない、直鎖状構造のオルガノポリシロキサンである１記載のシリコーン粘着グリース組成物。
３．　（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーの水分含有量が０．５質量％以下であり、溶剤含有量が０．１質量％以下であり、低分子シロキサン含有量が０．１質量％以下である１又は２記載のシリコーン粘着グリース組成物。

４．　（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーが、$R^2_3SiO_{1/2}$単位（R^2はメチル基、エチル基、プロピル基、ビニル基、アリル基、フェニル基、トリル基から選ばれる基）と、SiO_2単位を含み、$R^2_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比（$R^2_3SiO_{1/2}$／SiO_2）が０．５～０．９５の範囲にあるオルガノポリシロキサンである１～３のいずれかに記載のシリコーン粘着グリース組成物。
５．　（Ａ）２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓであるオルガノポリシロキサン：　１００質量部、
（Ｂ）スプレードライヤー法で製造されたシリコーンレジンパウダー：　１０～５００質量部、及び
（Ｃ）増ちょう剤：　１～１００質量部
を、３本ロールを使用して混練りするものであるシリコーン粘着グリース組成物の製造方法。
６．　（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーの水分含有量が０．５質量％以下であり、溶剤含有量が０．１質量％以下であり、低分子シロキサン含有量が０．１質量％以下である５記載のシリコーン粘着グリース組成物の製造方法。
７．　（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーが、$R^2_3SiO_{1/2}$単位（R^2はメチル基、エチル基、プロピル基、ビニル基、アリル基、フェニル基、トリル基から選ばれる基）と、SiO_2単位を含み、$R^2_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比（$R^2_3SiO_{1/2}$／SiO_2）が０．５～０．９５の範囲にあるオルガノポリシロキサンを、溶剤を用いて固形分２０～７０質量％の範囲に調整し、これをスプレードライヤーにて噴霧させるものである５又は６記載のシリコーン粘着グリース組成物の製造方法。
【発明の効果】
【０００９】
本発明のシリコーン粘着グリース組成物は、従来よりも経済的に得やすく、且つ特に高温時に安定した粘着性能を発揮できる。
【発明を実施するための形態】
【００１０】
以下、本発明について詳述する。
（Ａ）オルガノポリシロキサン；
（Ａ）成分は、２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓ、好ましくは３０～１０，０００mm^2／ｓであるオルガノポリシロキサンである。オルガノポリシロキサンの動粘度が上記下限値より低いとグリースにした時にオイルブリードが出やすくなる。また、上記上限値より大きいと、シリコーン組成物の伸展性が乏しくなるため好ましくない。なお、本発明において、オルガノポリシロキサンの動粘度はオストワルド粘度計で測定した２５℃の値である（以下、同じ）。
【００１１】
本発明においてオルガノポリシロキサンは、上記動粘度を有するものであればよく、従来公知のオルガノポリシロキサンを使用することができる。オルガノポリシロキサンの分子構造は特に限定されず、直鎖状、分岐鎖状、及び環状等のいずれであってもよい。特には、主鎖がジオルガノシロキサン単位の繰り返しからなり、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖された直鎖状構造を有するのがよい。該オルガノポリシロキサンは、１種単独でも、２種以上の組合せであってもよい。
【００１２】
該オルガノポリシロキサンとしては、下記平均組成式（１）で表されるものが例示できる。

$$R^1_aSiO_{(4-a)/2} \qquad (1)$$

【００１３】
上記式（１）において、R^1は、互いに独立に、炭素数１～１８、好ましくは１～１４の、飽和又は不飽和の、非置換又は置換の１価炭化水素基である（但し、経済的な観点から炭素数４～１８の飽和１価炭化水素基及び炭素数１～１０のパーフルオロアルキル基を

含まないことが好ましい）。該１価炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、フェニル基、及びトリル基等のアリール基、２－フェニルエチル基、及び２－メチル－２－フェニルエチル基等のアラルキル基、又はこれらの基の水素原子の一部又は全部を臭素、塩素等のハロゲン原子、シアノ基等で置換したもの等が挙げられる。これらの中でもメチル基、フェニル基が好ましい。

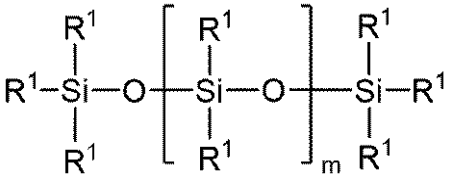
【００１４】

上記式（１）において、ａは１．８～２．２の範囲、特には１．９～２．１の範囲にある数である。ａが上記範囲内にあることにより、得られるシリコーン組成物はグリースとして要求される良好なちょう度を有することができる。

【００１５】

上記平均組成式（１）で表されるオルガノポリシロキサンとしては、下記式で表される直鎖状オルガノポリシロキサンが好ましい。

【化１】



【００１６】

上記式において、R^1は上記の通りであり、メチル基及び／又はフェニル基が好ましい。ｍは該オルガノポリシロキサンの２５℃での動粘度が１０～５００，０００mm^2／ｓ、好ましくは３０～１０，０００mm^2／ｓ、更に好ましくは１００～８，０００mm^2／ｓとなる数である。

【００１７】

（Ｂ）シリコーンレジンパウダー；

（Ｂ）成分は、スプレードライヤー法で製造された粉末状のシリコーンレジンパウダーである。ここで用いられるシリコーンレジンは、$R^2{}_3SiO_{1/2}$単位（R^2はメチル基、エチル基、プロピル基、ビニル基、アリル基、フェニル基、トリル基から選ばれる基）＜以下、Ｍ単位と略記する＞と、SiO_2単位＜以下、Ｑ単位と略記する＞を含むオルガノポリシロキサン（シリコーンレジン）をスプレードライヤー法で粉末化したものであることが好ましい。

【００１８】

上述したＭ単位とＱ単位とを含むオルガノポリシロキサンは、Ｍ単位とＱ単位のモル比（Ｍ／Ｑ）が、０．５未満では製造が困難で、パウダー化が難しくなる場合があり、０．９５より大きいものとすると十分な粘着性能を得ることができなくなる場合があるので、このモル比（Ｍ／Ｑ）が０．５～０．９５、特に０．５５～０．９５、とりわけ０．６～０．９であるものが好ましい。

【００１９】

なお、上記オルガノポリシロキサンの効果を損なわない範囲で、$R^2SiO_{3/2}$単位、$R^2{}_2SiO_{2/2}$単位（R^2は上記と同じ）を合計で、$R^2{}_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位との合計に対して０～３０モル％、特に０～２０モル％の割合において含有してもよい。

【００２０】

上記オルガノポリシロキサンは、Ｍ単位の原料として、通常、トリオルガノクロルシランやアルコキシ基含有トリオルガノシラン、あるいはトリオルガノシロキサンのダイマー、及び、Ｑ単位の原料として水ガラスやテトラアルコキシシランあるいはそのオリゴマー等を、水中あるいは有機溶剤中にて共加水分解縮合させることにより得られるが、後の工程で使い勝手を良くするために、共加水分解縮合後、水分を極力除去し、溶剤等で置換しておくことが好ましい。

【００２１】

上記オルガノポリシロキサンの数平均分子量は、好ましくは５００～５，０００であり、より好ましくは１，０００～４，０００である。数平均分子量が小さすぎると十分な粘着性能が発揮できない場合があり、大きすぎると得られるシリコーン粘着グリース組成物が非常に硬くなってしまう場合がある。なお、本発明において、数平均分子量は、例えば、トルエンを展開溶媒としたゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）分析におけるポリスチレン換算値として求めることができる（以下、同じ）。

【００２２】

従来シリコーンレジンパウダーを得る場合には、真空乾燥機などを用いて、減圧下加熱することで溶剤及び残存水分を除去し、シリコーンレジンを固形化させた後、粉砕機にて粉砕、パウダー化させていた。しかしながら、この方法を用いると、どうしてもある一定割合の低分子シロキサンや水分などの揮発成分が系内に存在してしまい、それらがシリコーン粘着グリース組成物の耐熱性に悪影響を及ぼしていた。

本発明では、パウダー化させる工程としてスプレードライヤー法を用いることで、これら欠点を克服した。スプレードライヤー法とは、上記オルガノポリシロキサンの溶液、スラリー等の液状原料を噴霧させ、乾燥室中で高温気流と接触させて瞬間的に粉末状に乾燥を行う装置である。この製造工程内で、上記オルガノポリシロキサンの溶液、スラリー等の液状原料を高温下で噴霧させるが、それら噴霧された粒子の比表面積は極めて大きくなることから、効率的に低分子シロキサンや水分、溶剤等が揮発し、除去されるものであり、これにより、他の方法でパウダー化させるよりも、水分含有量、溶剤含有量、低分子シロキサン含有量等が少ないシリコーンレジンパウダーが得られるものである。

【００２３】

本発明にかかるシリコーンレジンパウダーは、上記Ｍ単位とＱ単位とを含むオルガノポリシロキサンを、キシレン、トルエン、ＩＰＡ（イソプロピルアルコール）などの溶剤で、固形分として２０～７０質量％、特に３０～５０質量％の範囲に予め調整しておいてからスプレードライヤーにて噴霧させることが好ましい。固形分量が少なすぎると工程時間が長くなってしまい不経済になるし、固形分が多くなると噴霧し辛くなる場合がある。

【００２４】

また、スプレードライヤーの乾燥室入口温度は１００～２５０℃、好ましくは１２０～２００℃の範囲に調整することが好ましい。乾燥室入口温度が１００℃未満では十分に溶剤が揮発しない場合があり、２５０℃を超えても効率が上がらないため不経済になる。

【００２５】

上記スプレードライヤー法により得られたシリコーンレジンパウダーは、水分含有量が少ないものであり、該シリコーンレジンパウダーの水分含有量は、０．５質量％以下、特に０～０．４質量％であることが好ましい。水分含有量が多すぎると得られるシリコーン粘着グリース組成物の耐熱性が悪くなる場合がある。なお、本発明において、該シリコーンレジンパウダーの水分含有量は、カールフィッシャー法により測定することができる。

【００２６】

上記スプレードライヤー法により得られたシリコーンレジンパウダーは、溶剤含有量が少ないものであり、該シリコーンレジンパウダーの溶剤含有量は、０．１質量％以下、特に０～０．０５質量％であることが好ましい。溶剤含有量が多すぎると得られるシリコーン粘着グリース組成物の耐熱性が悪くなる場合がある。なお、本発明において、該シリコーンレジンパウダーの溶剤含有量は、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー法により測定することができる。

【００２７】

上記スプレードライヤー法により得られたシリコーンレジンパウダーは、低分子シロキサン含有量が少ないものであり、該シリコーンレジンパウダーの低分子シロキサン含有量は、０．１質量％以下、特に０～０．０５質量％であることが好ましい。低分子シロキサン含有量が多すぎると得られるシリコーン粘着グリース組成物の耐熱性が悪くなる場合がある。なお、本発明において、該シリコーンレジンパウダーの低分子シロキサン含有量は、ガスクロマトグラフィー法により測定することができる。

【００２８】
なお、上記スプレードライヤー法により得られたシリコーンレジンパウダーのかさ密度は０．３～０．９ｇ／ｍＬであることが好ましい。なお、本発明においてのかさ密度測定方法は、予め重量を測定してある１００ｃｃの容器にシリコーンレジンパウダーをあふれるまで入れ（このとき測定容器に振動を加えたり、試料を圧縮したりしない）、容器の上端面から盛り上がった粉末を、すり切り板を使ってすり切り、内容量の質量を測定し、１ｍＬ当たりの質量を計算して算出する。
【００２９】
（Ｂ）成分のシリコーンレジンパウダーは、（Ａ）成分１００質量部に対して、１０質量部より少ないと十分な粘着性能が発揮できないし、５００質量部より多いと得られるシリコーン粘着グリース組成物が非常に硬くなってしまい、取り扱いが難しくなるため、１０～５００質量部の範囲であり、好ましくは５０～３００質量部の範囲である。
【００３０】
（Ｃ）増ちょう剤；
（Ｃ）成分としての増ちょう剤は、本発明のシリコーン粘着グリース組成物に所望のちょう度を与えるもので、これには従来公知の種々のものを使用することができる。具体的には、アルミニウム、鉛、亜鉛、マンガン、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、バリウム、ストロンチウム、銅、ビスマス、クロム、鉄、ニッケルなどの金属を含有する炭素数が少なくとも８個の脂肪酸の金属石けん、シリカ、アルミナ、酸化鉄、酸化チタン、酸化亜鉛、ガラス繊維、粘土などの無機質元素の微粒子不活性酸化物、窒化ほう素、アリール尿素、フタロシアニン、インダスレン、ポリ四ふっ化エチレン粉末、グラファイト、カーボンブラックなどが例示される。中でもリチウム石鹸及びシリカが特に好ましい。更にシリカは、必要に応じてオルガノシラン、オルガノシラザン、オルガノポリシロキサン、有機フッ素化合物等により、その表面に疎水化処理を施したものを使用してもよい。
【００３１】
この増ちょう剤は、（Ａ）成分１００質量部に対して、１質量部より少ないと十分な粘着性能が発揮できないし、１００質量部より多いと得られるシリコーン粘着グリース組成物が非常に硬くなってしまい、取り扱いが難しくなるため、１～１００質量部の範囲であり、好ましくは１０～８０質量部である。
【００３２】
また、本発明のシリコーン粘着グリース組成物には、必要に応じて本発明の目的を損なわない範囲で防錆剤や酸化防止剤などを加えてもよく、この防錆剤としてはベンゾトリアゾールなどが例示され、酸化防止剤としては４，４’－メチレンビス－２，６－ジターシャリーブチルフェノールなどが例示される。
【００３３】
本発明のシリコーン粘着グリース組成物は、（Ａ）～（Ｃ）成分の所定量を、３本ロールを使用して混練りする。３本ロールを使用することで（Ｂ）成分に凝集物の存在や粒径の不揃いがあっても均一なシリコーン粘着グリース組成物を得ることができる。なお、３本ロールにて混練りする前に、（Ａ）～（Ｃ）成分をプラネタリーミキサー（（株）井上製作所製）などで予め５～６０分間、特に１０～３０分間程度混合しておくことが望ましく、必要に応じて加熱工程を入れてもよい。
【００３４】
このようにして得られた本発明のシリコーン粘着グリース組成物の不混和ちょう度は、２５℃において、１００未満では硬すぎて取り扱いが難しくなる場合があるし、４００を超えると柔らかすぎてオイル分離などが発生する場合があるため、１００～４００の範囲が好ましく、より好ましくは１５０～３５０の範囲である。また、本発明のシリコーン粘着グリース組成物は、高温時での経時ちょう度変化が少ないものである。なお、本発明において、不混和ちょう度は、ＪＩＳ　Ｋ２２２０に準じて測定することができる。
【実施例】

【００３５】
以下、実施例及び比較例を示し、本発明をより詳細に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記の例において、数平均分子量は、トルエンを展開溶媒としたゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）分析におけるポリスチレン換算値を示す。
【００３６】
＜不混和ちょう度測定＞
ＪＩＳ　Ｋ２２２０に準拠し、２５℃での不混和ちょう度を測定した。表１にその結果を示す。
【００３７】
＜耐熱性評価＞
なお、本発明のシリコーン粘着グリース組成物の耐熱性評価は、１５０℃の乾燥機にシリコーン粘着グリース組成物を、５００ｍＬのガラスビーカーに入れて５００時間及び１，０００時間放置し、経時でのちょう度変化を測定した（不混和ちょう度の測定は２５℃）。不混和ちょう度変化が少ないものは、耐熱性が高く、高温にて安定した粘着性を維持できると判断できる。表１にその結果を示す。
【００３８】
［シリコーンレジンパウダーの製造］
＜実施例用シリコーンレジンパウダーＢ－１の製造方法＞
$(CH_3)_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比が０．８５であるシリコーンレジン（数平均分子量２，７００）のキシレン７０質量％溶液（固形分３０質量％）を、スプレードライヤー法を用い（乾燥室入口温度は１５０℃）、シリコーンレジンパウダーＢ－１を得た。得られたシリコーンレジンパウダーＢ－１のカールフィッシャー法により測定した水分含有量は０．３質量％、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー法による溶剤（キシレン）含有量は０．０４質量％、ガスクロマトグラフィー法により測定した低分子シロキサン含有量は０．０３質量％であり、かさ密度は０．７ｇ／ｍＬであった。
【００３９】
＜実施例用シリコーンレジンパウダーＢ－２の製造方法＞
$(CH_3)_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比が０．５５であるシリコーンレジン（数平均分子量３，１００）のトルエン６０質量％溶液（固形分４０質量％）を、スプレードライヤー法を用い（乾燥室入口温度は１１０℃）、シリコーンレジンパウダーＢ－２を得た。得られたシリコーンレジンパウダーＢ－２のカールフィッシャー法により測定した水分含有量は０．２質量％、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー法による溶剤（トルエン）含有量は０．０３質量％、ガスクロマトグラフィー法により測定した低分子シロキサン含有量は０．０２質量％であり、かさ密度は０．６ｇ／ｍＬであった。
【００４０】
＜実施例用シリコーンレジンパウダーＢ－３の製造方法＞
$CH_2=CH(CH_3)_2SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比が０．９５であるシリコーンレジン（数平均分子量３，７００）のキシレン４０質量％及びＩＰＡ３０質量％溶液（固形分３０質量％）を、スプレードライヤー法を用い（乾燥室入口温度は１５０℃）、シリコーンレジンパウダーＢ－３を得た。得られたシリコーンレジンパウダーＢ－３のカールフィッシャー法により測定した水分含有量は０．２質量％、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー法による溶剤（キシレン及びＩＰＡ）含有量は０．０３質量％、ガスクロマトグラフィー法により測定した低分子シロキサン含有量は０．０３質量％であり、かさ密度は０．６ｇ／ｍＬであった。
【００４１】
＜比較例用のシリコーンレジンパウダーＢ－４の製造方法＞
$(CH_3)_3SiO_{1/2}$単位とSiO_2単位とのモル比が０．８５であるシリコーンレジン（数平均分子量２，７００）のキシレン７０質量％溶液（固形分３０質量％）をステンレス容器に入れ、真空乾燥機に投入し、１５０℃、真空下にて目視にて溶剤が完全になくな

るまで揮発させた。得られたシリコーンレジンの固形物をボールミルで粉砕し、シリコーンレジンパウダーＢ－４を得た。得られたシリコーンレジンパウダーＢ－４のカールフィッシャー法により測定した水分含有量は０．８質量％、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー法による溶剤（キシレン）含有量は０．１５質量％、ガスクロマトグラフィー法により測定した低分子シロキサン含有量は０．２質量％であり、かさ密度は０．７ｇ／ｍＬであった。

【００４２】

［実施例１］

粘度が１，０００mm^2／ｓのジメチルシリコーンオイル（ジメチルポリシロキサン）１００ｇに、シリコーンレジンパウダーＢ－１を８５ｇ、$(C_6H_5)_2Si(OH)_2$で表面処理したシリカ４０ｇを加えて、プラネタリーミキサーで１５分間混合後、３本ロールで混練りしたところ、ちょう度（不混和）が２７０のシリコーン粘着グリース組成物が得られた。

【００４３】

［実施例２］

粘度が１，０００mm^2／ｓで、フェニル基含有量が５モル％であるメチルフェニルシリコーンオイル（メチルフェニルポリシロキサン）１００ｇに、シリコーンレジンパウダーＢ－２を２００ｇ、$(C_6H_5)_2Si(OH)_2$で表面処理したシリカ１０ｇを加えて、プラネタリーミキサーで１５分間混合後、３本ロールで混練りしたところ、ちょう度（不混和）が１９０のシリコーン粘着グリース組成物が得られた。

【００４４】

［実施例３］

粘度が３，０００mm^2／ｓで、フェニル基含有量が５モル％であるメチルフェニルシリコーンオイル（メチルフェニルポリシロキサン）１００ｇに、シリコーンレジンパウダーＢ－３を６０ｇ、ヘキサメチルジシラザンで表面処理したシリカ５０ｇを加えて、プラネタリーミキサーで１５分間混合後、３本ロールで混練りしたところ、ちょう度（不混和）が３２０のシリコーン粘着グリース組成物が得られた。

【００４５】

［比較例１］

粘度が１，０００mm^2／ｓのジメチルシリコーンオイル（ジメチルポリシロキサン）１００ｇに、シリコーンレジンパウダーＢ－４を８５ｇ、$(C_6H_5)_2Si(OH)_2$で表面処理したシリカ４０ｇを加えて、プラネタリーミキサーで１５分間混合後、３本ロールで混練りしたところ、ちょう度（不混和）が２９０のシリコーン粘着グリース組成物が得られた。

【００４６】

【表１】

例No.	不混和ちょう度 ＜初期＞	不混和ちょう度 ＜150℃、500時間後＞	不混和ちょう度 ＜150℃、1，000時間後＞
実施例1	270	265	255
実施例2	190	180	175
実施例3	320	315	312
比較例1	290	250	200

【００４７】

実施例１～３のシリコーン粘着グリース組成物は、いずれも１５０℃環境下に曝されても不混和ちょう度の変化が少ないが、比較例１のシリコーン粘着グリース組成物は、不混和ちょう度の変化が大きく、経時で硬くなっていることが観察された。高温下での安定性は実施例１～３のシリコーン粘着グリース組成物がよく、耐熱性が高いことを示している。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			FI	
C10N	*20/02*	*(2006.01)*	C10N	20:02
C10N	*30/08*	*(2006.01)*	C10N	30:08
C10N	*50/10*	*(2006.01)*	C10N	50:10
C10N	*70/00*	*(2006.01)*	C10N	70:00

(56)参考文献 特公昭６０－０４５２４０（ＪＰ，Ｂ１）
特開平０３－１３１６９２（ＪＰ，Ａ）
特開２００６－１１４５４６（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００２／０７２７０２（WO，Ａ１）
特開昭６２－２５７９３９（ＪＰ，Ａ）
米国特許第０６３１３１９０（ＵＳ，Ｂ１）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)

ＩＰＣ	Ｃ０８Ｋ	３／００ － １３／０８
	Ｃ０８Ｌ	１／００ － １０１／１４
	Ｃ０８Ｇ	７７／００ － ７７／６２
	Ｃ０８Ｊ	５／００ － ５／２２
	Ｃ１０Ｍ	１０１／００ － １７７／００
	Ｃ１０Ｎ	１０／００ － ８０／００