

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4875312号
(P4875312)

(45) 発行日 平成24年2月15日 (2012. 2. 15)

(24) 登録日 平成23年12月2日 (2011. 12. 2)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 F 7/08 (2006. 01)

C O 7 F 7/08 C S P X

C O 8 G 59/62 (2006. 01)

C O 8 G 59/62

C O 8 K 5/5419 (2006. 01)

C O 8 K 5/5419

C O 8 L 61/06 (2006. 01)

C O 8 L 61/06

C O 8 L 79/08 (2006. 01)

C O 8 L 79/08 Z

請求項の数 8 (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願2005-72394 (P2005-72394)
 (22) 出願日 平成17年3月15日 (2005. 3. 15)
 (65) 公開番号 特開2006-256970 (P2006-256970A)
 (43) 公開日 平成18年9月28日 (2006. 9. 28)
 審査請求日 平成20年3月4日 (2008. 3. 4)

(73) 特許権者 000110077
 東レ・ダウコーニング株式会社
 東京都千代田区大手町一丁目5番1号
 (72) 発明者 植木 浩
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング・シリコン株式会社内
 (72) 発明者 一色 実
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング・シリコン株式会社内
 (72) 発明者 森田 好次
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング・シリコン株式会社内
 (72) 発明者 加藤 智子
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング・シリコン株式会社内
 最終頁に続く

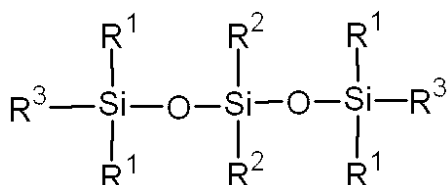
(54) 【発明の名称】 オルガノトリシロキサン、その製造方法、それを含む硬化性樹脂組成物、およびその硬化物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

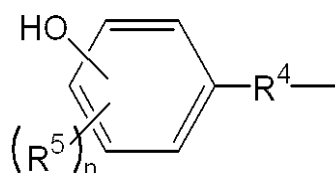
一般式：

【化 1】



(式中、 R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、但し、 R^1 および R^2 の少なくとも1個はアリール基であり、 R^3 は、一般式：

【化 2】



(式中、 R^4 はアルキレン基であり、 R^5 はアルキル基またはアルコキシ基であり、 n は0または1である。)

10

20

で表されるフェノール性水酸基含有有機基である。)

で表されるオルガノトリシロキサン。

【請求項 2】

式中の R^1 がメチル基である、請求項 1 記載のオルガノトリシロキサン。

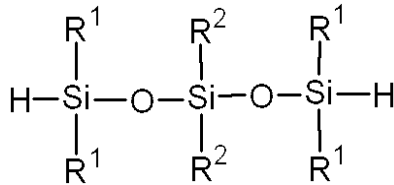
【請求項 3】

式中の R^2 がフェニル基である、請求項 1 記載のオルガノトリシロキサン。

【請求項 4】

一般式：

【化 3】

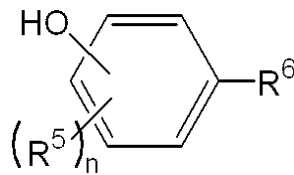


10

(式中、 R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、但し、 R^1 および R^2 の少なくとも 1 個はアリール基である。)

で表されるオルガノトリシロキサンと一般式：

【化 4】



20

(式中、 R^5 はアルキル基またはアルコキシ基であり、 R^6 はアルケニル基であり、 n は 0 または 1 である。)

で表されるフェノール化合物をヒドロシリル化反応することを特徴とする、請求項 1 記載のオルガノトリシロキサンの製造方法。

【請求項 5】

請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載のオルガノトリシロキサンを含有する硬化性樹脂組成物。

30

【請求項 6】

硬化性樹脂が、エポキシ樹脂、イミド樹脂、またはフェノール樹脂である、請求項 5 記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 7】

オルガノトリシロキサンの含有量が、硬化性樹脂 100 重量部に対して 0.01 ~ 100 重量部である、請求項 5 記載の硬化性樹脂組成物。

【請求項 8】

請求項 5 記載の硬化性樹脂組成物を硬化してなる硬化物。

【発明の詳細な説明】

40

【技術分野】

【0001】

本発明は、フェノール性水酸基含有有機基およびアリール基を有する新規なオルガノトリシロキサン、その製造方法、このオルガノトリシロキサンを含有する硬化性樹脂組成物、およびその硬化物に関する。

【背景技術】

【0002】

特許文献 1 ~ 3 にはフェノール性水酸基含有有機基を有する直鎖状のオルガノポリシロキサンが提案されており、特許文献 4、5 にはフェノール性水酸基含有有機基を有するジシロキサンが提案されている。

50

【 0 0 0 3 】

しかし、フェノール性水酸基含有有機基を有する直鎖状のオルガノポリシロキサンは反応性が劣り、また、エポキシ樹脂等の硬化性樹脂に対して相溶性が劣るという問題があった。一方、フェノール性水酸基含有有機基を有するジシロキサンは反応性が優れるものの、エポキシ樹脂等の硬化性樹脂に配合した場合に、得られる硬化物が剛直で、基材密着性が低いという問題があった。

【特許文献 1】特開昭 6 3 - 1 9 9 2 2 0 号公報

【特許文献 2】特開平 9 - 1 5 1 2 5 3 号公報

【特許文献 3】米国特許第 4 4 3 0 2 3 5 号明細書

【特許文献 4】特開平 2 - 1 1 7 6 8 2 号公報

【特許文献 5】特開平 3 - 2 0 3 2 4 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 4 】

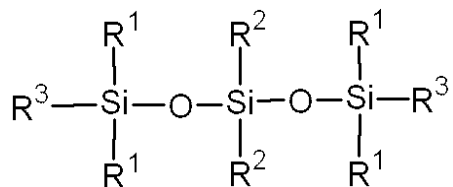
本発明の目的は、良好な反応性を有し、エポキシ樹脂等の硬化性樹脂に対して優れた分散性や溶解性を有する、フェノール性水酸基含有有機基およびアリール基を有する新規なオルガノトリシロキサン、その製造方法、それを含有する、硬化性や基材密着性が良好な硬化性樹脂組成物、およびその硬化物を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 5 】

本発明のオルガノトリシロキサンは、一般式：

【化 1】



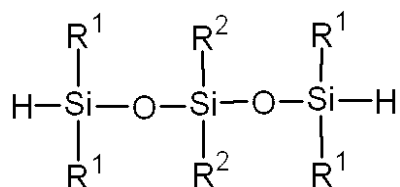
(式中、 R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、但し、 R^1 および R^2 の少なくとも 1 個はアリール基であり、 R^3 はフェノール性水酸基含有有機基である。)

で表される。

【 0 0 0 6 】

本発明のオルガノトリシロキサンの製造方法は、一般式：

【化 2】



(式中、 R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、但し、 R^1 および R^2 の少なくとも 1 個はアリール基である。)

で表されるオルガノトリシロキサンと不飽和炭化水素基を有するフェノール化合物をヒドロシリル化反応することを特徴とする。

【 0 0 0 7 】

また、本発明の硬化性樹脂組成物は、上記のオルガノトリシロキサンを含有することを特徴とする。

さらに、本発明の硬化物は、上記の硬化性樹脂組成物を硬化してなることを特徴とする。

【発明の効果】

【 0 0 0 8 】

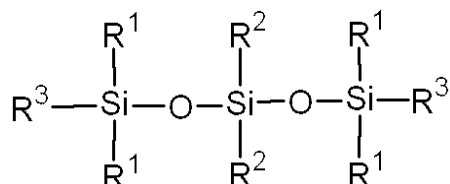
本発明のオルガノトリシロキサンは、良好な反応性を有し、エポキシ樹脂等の硬化性樹脂に対して優れた分散性や溶解性を有する新規な化合物であり、本発明の製造方法は、このような新規な化合物を効率よく製造することができ、本発明の硬化性樹脂組成物は、このような新規な化合物を含有するので、硬化性や基材密着性が良好であり、本発明の硬化物は、基材密着性が良好であるという特徴がある。

【 発明を実施するための最良の形態 】

【 0 0 0 9 】

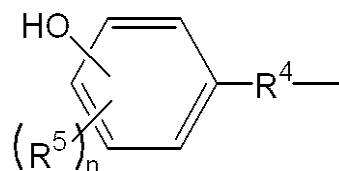
本発明のオルガノトリシロキサンは、一般式：

【 化 3 】



で表される。式中、 R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が例示される。但し、式中、 R^1 および R^2 の少なくとも1個はアリール基であることが必要であり、好ましくは、 R^1 がアルキル基であり、 R^2 がアリール基であり、特に好ましくは、 R^1 がメチル基であり、 R^2 がフェニル基である。また、式中、 R^3 はフェノール性水酸基含有有機基であり、具体的には、芳香族環に直結した水酸基を有する有機基であれば特に限定されないが、好ましくは、一般式：

【 化 4 】



で表される基である。式中、 R^4 はアルキレン基であり、具体的には、エチレン基、プロピレン基、メチルエチレン基、ブチレン基が例示され、好ましくは、プロピレン基である。また、式中、 R^5 はアルキル基またはアルコキシ基であり、 R^5 のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基が例示され、 R^5 のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基が例示される。また、式中、 n は0または1である。

【 0 0 1 0 】

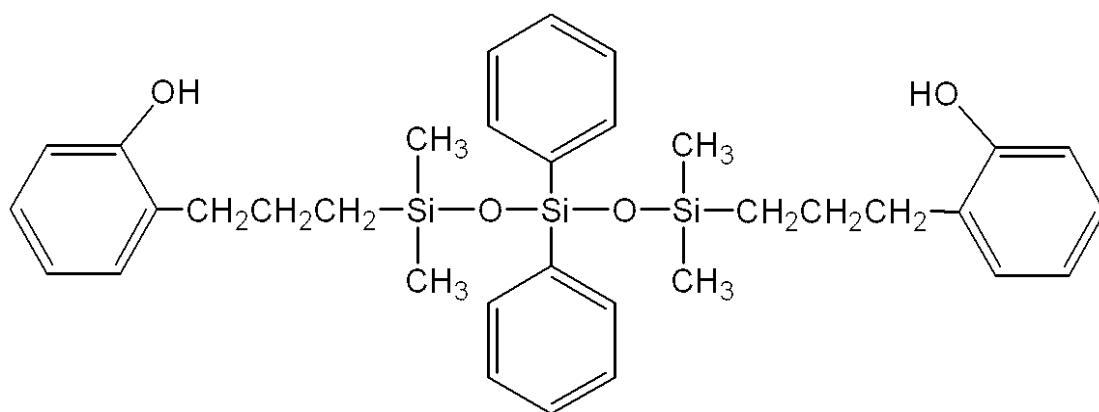
このようなオルガノトリシロキサンとしては、次のような化合物が例示される。

10

20

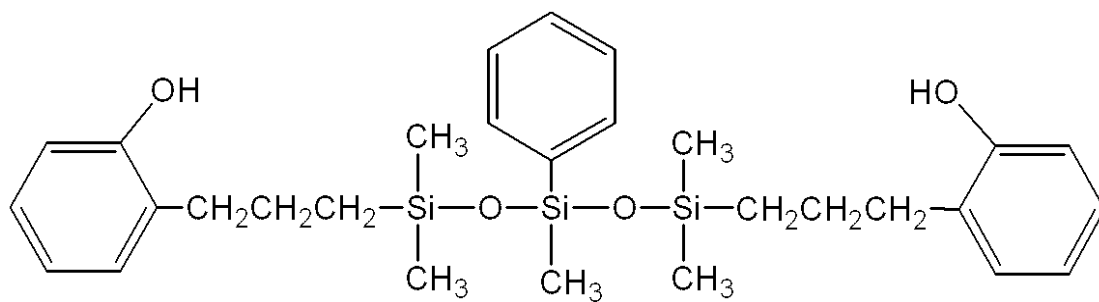
30

【化 5】



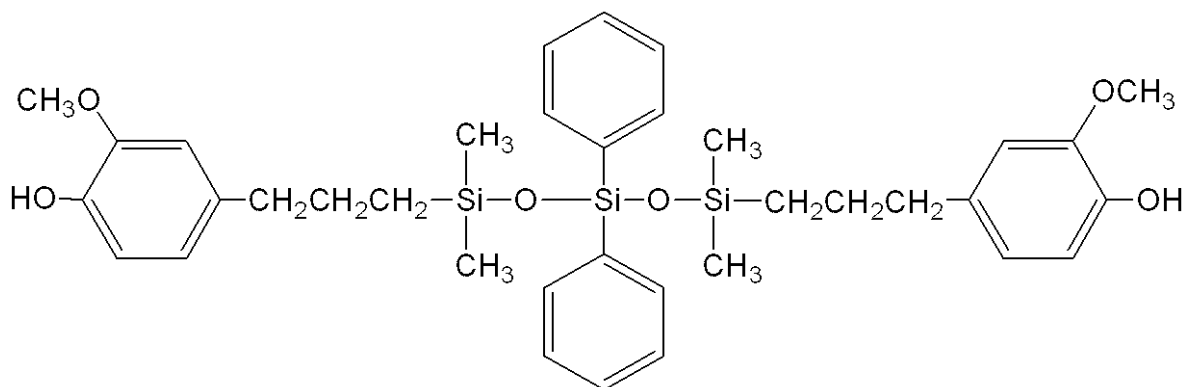
10

【化 6】



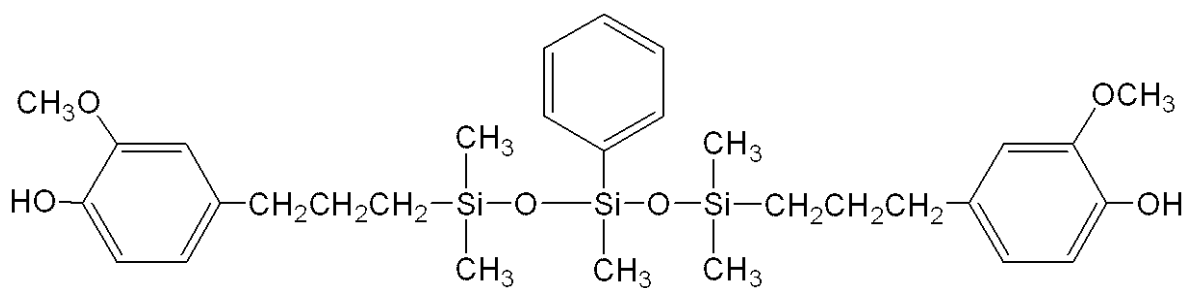
20

【化 7】



30

【化 8】

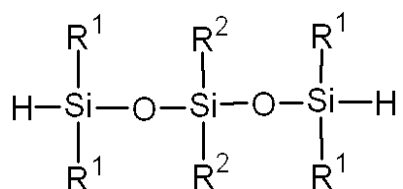


40

【 0 0 1 1 】

本発明の製造方法は、一般式：

【化 9】



50

で表されるオルガノトリシロキサンと脂肪族不飽和炭化水素基を有するフェノール化合物をヒドロシリル化反応することを特徴とする。

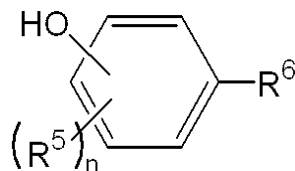
【0012】

上記のオルガノトリシロキサンについて、式中の R^1 および R^2 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、前記と同様の基が例示される。但し、式中、 R^1 および R^2 の少なくとも1個はアリール基であることが必要であり、好ましくは、 R^1 がアルキル基であり、 R^2 がアリール基であり、特に好ましくは、 R^1 がメチル基であり、 R^2 がフェニル基である。

【0013】

また、上記のフェノール化合物は分子中に脂肪族不飽和炭化水素基を有するものであれば、その構造は限定されないが、好ましくは、分子中にアルケニル基を有するものである。このようなフェノール化合物は、一般式：

【化10】



で表すことができる。式中、 R^5 はアルキル基またはアルコキシ基であり、前記と同様の基が例示される。また、式中、 R^6 はアルケニル基であり、具体的には、ビニル基、アリル基、ブテニル基が例示され、好ましくは、アリル基である。また、式中、 n は0または1である。このようなフェノール化合物としては、アリルフェノール、オイゲノールであることが好ましい。

【0014】

上記のオルガノトリシロキサンと脂肪族不飽和炭化水素基を有するフェノール化合物をヒドロシリル化反応するため、ヒドロシリル化反应用触媒を用いることが好ましい。このヒドロシリル化反應用触媒としては、白金系触媒、ロジウム系触媒、パラジウム系触媒が例示され、好ましくは、白金系触媒である。この白金系触媒として、具体的には、白金黒、塩化白金酸、塩化白金酸のアルコール変性物、白金のオレフィン錯体、白金のアルケニルシロキサン錯体、白金のカルボニル錯体が例示される。このヒドロシリル化反応は室温においても進行するが、加熱することが好ましい。また、このヒドロシリル化反応において、オルガノトリシロキサンとフェノール化合物の比率は限定されないが、オルガノトリシロキサン中のケイ素原子結合水素原子とフェノール化合物中の脂肪族不飽和炭化水素基のモル比が1：1～1：10の範囲内であることが好ましく、特に、1：1～1：3の範囲内であることが好ましい。これは、上記範囲の下限未満となる量であると、目的のオルガノトリシロキサンの収率が低下するためであり、一方、上記範囲の上限を超える量であると、未反応のフェノール化合物が多く残存し、場合によっては、目的のオルガノトリシロキサンの純度が低下するからである。

【0015】

このヒドロシリル化反応では、有機溶剤を用いることは任意である。有機溶剤を用いる場合、好ましい有機溶剤としては、ヘキサン、オクタン等の脂肪族炭化水素；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸ブチル、酢酸エチル等のエステル；ジエチルエーテル、ジブチルエーテル、ジオキサン等のエーテル；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトンが例示される。ヒドロシリル化反応後には、反応混合物を減圧下で加熱して、使用した有機溶剤や未反応のフェノール化合物を除去することにより本発明のオルガノトリシロキサンを精製することができる。

【0016】

本発明の硬化性樹脂組成物は、上記のオルガノトリシロキサンを含有することを特徴とする。

本組成物の主成分である硬化性樹脂は特に限定されないが、具体的には、エポキシ樹脂

、フェノール樹脂、ホルムアルデヒド樹脂、キシレン樹脂、キシレン - ホルムアルデヒド樹脂、ケトン - ホルムアルデヒド樹脂、フラン樹脂、尿素樹脂、イミド樹脂、メラミン樹脂、アルキッド樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アニリン樹脂、スルホン - アミド樹脂、これらの有機樹脂の共重合性有機樹脂、これらの硬化性有機樹脂に部分的にオルガノシリル基やオルガノシロキシ基が結合したシリコーン変成有機樹脂、および、これらの有機樹脂の2種以上の混合物が例示され、特に、エポキシ樹脂、イミド樹脂、またはフェノール樹脂であることが好ましい。また、この硬化性樹脂の硬化機構は限定されないが、熱による硬化、紫外線、放射線等の高エネルギー線照射による硬化、湿気による硬化が例示され、特に、熱による硬化であることが好ましい。

【0017】

10

この硬化性樹脂には、任意の成分として、硬化剤、硬化促進剤等を含有してもよい。この硬化剤としては、カルボン酸やスルホン酸等の有機酸、およびその無水物、有機ヒドロキシ化合物、シラノール基、アルコキシ基、またはハロゲノ基等の基を有する有機ケイ素化合物、一級または二級のアミノ化合物、シラノール基を有するシリコーンレジン、シラノール基を有するシリコーンオイル、これらの二種以上の混合物が例示される。また、この硬化促進剤としては、三級アミン化合物、アルミニウムやジルコニウム等の有機金属化合物、ホスフィン等の有機リン化合物、異環型アミン化合物、ホウ素錯化合物、有機アンモニウム塩、有機スルホニウム塩、有機過酸化物、ヒドロシリル化用触媒が例示される。

【0018】

上記のオルガノトリシロキサンは、本組成物の硬化前の流動性を悪化せず、硬化後の基材に対する密着性や接着性を向上させるための成分であり、前記の通りである。本組成物において、このオルガノトリシロキサンの含有量は特に限定されないが、主成分の硬化性樹脂100重量部に対して0.01～100重量部の範囲内であることが好ましく、特に、0.1～50重量部の範囲内であることが好ましい。これは、オルガノトリシロキサンの含有量が上記範囲の下限未満であると、得られる硬化性樹脂組成物の基材に対する密着性や接着性が低下するからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる硬化物の機械的特性が低下するからである。

20

【0019】

本組成物には、その他任意の成分として、光増感剤、高級脂肪酸金属塩、エステル系ワックス、可塑剤、可撓性付与剤、充填剤、シランカップリング剤等を含有してもよい。この可撓性付与剤としては、シリコーンオイル、シリコーンゴムが例示される。この充填剤としては、ガラス繊維、アルミナ繊維、アルミナとシリカを成分とするセラミック繊維、ボロン繊維、ジルコニア繊維、炭化ケイ素繊維、金属繊維、ポリエステル繊維、アラミド繊維、ナイロン繊維、フェノール繊維、天然の動植物繊維等の繊維状充填剤、溶融シリカ、沈澱シリカ、ヒュームドシリカ、焼成シリカ、酸化亜鉛、焼成クレイ、カーボンブラック、ガラスビーズ、アルミナ、タルク、炭酸カルシウム、クレイ、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、二酸化チタン、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、カオリン、雲母、ジルコニア等の粉粒体、およびこれらの2種以上の混合物が例示される。また、このシランカップリング剤としては、ビニルトリメトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、アリルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシランが例示される。

30

40

【0020】

本組成物は、上記の硬化性樹脂、オルガノトリシロキサン、および必要に応じてその他の成分を均一に混合することにより調製される。これらの成分を混合する方法は限定されず、例えば、一軸または二軸の連続混合機、二本ロール、ロスミキサー、ニーダーミキサーを用いることができる。

【0021】

本発明の硬化物は、上記の硬化性樹脂組成物を硬化してなるものであり、接着性に優れ

50

るので、電気・電子部品の封止材、接着材、コーティング材として用いることができる。

【実施例】

【0022】

本発明のオルガノトリシロキサン、その製造方法、それを含有する硬化性樹脂組成物、およびその硬化物について、実施例、比較例により詳細に説明する。なお、硬化性樹脂組成物の外観および粘度、硬化物の複素弾性率および接着性は次のようにして評価した。

【0023】

〔外観〕：

シリカ微粉末と硬化促進剤（アミン触媒）を除いた硬化性樹脂組成物を調製し、真空脱泡して、その外観を目視により観察した。

10

〔粘度〕：

硬化性樹脂組成物の25における粘度を、E型粘度計（株式会社トキメック製のDIGITAL VISCOSMETER DV-U-E II型）を用いて、回転数2.5rpmの条件で測定した。

〔複素弾性率〕：

硬化性樹脂組成物を70mmHgで脱泡した後、幅10mm、長さ50mm、深さ2mmのキャビティを有する金型に充填し、150、2.5MPaの条件で60分間プレス硬化させた後、180のオープン中で2時間2次加熱しての硬化物試験片を作製した。この試験片をARES粘弾性測定装置（Reometric Scientific社製のRDA700）を使用し、ねじれ0.05%、振動数1Hzの条件で、25における複素粘弾性率を測定した。

20

〔接着性〕：

硬化性樹脂組成物を約1cm³、被着体〔ガラス板（パルテック製のフロート板ガラス）、アルミ板（パルテック製のA1050P）、ニッケル板（パルテック製のSPCC-SB）、銅板（パルテック製のC1100P）、金メッキ板（日本テストパネル製のC2801P）、ポリイミドフィルム（宇部興産株式会社製のUpilex 厚さ=125μm）〕上に塗布し、125のオープン中で2時間加熱した後、180のオープン中で2時間加熱して接着性評価用試験体を作製した。これらの試験体から硬化物をデンタルスパチュラを用いて剥がした際の剥離モードを顕微鏡下で目視により観察した。この剥離モードが、凝集破壊した場合をCF、薄皮が残った状態で界面剥離した場合をTCF、界面剥離した場合をAF、として評価した。

30

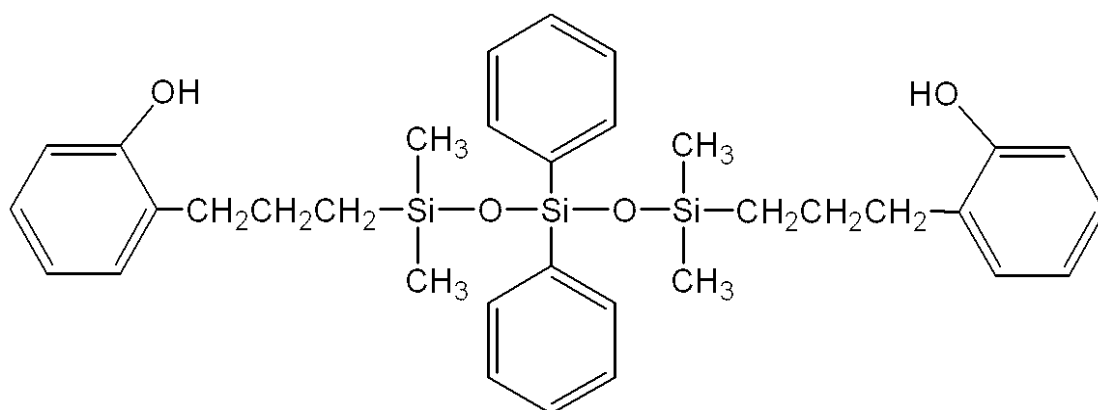
【0024】

〔実施例1〕

攪拌装置付きの4つ口フラスコに、1,1,5,5-テトラメチル-3,3-ジフェニルトリシロキサン81.3g（0.24mol）、トルエン100g、および白金-1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体（白金濃度=4重量%）0.025gを入れ、80に加熱した後、2-アリルフェノール79.1g（0.59mol）を滴下して、120で2時間反応させた。次に、この反応混合物を減圧下、ストリップングして粘度3500mPa・sの褐色液体を142.6g得た。収率は96.8%であった。この液体は、²⁹Si-核磁気共鳴分析（以下、NMR）により、式：

40

【化 1 1】



10

で表されるオルガノトリシロキサンであることが判明した。

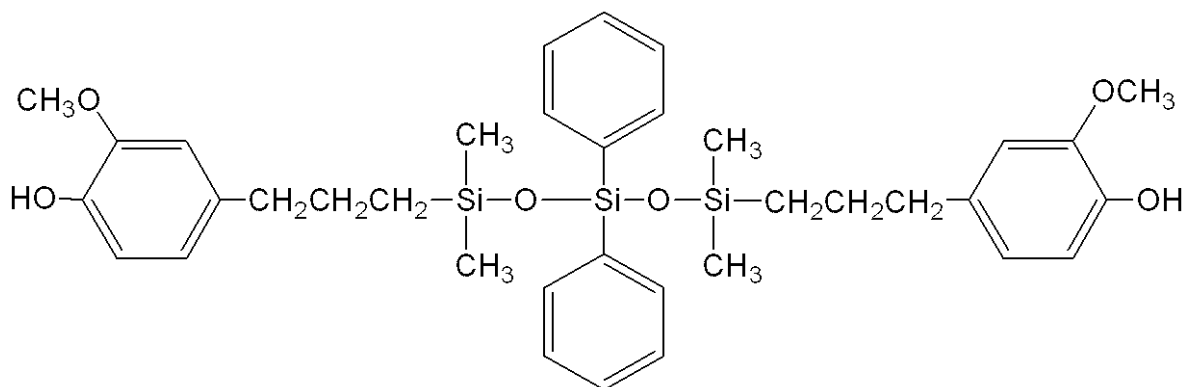
【 0 0 2 5】

[実施例 2]

攪拌装置付きの4つ口フラスコに、1,1,5,5-テトラメチル-3,3-ジフェニルトリシロキサン287.4 g (0.86 mol)、トルエン160 g、白金-1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体(白金濃度=4重量%)0.06 gを入れ、80 に加熱した後、オイゲノール312.6 g (1.90 mol)を滴下して、120 で2時間反応させた。次に、この反応混合物を減圧下、ストリッピングして粘度2700 mPa・sの褐色透明液体564 gを得た。収率は98.7%であった。この液体は、¹³C-NMRおよび²⁹Si-NMRにより、式：

20

【化 1 2】



30

で表されるオルガノトリシロキサンであることが判明した。

【 0 0 2 6】

[実施例 3]

ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン株式会社製のエピコート828、エポキシ当量=190)16.0重量、実施例1で調製したトリシロキサン22.0重量部、カプセル型アミン触媒(旭化成株式会社製のHX-3088、アミン触媒含有量=40重量%)1.0重量部、球状非晶質シリカ微粉末(株式会社アドマテックス製のアドマファイン、平均粒子径=1.5 μm)60.0重量部、および3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン1重量部を混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物の外観および粘度、その硬化物の複素弾性率および接着性を表1に示した。

40

【 0 0 2 7】

[実施例 4]

ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン株式会社製のエピコート828、エポキシ当量=190)16.0重量、実施例2で調製したトリシロキサン22.0重量部、カプセル型アミン触媒(旭化成株式会社製のHX-3088、アミン触媒

50

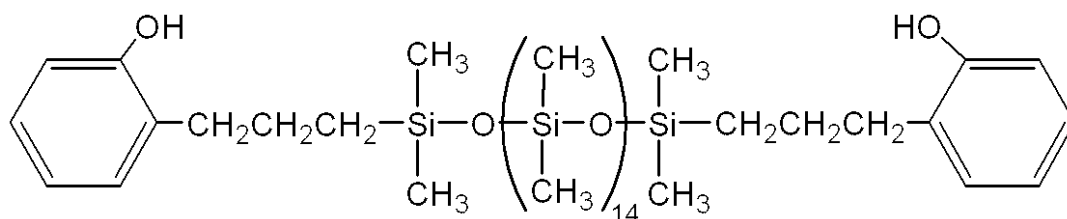
含有量 = 40 重量%) 1.0 重量部、球状非晶質シリカ微粉末 (株式会社アドマテックス製のアドマファイン、平均粒子径 = 1.5 μm) 60.0 重量部、および 3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 1 重量部を混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物の外観および粘度、その硬化物の複素弾性率および接着性を表 1 に示した。

【0028】

[比較例 1]

ビスフェノール A 型液状エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン株式会社製のエピコート 828、エポキシ当量 = 190) 9.0 重量、平均組成式：

【化 13】



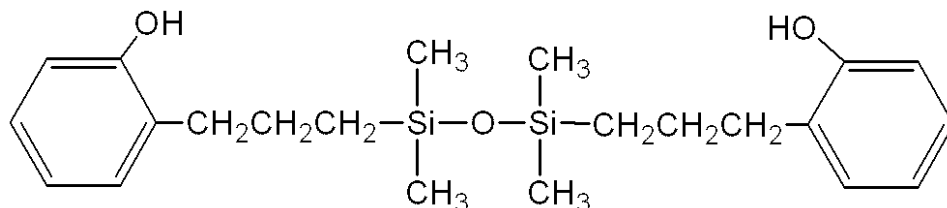
で表されるポリジメチルシロキサン 29.0 重量部、カプセル型アミン触媒 (旭化成株式会社製の HX - 3088、アミン触媒含有量 = 40 重量%) 1.0 重量部、球状非晶質シリカ微粉末 (株式会社アドマテックス製のアドマファイン、平均粒子径 = 1.5 μm) 60.0 重量部、および 3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 1 重量部を混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物の外観および粘度、その硬化物の複素弾性率および接着性を表 1 に示した。

【0029】

[比較例 2]

ビスフェノール A 型液状エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン株式会社製のエピコート 828、エポキシ当量 = 190) 19.0 重量、平均組成式：

【化 14】



で表されるジシロキサン 19.0 重量部、カプセル型アミン触媒 (旭化成株式会社製の HX - 3088、アミン触媒含有量 = 40 重量%) 1.0 重量部、球状非晶質シリカ微粉末 (株式会社アドマテックス製のアドマファイン、平均粒子径 = 1.5 μm) 60.0 重量部、および 3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 1 重量部を混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物の外観および粘度、その硬化物の複素弾性率および接着性を表 1 に示した。

【0030】

[比較例 3：硬化性エポキシ樹脂組成物の調製]

ビスフェノール A 型液状エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン株式会社製のエピコート 828、エポキシ当量 = 190) 22.0 重量、液状のフェノールノボラック樹脂 (明和化成株式会社製の MEH8000、水酸基当量 = 141) 16.0 重量部、カプセル型アミン触媒 (旭化成株式会社製の HX - 3088、アミン触媒含有量 = 40 重量%) 1.0 重量部、球状非晶質シリカ微粉末 (株式会社アドマテックス製のアドマファイン、平均粒子径 = 1.5 μm) 60.0 重量部、および 3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 1 重量部を混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物の外観および粘度、その硬化物の複素弾性率および接着性を表 1 に示した。

【0031】

【表 1】

項目 \ 区分		本発明		比較例		
		実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3
外観		相溶	相溶	白濁 (分離)	相溶	相溶
粘度 (Pa・s)		148	104	171	65	200
複素弾性率(MPa)		2160	1950	80*	1580	2900
接着性	ガラス板	CF	CF	CF	CF	CF
	ニッケル板	CF	CF	CF	CF	CF
	銅板	CF	CF	CF	CF	CF
	アルミ板	CF	CF	CF	CF	CF
	金メッキ板	CF	CF	CF	CF	CF
	ポリイミドフィルム	CF	CF	CF	CF	CF

10

*：硬化物表面にオイルブリードが認められ、不均一であった。

【0032】

本発明のオルガノトリシロキサンは、硬化性樹脂への分散性が良く、硬化性樹脂組成物を低粘度とすることができ、硬化後には、その反応性の高さから、硬化物に良好な複素弾性率を与え、基材への接着性も高いことがわかった。

【産業上の利用可能性】

【0033】

本発明のオルガノトリシロキサンは、良好な反応性を有し、エポキシ樹脂等の硬化性樹脂に対して優れた分散性や溶解性を有するので、硬化性エポキシ樹脂等の硬化性樹脂の改質剤として好適である。また、本発明の硬化性樹脂組成物は、硬化性や基材密着性が良好

20

30

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】実施例1で調製したオルガノトリシロキサンの¹³C-NMRスペクトルチャートである。

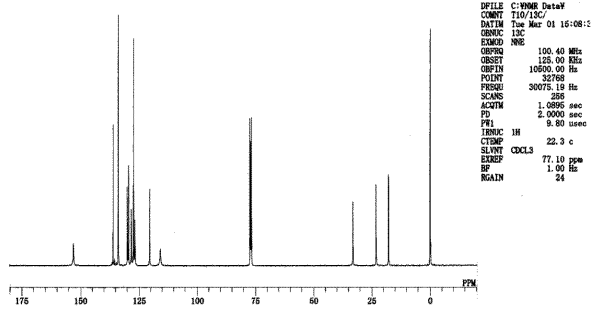
【図2】実施例1で調製したオルガノトリシロキサンの²⁹Si-NMRスペクトルチャートである。

【図3】実施例2で調製したオルガノトリシロキサンの¹³C-NMRスペクトルチャートである。

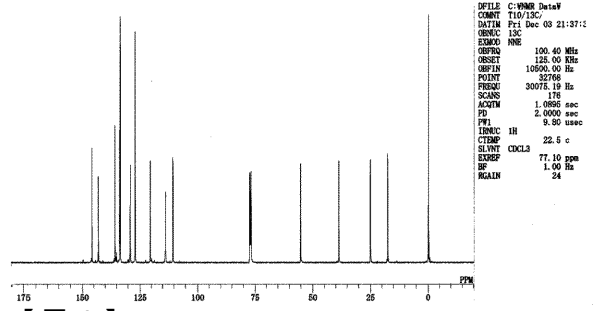
【図4】実施例2で調製したオルガノトリシロキサンの²⁹Si-NMRスペクトルチャートである。

40

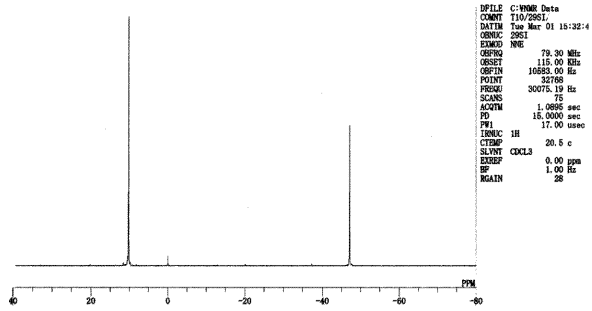
【 図 1 】



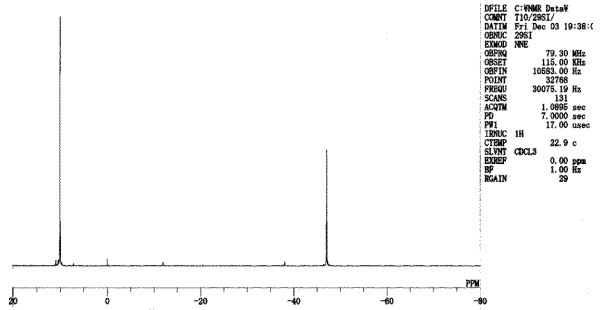
【 図 3 】



【 図 2 】



【 図 4 】



フロントページの続き

審査官 水島 英一郎

(56)参考文献 米国特許出願公開第2003/0105226 (US, A1)

特開平02-117682 (JP, A)

特開平03-020324 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07F 7/08

C A p l u s (S T N)

R E G I S T R Y (S T N)