(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
2018年6月7日(07.06.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/101009 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 23/16 (2006.01)　*C08L 83/04* (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01)　*C08L 83/05* (2006.01)
C08K 5/14 (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2017/040595

(22) 国際出願日：　2017年11月10日(10.11.2017)

(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 2016-232824　2016年11月30日(30.11.2016) JP

(71) 出願人: 信越化学工業株式会社(**SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目６番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 吉田　政行 (**YOSHIDA Masayuki**); 〒3790224 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 Gunma (JP). 五十嵐 実(**IGARASHI Minoru**); 〒3790224 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 Gunma (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人英明国際特許事務所(**PATENT PROFESSIONAL CORPORATION EI-MEI PATENT OFFICE**); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目１６番１２号 銀座大塚ビル２階 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, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(54) **Title:** POLYOLEFIN-BASED RUBBER COMPOSITION

(54) 発明の名称： ポリオレフィン系ゴム組成物

(57) **Abstract:** The present invention is a polyolefin-based rubber composition characterized by comprising (A) 100 parts by mass of an ethylene/α-olefin/unconjugated polyene random copolymer, (B) 1-100 parts by mass of an organopolysiloxane represented by empirical formula (1), having no or one to three alkenyl groups in the molecule, and having a degree of polymerization of 100 or higher, and (C) reinforcing silica having a specific surface area, as measured by a BET method, of 50 m^2/g or larger, the amount of the component (C) being 10-100 parts by mass per 100 parts by mass of the sum of the components (A) and (B). $R_aSiO_{(4-a)/2}$ (1) (In formula (1), the R moieties are the same or different and each represent a monovalent hydrocarbon group, and a is a positive number of 1.95-2.05.) The polyolefin-based rubber composition of the present invention can be compression-molded and vulcanized by, for example, steaming to give cured rubber objects, which suffer no decrease in mechanical properties including tensile strength and elongation and have excellent heat resistance. The surfaces of the cured rubber objects have satisfactory slipperiness.

(57) 要約：本発明は、（Ａ）エチレン・αーオレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体 １００質量部 （Ｂ）下記平均組成式（１）で示される、１分子中に０個又は１～３個のアルケニル基を有する重合度１００以上のオルガノポリシロキサン １～１００質量部 $R_aSiO_{(4-a)/2}$ （１） （式中、Ｒは同一又は異種の１価炭化水素基を示し、ａは１．９５～２．０５の正数である。） （Ｃ）ＢＥＴ法による比表面積が５０m^2／ｇ以上である補強性シリカ （Ａ），（Ｂ）成分の合計１００質量部に対し、１０～１００質量部 を含有してなることを特徴とするポリオレフィン系ゴム組成物である。本発明のポリオレフィン系ゴム組成物によれば、圧縮成型やスチーム加硫等が可能であり、そのゴム硬化物の引張強さや伸び等の機械的特性の低下がなく、耐熱性に優れており、硬化後の表面が良好な滑り性を有する。

WO 2018/101009 A1

［続葉有］

(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:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明　細　書

発明の名称 ： ポリオレフィン系ゴム組成物

技術分野

[0001] 本発明は、表面滑り性を有する硬化物を与えるポリオレフィン系ゴム組成物に関し、特に、自動車用ウエザーストリップ材料、ワイパー材料として有用な表面滑り性を有する硬化物を与えるポリオレフィン系ゴム組成物に関する。

背景技術

[0002] 一般にポリオレフィン系合成ゴムは電気的性質及び機械的性質に優れていることから、電気絶縁材料、ラジエーターホース、ウエザーストリップ、ワイパーブレードなどに広く応用されている。

[0003] このポリオレフィン系合成ゴムに表面滑り性を付与する目的でオルガノポリシロキサンを添加することは、特開２０１１－０５２０３１号公報（特許文献１）や国際公開第２００８／７７９８号（特許文献２）などに提案されている。

[0004] しかし、上記特許文献１には、オルガノポリシロキサンの分子量やアルケニル基量については言及されておらず、上記特許文献２には、分子量１００～２，０００，０００程度のポリシロキサンを添加するという記載はあるものの、低分子量のオルガノポリシロキサンを添加した場合、成型品の表面にポリシロキサンがブリードアウトし、異物の付着等が発生することがあるため好ましくない。また、いずれの場合であっても、十分な滑り性を得るには至っていない。

[0005] また、このポリオレフィン系合成ゴムにオルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金触媒とを添加することは、特開２０１６－１４１７９０号公報（特許文献３）や特開２００７－１７７０８２号公報（特許文献４）などに提案されている。しかし、オルガノハイドロジェンポリシロキサンはポリオレフィン系合成ゴムの架橋剤として用いられるものであり、その結果、１分

子あたり少なくとも２個のＳｉ－Ｈ基を有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが必要とされている。また、特開２０１４－１３６７２９号公報（特許文献５）には、ポリオレフィン系合成ゴムに平均片末端のオルガノハイドロジェンポリシロキサンを付加させる技術が提案されているが、平均片末端のオルガノハイドロジェンポリシロキサンは高価であり、また、機械的性質が低下する問題があった。

[0006] これらの方法とは別に、ポリオレフィン系合成ゴムの硬化物表面に溶剤希釈型やエマルジョン型のシリコーン系組成物等をコーティングする等の手法が知られているが、生産性、安全性、コスト等の点で問題があった。更に、ポリオレフィン系合成ゴムを各種工業製品、特に、自動車部品等に適用する際には、所望の優れた耐熱性を有する必要があった。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開２０１１－０５２０３１号公報

特許文献2：国際公開第２００８／７７９８号

特許文献3：特開２０１６－１４１７９０号公報

特許文献4：特開２００７－１７７０８２号公報

特許文献5：特開２０１４－１３６７２９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、圧縮成型やスチーム加硫等が可能であり、硬化後の表面が滑り性を示し、且つ、機械的特性の低下がなく、耐熱性に優れるポリオレフィン系ゴム組成物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

[0009] 本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、エチレン・プロピレン・エチリデンノルボルネン共重合体に代表される、脂肪族不飽

和基を有するエチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体に、１分子中に０個又は１～３個のアルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを配合すると、その硬化物の表面が良好な滑り性を示すことを見出し、本発明をなすに至ったものである。

[0010] 従って、本発明は、下記のポリオレフィン系ゴム組成物を提供する。

〔１〕（Ａ）エチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体　１００質量部

（Ｂ）下記平均組成式（１）で示される、１分子中に０個又は１～３個のアルケニル基を有する重合度１００以上のオルガノポリシロキサン　１～１００質量部

$$R_aSiO_{(4-a)/2} \quad (1)$$

（式中、Ｒは同一又は異種の１価炭化水素基を示し、ａは１．９５～２．０５の正数である。）

（Ｃ）ＢＥＴ法による比表面積が５０m^2／ｇ以上である補強性シリカ　（Ａ），（Ｂ）成分の合計１００質量部に対し、１０～１００質量部

を含有してなることを特徴とするポリオレフィン系ゴム組成物。

〔２〕上記（Ｂ）成分の式（１）において、Ｒが炭素原子数１～８のアルキル基又は炭素原子数６～１２のアリール基から選ばれる基であり、且つ、アルケニル基が０個である〔１〕記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

〔３〕更に、（Ｄ）架橋剤として、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと付加反応触媒との組合せ、及び／又は、有機過酸化物を含む〔１〕又は〔２〕記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

〔４〕炭化水素系合成油を含む〔１〕～〔３〕のいずれか１項記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

〔５〕上記ゴム組成物の硬化物の表面摩擦係数が０．３以下のものである〔１〕～〔４〕のいずれか１項記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

〔６〕上記ゴム組成物の硬化物が、自動車用ウエザーストリップ部材又は自動車用ワイパー部材に使用される〔１〕～〔５〕のいずれか１項記載のポリ

オレフィン系ゴム組成物。

発明の効果

[0011] 本発明のポリオレフィン系ゴム組成物によれば、圧縮成型やスチーム加硫等が可能であり、そのゴム硬化物の引張強さや伸び等の機械的特性の低下がなく、耐熱性に優れており、硬化後の表面が良好な滑り性を有するものである。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明につき、更に詳しく説明する。

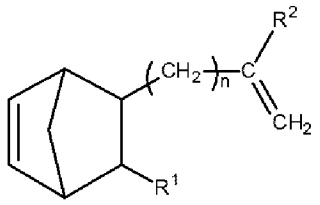
本発明の（Ａ）成分であるエチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体は、本発明のポリオレフィン系ゴム組成物の主成分ポリマーとなるものであり、特に、エチレンと、炭素原子数３～２０のα－オレフィンと、非共役ジエンとのランダム共重合体であることが好適である。

[0013] 炭素原子数３～２０のα－オレフィンとしては、具体的には、プロピレン、１－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、１－オクテン、１－ノネン、１－デセン、１－ウンデセン、１－ドデセン、１－トリデセン、１－テトラデセン、１－ペンタデセン、１－ヘキサデセン、１－ヘプタデセン、１－ノナデセン、１－エイコセン、９－メチル－１－デセン、１１－メチル－１－ドデセン、１２－エチル－１－テトラデセンなどが挙げられる。中でも、炭素原子数３～１０のα－オレフィンが好ましく、特にプロピレン、１－ブテン、１－ヘキセン、１－オクテンなどが好ましく用いられる。これらのα－オレフィンは、単独で、あるいは２種以上組合せて用いられる。

[0014] 非共役ポリエンの例としては、下記一般式（２）又は（３）で示されるノルボルネン骨格を有する環状非共役ジエンが好ましく用いられる。

[0015]

[化1]



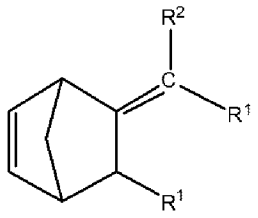
(2)

[0016] 上記一般式（２）において、ｎは０～１０の整数であり、Ｒ[1]は水素原子又は炭素原子数１～１０のアルキル基である。Ｒ[1]の炭素原子数１～１０のアルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、イソペンチル基、ｔ－ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基などが挙げられる。Ｒ[2]は水素原子又は炭素原子数１～５のアルキル基である。Ｒ[2]の炭素原子数１～５のアルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、イソペンチル基、ｔ－ペンチル基、ネオペンチル基などが挙げられ、Ｒ[1]、Ｒ[2]の一部又は全部が塩素原子などのハロゲン原子で置換されていてもよい。

[0017] 上記一般式（２）で表されるノルボルネン骨格含有環状非共役ジエンの具体例としては、５－ビニル－２－ノルボルネン、５－（２－プロペニル）－２－ノルボルネン、５－（３－ブテニル）－２－ノルボルネン、５－（１－メチル－２－プロペニル）－２－ノルボルネン、５－（４－ペンテニル）－２－ノルボルネン、５－（１－メチル－３－ブテニル）－２－ノルボルネン、５－（５－ヘキセニル）－２－ノルボルネン、５－（１－メチル－４－ペンテニル）－２－ノルボルネン、５－（２，３－ジメチル－３－ブテニル）－２－ノルボルネン、５－（２－エチル－３－ブテニル）－２－ノルボルネン、５－（６－ヘプテニル）－２－ノルボルネン、５－（３，４－ジメチル－４－ペンテニル）－２－ノルボルネン、５－（３－エチル－４－ペンテニ

ル）－２－ノルボルネン、５－（７－オクテニル）－２－ノルボルネン、５－（２－メチル－６－ヘプテニル）－２－ノルボルネン、５－（１，２－ジメチル－５－ヘキセシル）－２－ノルボルネン、５－（５－エチル－５－ヘキセニル）－２－ノルボルネン、５－（１，２，３－トリメチル－４－ペンテニル）－２－ノルボルネン、６－クロロメチル－５－イソプロペニル－２－ノルボルネンなど挙げられる。この中でも、５－ビニル－２－ノルボルネン、５－（２－プロペニル）－２－ノルボルネン、５－（３－ブテニル）－２－ノルボルネン、５－（４－ペンテニル）－２－ノルボルネン、５－（５－ヘキセニル）－２－ノルボルネン、５－（６－ヘプテニル）－２－ノルボルネン、５－（７－オクテニル）－２－ノルボルネンが好ましい。

[0018] [化2]



（３）

[0019] 上記一般式（３）において、R^1は独立して水素原子又は炭素原子数１～１０のアルキル基であり、R^2は水素原子又は炭素原子数１～５のアルキル基である。R^1、R^2のアルキル基の具体例としては、上記式（２）の具体例と同じアルキル基を挙げることができる。

[0020] 上記一般式（３）で表されるノルボルネン骨格含有環状非共役ジエンとしては、具体的には、５－メチレン－２－ノルボルネン、５－エチリデン－２－ノルボルネン、５－（１－メチルエチリデン）－２－ノルボルネン、５－プロピリデン－２－ノルボルネンなどが挙げられる。この中でも、５－メチレン－２－ノルボルネン、５－エチリデン－２－ノルボルネンが好ましい。これらの式（２）又は（３）で表されるノルボルネン骨格含有環状非共役ジエンは、単独で、或いは２種以上組合せて用いることができる。

[0021] 上記一般式（２）及び（３）以外の他の非共役ポリエンとしては、具体的には、１，４－ヘキサジエン、３－メチル－１，４－ヘキサジエン、４－メ

チル－１，４－ヘキサジエン、５－メチル－１，４－ヘキサジエン、４，５－ジメチル－１，４－ヘキサジエン、７－メチル－１，６－オクタジエン等の鎖状非共役ジエン；テトラヒドロインデン、２－メチルテトラヒドロインデン、ジシクロペンタジエン等の環状非共役ジエン；２，３－ジイソプロピリデン－５－ノルボルネン、２－エチリデン－３－イソプロピリデン－５－ノルボルネン、２－プロペニル－２，５－ノルボルナジエン等のノルボルネン骨格含有環状非共役トリエンなどが挙げられる。

[0022] 本発明の（Ａ）成分のエチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体は、炭素原子数３～２０のα－オレフィンに由来する構造単位が、全構造単位１００モル％中、１０～５０モル％であり、非共役ポリエンランダム共重合体は、全構造単位１００モル％中、１．０～６．０モル％であることが好ましい。このモル比が上記範囲内にあると、特に強度特性及びゴム弾性に優れるゴム組成物が得られる。

[0023] このような（Ａ）成分のエチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体としては、市販品を用いることができ、例えば、ＪＳＲ社製のＥＰ２１、ＥＰ２７、ＥＰ４３、三井化学社製のＥＰＴ３０４５、住友化学社製のエスプレン３０１、エスプレン５０２、ＬＡＮＸＥＳＳ社製のＫｅｌｔａｎ　２６５０、ダウエラストマー社製のＮＯＲＤＥＬ　ＩＰ３６４０などが挙げられる。

[0024] 本発明の（Ｂ）成分であるオルガノポリシロキサンは、ポリオレフィン系ゴム組成物に表面滑り性を付与するための添加剤であり、１分子中に０個又は１～３個のアルケニル基を有する。この（Ｂ）成分であるオルガノポリシロキサンは下記平均組成式（１）で示される。

[0025] $R_aSiO_{(4-a)/2}$ （１）

（式中、Ｒは同一又は異種の１価炭化水素基を示し、ａは１．９５～２．０５の正数である。）

[0026] ここで、上記式（１）中、Ｒで示されるケイ素原子に結合した非置換又は置換の１価炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプ

ロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基、オクテニル基等のアルケニル基などが挙げられ、これらの基の水素原子の一部又は全部をフッ素、臭素、塩素等のハロゲン原子で置換してもよいが、Ｒ全ての９０モル％以上がメチル基であることが好ましい。

[0027] また、上記式中、Ｒとしては、上記の炭素素原子数１～８のアルキル基又は炭素原子数６～１２のアリール基から選ばれる基であることが好適である。

[0028] （Ｂ）成分のオルガノポリシロキサンの配合量は、（Ａ）成分１００質量部に対して１～１００質量部、好ましくは５～１００質量部、更に好ましくは２０～１００質量部となる量で用いることが望ましい。１質量部より少ないと、有用な表面滑り性を得られず、また、１００質量部を超えると、強度が著しく低下してしまう。

[0029] また、（Ｂ）成分のオルガノポリシロキサンの重合度は１００以上であり、好ましくは１，０００～１００，０００、より好ましくは３，０００～５０，０００、更に好ましくは４，０００～２０，０００の範囲である。この重合度が１００未満であると、成型品の表面にポリシロキサンがブリードアウトしてしまい、異物の付着等が発生することがある。

[0030] なお、上記の重合度は、下記条件で測定したＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）分析におけるポリスチレン換算の重量平均重合度として求められる。

[0031] ［測定条件］

・展開溶媒：トルエン

・流量：１ｍＬ／ｍｉｎ

・検出器：示差屈折率検出器（ＲＩ）

・カラム：ＫＦ－８０５Ｌ×２本（Ｓｈｏｄｅｘ社製）

・カラム温度：２５℃

・試料注入量：３０μＬ（濃度０．２質量％のトルエン溶液）

[0032] 更に、（Ｂ）成分のオルガノポリシロキサンのアルケニル基の個数は０個又は１～３個であり、好ましくは０個又は１～２個であり、より好ましくは０個（即ち、アルケニル基を有さないこと）である。１分子中のアルケニル基が４個以上であると、摩擦係数が著しく上昇し滑り性が損なわれる。

[0033] 本発明の（Ｃ）成分である補強性シリカは、得られるポリオレフィン系ゴム組成物に対して優れた機械的特性を付与する充填材として作用する。該補強性シリカは、沈降シリカ（湿式シリカ）でもヒュームドシリカ（乾式シリカ）でもよく、表面に多数のシラノール（ＳｉＯＨ）基が存在しているものである。本発明において（Ｃ）成分の補強性シリカのＢＥＴ法による比表面積は、５０m^2／ｇ以上であることが必要であり、好ましくは１００～４００m^2／ｇである。この比表面積が５０m^2／ｇ未満であると、（Ｃ）成分による補強効果が不十分となる。

[0034] （Ｃ）成分の補強性シリカは、未処理の状態で使用しても、必要に応じて、オルガノポリシロキサン、オルガノポリシラザン、クロロシラン、アルコキシシラン等の有機ケイ素化合物で表面処理されたものを用いてもよい。これらの補強性シリカは、１種単独で用いても、２種以上を組合せて用いてもよい。

[0035] （Ｃ）成分の補強性シリカの配合量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の合計１００質量部に対し、１０～１００質量部であり、好ましくは２０～８０質量部である。

[0036] 本発明のポリオレフィン系ゴム組成物は、上記（Ａ）～（Ｃ）成分に加えて、（Ｄ）架橋剤（硬化剤）を添加することができる。（Ｄ）成分の硬化剤は、本発明のポリオレフィン系ゴム組成物において、（Ａ）成分のエチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体や（Ｂ）成分のオルガ

ノポリシロキサンの分子鎖中に存在するアルケニル基と反応し、硬化させ得るものであれば特に限定されない。（Ｄ）成分は１種単独で使用しても２種以上を併用してもよい。（Ｄ）成分としては、例えば、（Ｄ－１）有機過酸化物硬化剤、（Ｄ－２）付加反応型硬化剤、及び（Ｄ－１）成分と（Ｄ－２）成分との組合せが挙げられる。

[0037] （Ｄ－１）有機過酸化物硬化剤としては、例えば、ベンゾイルパーオキサイド、ｔ－ブチルクミルパーオキサイド、２，４－ジクロロベンゾイルパーオキサイド、ｐ－メチルベンゾイルパーオキサイド、ｏ－メチルベンゾイルパーオキサイド、２，４－ジクミルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、ｔ－ブチルパーベンゾエート、１，６－ヘキサンジオール－ビス－ｔ－ブチルパーオキシカーボネート等が挙げられる。有機過酸化物の添加量は、（Ａ）及び（Ｂ）成分１００質量部に対して０．１～１０質量部、特に０．２～５質量部が好ましい。配合量が少なすぎると硬化が不十分となる場合があり、多すぎると有機過酸化物の分解残渣によりシリコーンゴム硬化物が黄変する場合がある。なお、（Ａ）及び（Ｂ）成分に、（Ｄ－１）成分と（Ｄ－２）成分とを、それぞれ上記配合量の範囲内で組合せて配合した、付加反応硬化と有機過酸化物硬化とを併用した共加硫型のポリオレフィン系ゴム組成物とすることもできる。

[0038] （Ｄ－２）付加反応型硬化剤としては、オルガノハイドロジェンポリシロキサンとヒドロシリル化触媒とを組合せて用いる。オルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、１分子中に２個以上、好ましくは３個以上、より好ましくは３～２００個、更に好ましくは４～１００個程度のケイ素原子に結合した水素原子（即ち、ＳｉＨ基）を含有すれば、その構造は、直鎖状、環状、分枝状、三次元網状構造のいずれであってもよく、該ＳｉＨ基は、分子鎖末端にあっても、分子鎖の途中にあっても、その両方にあってもよい。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、付加反応硬化型シリコーンゴム組成物の架橋剤として公知のオルガノハイドロジェンポリシロキサンを

用いることができ、例えば、下記平均組成式（４）で表されるオルガノハイドロジェンポリシロキサンを用いることができる。

$R^3_pH_qSiO_{(4-p-q)/2}$ （４）

[0039] 上記平均組成式（４）中、R^3は１価炭化水素基を示し、同一であっても異なっていてもよく、脂肪族不飽和結合を除いたものであることが好ましい。即ち、R^3としては、炭素原子数１～１２、特に１～８のものが好ましく、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、ベンジル基、２－フェニルエチル基、２－フェニルプロピル基等のアラルキル基等が挙げられる。なお、これらの基の水素原子の一部又は全部をハロゲン原子等で置換してもよく、例えば３，３，３－トリフロロプロピル基等が挙げられる。

[0040] 上記平均組成式（４）中、ｐ，ｑは０＜ｐ＜３、好ましくは０．５≦ｐ≦２．２、より好ましくは１．０≦ｐ≦２．０、０＜ｑ≦３、好ましくは０．００２≦ｑ≦１．１、より好ましくは０．００５≦ｑ≦１、０＜ｐ＋ｑ≦３、好ましくは１≦ｐ＋ｑ≦３、より好ましくは１．００２≦ｐ＋ｑ≦２．７を満たす正数である。

[0041] また、このオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、ＪＩＳ Ｋ ７１１７－１：１９９９記載の方法で回転粘度計を用いた２５℃における粘度が０．５～１０，０００ｍＰａ・ｓ、特に１～３００ｍＰａ・ｓであることが好ましい。

[0042] 上記平均組成式（４）で表されるオルガノハイドロジェンポリシロキサンとして、具体的には、例えば、１，１，３，３－テトラメチルジシロキサン、１，３，５，７－テトラメチルシクロテトラシロキサン、トリス（ハイドロジェンジメチルシロキシ）メチルシラン、トリス（ハイドロジェンジメチルシロキシ）フェニルシラン、メチルハイドロジェンシクロポリシロキサン、メチルハイドロジェンシロキサン・ジメチルシロキサン環状共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、両末

端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジフェニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体、両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・メチルフェニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジメチルシロキサン・ジフェニルシロキサン共重合体、両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンシロキサン・ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、$(CH_3)_2HSiO_{1/2}$単位と$(CH_3)_3SiO_{1/2}$単位と$SiO_{4/2}$単位とからなる共重合体、$(CH_3)_2HSiO_{1/2}$単位と$SiO_{4/2}$単位とからなる共重合体、$(CH_3)_2HSiO_{1/2}$単位と$SiO_{4/2}$単位と$(C_6H_5)_3SiO_{1/2}$単位とからなる共重合体などや、上記例示化合物において、メチル基の一部又は全部を他のアルキル基や、フェニル基等に置換したものなどが挙げられる。

[0043] 上記オルガノハイドロジェンポリシロキサンの配合量は、（Ａ）及び（Ｂ）成分１００質量部に対し０．１～４０質量部が好ましい。また、ケイ素原子に結合した水素原子（≡ＳｉＨ基）の割合は、（Ａ）及び（Ｂ）成分のアルケニル基１個に対し、０．５～１０個の範囲が好適であり、好ましくは０．７～５個の範囲が好適である。この割合は０．５個未満であると、架橋が十分でなく、十分な機械的強度が得られない場合がある。また、１０個を超えると、硬化後の物理特性が低下し、特に耐熱性が悪くなったり、圧縮永久歪が大きくなったりする場合がある。

[0044] ヒドロシリル化触媒は、（Ａ）及び（Ｂ）成分のアルケニル基とオルガノハイドロジェンポリシロキサンのケイ素原子結合水素原子（ＳｉＨ基）とをヒドロシリル化付加反応させる触媒である。ヒドロシリル化触媒としては、

白金族金属系触媒が挙げられ、白金族金属の単体とその化合物があり、これには従来、付加反応硬化型シリコーンゴム組成物の触媒として公知のものが使用できる。例えば、シリカ、アルミナ又はシリカゲルのような担体に吸着させた粒子状白金金属、塩化第二白金、塩化白金酸、塩化白金酸６水塩のアルコール溶液等の白金触媒、パラジウム触媒、ロジウム触媒等が挙げられるが、白金又は白金化合物（白金触媒）が好ましい。

[0045] ヒドロシリル化触媒の添加量は、付加反応を促進できればよく、通常、白金族金属量に換算して（Ａ）及び（Ｂ）成分のオルガノポリシロキサンに対して、通常、１質量ｐｐｍ～１質量％の範囲であり、好ましくは１０～５００質量ｐｐｍの範囲である。この添加量が１質量ｐｐｍ未満であると、付加反応が十分促進されず、硬化が不十分である場合がある。一方、１質量％を超えると、これより多く加えても、反応性に対する影響も少なく、不経済となる場合がある。

[0046] 本発明のゴム組成物には、上述した（Ａ）～（Ｄ）成分に加え、必要に応じて硬化物の物性を調整するための任意成分、例えば、アルミニウムシリケート、石英粉末、溶融石英粉末、珪藻土、炭酸カルシウム、二酸化チタン、カーボンブラック等の充填材、老化防止剤、紫外線吸収剤、着色剤などを添加することができる。なお、充填材の配合量は、上記（Ｃ）成分の配合量も含めて、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の合計１００質量部に対して５００質量部以下とすることが好ましい。５００質量部より多くなると、硬化物が硬くて脆いものになる場合がある。

[0047] 更に、本発明のポリオレフィン系ゴム組成物は、上述した（Ａ）～（Ｃ）成分、必要に応じて（Ｄ）成分等を加えた所定量を、二本ロール、ニーダー、バンバリーミキサー等で混練することによって得ることができる。この際、炭化水素系の合成油を添加すると、組成物の粘度を下げることができ、これにより加工性を向上させることができる。なお、炭化水素系合成油の添加量としては、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の合計１００質量部に対して３～２００質量部とすることが好ましく、より好ましくは５～１００質量部である

。この添加量が２００質量部より多いと、硬化物の強度が十分得られない場合がある。

[0048] 上記の炭化水素系合成油は、具体的には、鉱物油から合成した流動パラフィンやα－オレフィンのオリゴマーであるポリα－オレフィン（ＰＡＯ）やポリブテン等のパラフィン系油などが挙げられる。流動パラフィンの例としては、ダイアナプロセスオイルＰＷシリーズ（出光興産（株）製）、モレスコホワイトシリーズ（ＭＯＲＥＳＣＯ社製）、ＳＵＮＰＡＲ（サンパー）シリーズ（日本サン石油（株）製）などが挙げられる。また、ＰＡＯやポリブテンの例としては、ルーカントシリーズ（三井化学（株）製）、日石ポリブテンＬＶシリーズ（ＪＸエネルギー（株）製）などが挙げられる。

[0049] 本発明においては、上記ポリオレフィン系ゴム組成物を圧縮成型やスチーム加硫することにより、表面の滑り性に優れたポリオレフィン系ゴム硬化物を得ることができる。この場合の硬化条件としては、圧縮成型において温度１２０～２００℃にて３～３０分の条件で硬化させることが望ましい。また、スチーム加硫においては温度１４０～１７０℃にて１０～６０分の条件により、ポリオレフィン系ゴム組成物を能率よく加硫できると共に、連続的にゴム成形品を加硫成形できる。また、表面のみの滑り性が必要な場合は、一般のＥＰＤＭゴムと本発明のゴム組成物とを二層押出しして、表面のみに本発明のゴム組成物を適用することも可能である。

[0050] 上記ポリオレフィン系ゴムの硬化物の表面摩擦係数については、０．３以下であることが好適であり、より好ましくは０．２５以下、特に、０．２０以下のものであることが好適である。このような本発明のポリオレフィン系ゴム組成物は、各種の工業製品、例えば、事務機や自動車用部材に適用され、特に、電気絶縁材料、ラジエーターホース、ウエザーストリップ、ワイパーブレード等の自動車用部材に好適に適用することができる。

実施例

[0051] 以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

[0052] ［実施例１］

エチレン／プロピレン／５－エチリデン－２－ノルボルネン共重合体（製品名：ＥＰ４３、ＪＳＲ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を３個有する重合度５，０００の両末端ジメチルビニ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共重合体４０質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤として、ｔ－ブチルクミルパーオキサイド（信越化学工業（株）製の「Ｃ－１１Ａ」）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物１」とした。

[0053] ［実施例２］

エチレン／プロピレン／５－エチリデン－２－ノルボルネン共重合体（製品名：ＥＰ４３、ＪＳＲ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を０個有する重合度５，０００の両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン４０質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤「Ｃ－１１Ａ」（信越化学工業（株）製）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物２」とした。

[0054] ［実施例３］

エチレン／プロピレン／エチリデンノルボルネン共重合体（製品名：Ｋｅｌｔａｎ　２６５０、ＬＡＮＸＥＳＳ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を２個有する重合度５，０００の両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン４０質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油

（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤「Ｃ－１１Ａ」（信越化学工業（株）製）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物３」とした。

[0055] ［実施例４］

エチレン／プロピレン／エチリデンノルボルネン共重合体（製品名：Ｋｅｌｔａｎ　２６５０、ＬＡＮＸＥＳＳ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を２個有する重合度５，０００の両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン４０質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、塩化白金酸の１，３－ジビニル－１，１，３，３，－テトラメチルジシロキサン錯体を混合物に対して白金量で５ｐｐｍとなる量を加えて混練し、更に３０個のケイ素原子結合水素原子（ＳｉＨ基）を有する両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンを混合物１００質量部に対して１質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物４」とした。

[0056] ［実施例５］

エチレン／プロピレン／５－エチリデン－２－ノルボルネン共重合体（製品名：ＥＰ４３、ＪＳＲ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を２個有する重合度５，０００の両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン１００質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤「Ｃ－１１Ａ」（信越化学工業（株）製）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物５」とした。

[0057] ［比較例１］

エチレン／プロピレン／５－エチリデン－２－ノルボルネン共重合体（製品名：ＥＰ４３、ＪＳＲ社製）１００質量部、１分子中にアルケニル基を３０個有する重合度５，０００の両末端ジメチルビニ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共重合体４０質量部、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分１００質量部に対し、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤Ｃ－１１Ａ（信越化学工業（株）製）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物６」とした。

[0058] ［比較例２］

エチレン／プロピレン／５－エチリデン－２－ノルボルネン共重合体（製品名：ＥＰ４３、ＪＳＲ社製）１００質量部、比表面積が２００m^2／ｇである湿式シリカ（東ソーシリカ社製、ニップシールＬＰ）６０質量部、ＳＵＮＰＡＲ２２８０（日本サン石油（株）製）２０質量部を加圧ニーダー中で混練した。次いで、有機過酸化物系加硫剤「Ｃ－１１Ａ」（信越化学工業（株）製）を混合物１００質量部に対して２質量部加えて均一に混練した。得られた混合物を「組成物７」とした。

[0059] 得られた「組成物１～７」を、１００ｋｇｆ／ｃm^2の条件下で１７０℃×１０分間プレスキュアを行った。次いで、１５０℃×２時間の２次加硫を行い、試験シートを作製した。

[0060] 〔機械的特性〕

得られた試験シートを用いて、ＪＩＳ Ｋ ６２５１：２０１０に記載の方法で硬化物の引張強さ及び切断時伸びを測定した。その結果を表１に示す。

[0061] 〔耐熱性〕

得られた試験シートを用いて、２００℃×７２時間乾燥器内で加熱し、冷却後の切断時の伸びを測定し、加熱前の測定値からの変化率を下記式により

求め、耐熱性を評価した。その結果を表１に示す。

（加熱後の測定値－加熱前の測定値）／（加熱前の測定値）×１００＝変化率（％）

[0062] 〔動摩擦係数〕

得られた試験シート表面の動摩擦係数を表面性試験機Ｔｙｐｅ１４ＦＷ（ＨＥＩＤＥＮ社製）にて測定した。その結果を表１に示す。

[0063] [表1]

	実施例					比較例	
	1	2	3	4	5	1	2
組成種類	組成物1	組成物2	組成物3	組成物4	組成物5	組成物6	組成物7
加硫系	有機過酸化物	有機過酸化物	有機過酸化物	付加加硫	有機過酸化物	有機過酸化物	有機過酸化物
引張強さ（MPa）	10.2	9.2	12.0	10.5	8.9	11.3	19.0
切断時伸び（%）	750	720	550	500	790	690	670
耐熱性：[切断時の伸び変化率（%）]	-40	-60	-45	-42	-50	-46	-82
動摩擦係数（Press cure）	0.20	0.08	0.13	0.11	0.15	0.39	0.53

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）エチレン・α－オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体　１００質量部

（Ｂ）下記平均組成式（１）で示される、１分子中に０個又は１～３個のアルケニル基を有する重合度１００以上のオルガノポリシロキサン　１～１００質量部

$$R_aSiO_{(4-a)/2} \quad (1)$$

（式中、Ｒは同一又は異種の１価炭化水素基を示し、ａは１．９５～２．０５の正数である。）

（Ｃ）ＢＥＴ法による比表面積が５０m^2／ｇ以上である補強性シリカ　（Ａ），（Ｂ）成分の合計１００質量部に対し、１０～１００質量部

を含有してなることを特徴とするポリオレフィン系ゴム組成物。

[請求項2] 上記（Ｂ）成分の式（１）において、Ｒが炭素原子数１～８のアルキル基又は炭素原子数６～１２のアリール基から選ばれる基であり、且つ、アルケニル基が０個である請求項１記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

[請求項3] 更に、（Ｄ）架橋剤として、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと付加反応触媒との組合せ、及び／又は、有機過酸化物を含む請求項１又は２記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

[請求項4] 炭化水素系合成油を含む請求項１～３のいずれか１項記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

[請求項5] 上記ゴム組成物の硬化物の表面摩擦係数が０．３以下のものである請求項１～４のいずれか１項記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

[請求項6] 上記ゴム組成物の硬化物が、自動車用ウエザーストリップ部材又は自動車用ワイパー部材に使用される請求項１～５のいずれか１項記載のポリオレフィン系ゴム組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/040595

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C08L23/16(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08K5/14(2006.01)i, C08L83/04(2006.01)i, C08L83/05(2006.01)i

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)
Int.Cl. C08L23/00-23/36, C08K3/00-13/08, C08L83/00-83/16

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2003-327759 A (SHIN ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 19 November 2003, claims, paragraphs [0018], [0019], [0037], [0040], [0043] (Family: none)	1, 3-5 6 2
X Y A	JP 09-125048 A (SHIN ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 13 May 1997, claims, paragraphs [0011], [0013], [0015], [0019] (Family: none)	1, 3-5 6 2

☒ 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
02 February 2018	13 February 2018

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

International application No.
PCT/JP2017/040595

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 09-227736 A (HOKUSHIN IND INC.) 02 September 1997, claims, paragraphs [0011], [0017]-[0019] (Family: none)	1, 3-5 6 2
X Y	JP 55-071737 A (TOSHIBA SILICONE CO., LTD.) 30 May 1980, claims, page 3, upper right column, lines 14, 15, page 4, upper left column, lines 10-13, page 4, lower right column, lines 16, 17, page 5, upper left column, lines 12, 13, page 5, upper right column, lines 11-15, page 5, lower right column, line 6 (Family: none)	1-5 6
Y	JP 2012-012575 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 19 January 2012, claims, paragraphs [0001], [0027], [0033] (Family: none)	6
A	JP 2011-122042 A (SHIN ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 23 June 2011, entire text (Family: none)	1-6
A	JP 2012-012576 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 19 January 2012, entire text (Family: none)	1-6
A	JP 2016-141790 A (SHIN ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 08 August 2016, entire text (Family: none)	1-6

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０４０５９５

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L23/16(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08K5/14(2006.01)i, C08L83/04(2006.01)i, C08L83/05(2006.01)i

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））

Int.Cl.　C08L23/00-23/36, C08K3/00-13/08, C08L83/00-83/16

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	１９７１－２０１８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１８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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
X Y A	JP 2003-327759 A (信越化学工業株式会社) 2003.11.19, 特許請求の範囲、段落[0018]～[0019]、[0037]、[0040]、[0043] (ファミリーなし)	1,3-5 6 2
X Y A	JP 09-125048 A (信越化学工業株式会社) 1997.05.13, 特許請求の範囲、段落[0011]、[0013]、[0015]、[0019] (ファミリーなし)	1,3-5 6 2

☑ 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矛盾するものではなく、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
０２．０２．２０１８	１３．０２．２０１８

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　５０８０
柳本　航佑
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

C（続き）．　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
X Y A	JP 09-227736 A (北辰工業株式会社) 1997.09.02, 特許請求の範囲、段落［0011］、［0017］～［0019］ (ファミリーなし)	1,3-5 6 2
X Y	JP 55-071737 A (東芝シリコーン株式会社) 1980.05.30, 特許請求の範囲、3頁右上欄14～15行目、4頁左上欄10～13行目、4頁右下欄16～17行目、5頁左上欄12～13行目、5頁右上欄11～15行目、5頁右下欄6行目 (ファミリーなし)	1-5 6
Y	JP 2012-012575 A (三井化学株式会社) 2012.01.19, 特許請求の範囲、段落［0001］、［0027］、［0033］ (ファミリーなし)	6
A	JP 2011-122042 A (信越化学工業株式会社) 2011.06.23, 全文 (ファミリーなし)	1-6
A	JP 2012-012576 A (三井化学株式会社) 2012.01.19, 全文 (ファミリーなし)	1-6
A	JP 2016-141790 A (信越化学工業株式会社) 2016.08.08, 全文 (ファミリーなし)	1-6