(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
2017年12月21日(21.12.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/217510 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 83/07 (2006.01) *G09F 9/00* (2006.01)
C08L 83/05 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2017/022201

(22) 国際出願日： 2017年6月15日(15.06.2017)

(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 2016-118838 2016年6月15日(15.06.2016) JP
特願 2016-118839 2016年6月15日(15.06.2016) JP
特願 2017-117745 2017年6月15日(15.06.2017) JP

(71) 出願人: 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 (**MOMENTIVE PERFORMANCE MATERIALS JAPAN LLC**) [JP/JP]; 〒1076119 東京都港区赤坂五丁目２番２０号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 森 田 康 仁 (**MORITA Yasuhito**); 〒1076119 東京都港区赤坂五丁目２番２０号 モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社内 Tokyo (JP). 大皷 弘二 (**OKAWA, Koji**); 〒1076119 東京都港区赤坂五丁目２番２０号 モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社内 Tokyo (JP). 砂賀 健 (**SUNAGA, Takeshi**); 〒1076119 東京都港区赤坂五丁目２番２０号 モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 津国，外 (**TSUKUNI & ASSOCIATES** et al.); 〒1020083 東京都千代田区麹町５－３－１ 麹町ビジネスセンター 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, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,

(54) **Title:** CURABLE POLYORGANOSILOXANE COMPOSITION AND USE THEREOF

(54) 発明の名称： 硬化性ポリオルガノシロキサン組成物及びその使用

(57) **Abstract:** The present invention is an addition reaction type polyorganosiloxane composition which can be cured rapidly at room temperature. A cured product of the composition exhibits high elongation, excellent stress relaxation properties and good reliability under conditions of high temperature and high humidity and exhibits excellent reliability in cold/heat cycling. The composition contains: (A1) a straight chain polysiloxane containing alkenyl groups at both terminals; (B1) a straight chain polysiloxane containing SiH groups at both terminals; (B2) a crosslinkable polyorganohydrogensiloxane; one or more types selected from the group consisting of (A2) a straight chain polysiloxane containing an alkenyl group at one terminal and (B3) a straight chain polysiloxane containing a SiH group at one terminal; and (C) a platinum-based catalyst. The content of component A2 is 0-60 parts by weight relative to a total of 100 parts by weight of components A1 and A2, and the value of $(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}) / (Vi_{A1}+Vi_{A2})$ (in the formula, Vi_{A1}, Vi_{A2}, H_{B1}, H_{B2} and H_{B3} are as disclosed in the description) is 0.6-2.2.

(57) 要約：本発明は、室温で速硬化性がある付加反応型ポリオルガノシロキサン組成物であって、組成物の硬化物が、高い伸びを有し、応力緩和性に優れ、高温高湿下での信頼特性が良好であり、かつ、冷熱サイクルの信頼性に優れ、組成物が、（Ａ１）両末端アルケニル基含有直鎖状ポリシロキサンと；（Ｂ１）両末端ＳｉＨ基含有直鎖状ポリシロキサンと；（Ｂ２）架橋性ポリオルガノハイドロジェンシロキサンと；（Ａ２）片末端アルケニル基含有直鎖状ポリシロキサン及び（Ｂ３）片末端ＳｉＨ基含有直鎖状ポリシロキサンからなる群より選択される１以上と；（Ｃ）白金系触媒とを含み、Ａ１及びＡ２の合計１００重量部に対して、Ａ２は０重量部以上６０重量部以下であり、（$Ｈ_{Ｂ１}$＋$Ｈ_{Ｂ２}$＋$Ｈ_{Ｂ３}$）／（$Ｖｉ_{Ａ１}$＋$Ｖｉ_{Ａ２}$）（式中、$Ｖｉ_{Ａ１}$、$Ｖｉ_{Ａ２}$、$Ｈ_{Ｂ１}$、$Ｈ_{Ｂ２}$及び$Ｈ_{Ｂ３}$は、明細書に記載のとおりである）が０．６～２．２である、硬化性ポリオルガノシロキサン組成物に関する。

WO 2017/217510 A1

［続葉有］

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.

(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 ： 硬化性ポリオルガノシロキサン組成物及びその使用

技術分野

[0001] 本発明は、硬化性ポリオルガノシロキサン組成物に関し、特に画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部との接着に使用する硬化性ポリオルガノシロキサン組成物に関する。

背景技術

[0002] ブラウン管、液晶、プラズマ、有機ＥＬ等の画像表示装置は、一般に、偏光分離素子として、入射光束を回折及び分光し、その回折、分光させた各波長帯域の光を偏光変調素子上に形成されたＲ（赤色），Ｇ（緑色），Ｂ（青色）各色画素に対応した位置へ選択的に集光させる偏光分離型回折光学素子（ホログラフィックカラーフィルタ）を用いて構成されている。中でも、パネル型の画像表示装置は、通常、少なくとも一方がガラス等の光透過性をもつ一対の基板の間にアクティブ素子を構成する半導体層や蛍光体層、あるいは発光層からなる多数の画素をマトリクス状に配置した表示領域（画像表示部）を有し、この表示領域（画像表示部）とガラスやアクリル樹脂のような光学用プラスチックで形成される保護部との間隙を接着剤で気密に封止して構成されている。

[0003] そこで使用される接着剤としては、画像表示装置の保護部の外枠部分に遮光性のペイントが施されているといった構造上の理由から、アクリル樹脂を用いた紫外線硬化型樹脂組成物でなく、熱硬化型樹脂組成物が一般に使用されている。

[0004] 特許文献１には、エポキシ樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂等の封止樹脂により封止されてなる、トランジスタ、ダイオード、コンデンサ、コイル、ＬＳＩ、ＩＣ等の電子部品について封止樹脂と電子部品のリードとの界面にしばしば生じた隙間や、電子部品自体が構造的に有する隙間に、液状の特定の熱硬化型シリコーン樹脂組成物を含浸して熱硬化させ封止状態を回

復させる技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平９－１６９９０８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献１に開示されている熱硬化型シリコーン樹脂組成物は、一分子中に３個以上のケイ素原子に結合する水素原子が分子鎖側鎖に存在する鎖状ポリオルガノハイドロジェンシロキサンが使用されている。しかし、特許文献１に開示されている熱硬化型シリコーン樹脂組成物は、反応性が低いため、低温での硬化が遅かったり、所定時間内に硬化しないという問題があった。

[0007] また、シリコーン樹脂組成物を用いた接着剤において、基材同士を貼り合わせた後に、高温高湿下で気泡が発生し、視認性が低下しやすい問題もあった。さらに、組成物の硬化物が柔軟性に劣る場合、画像表示装置に用いられる部材である、ＰＭＭＡ（ポリメチルメタクリレート）パネル及びＬＣＤ（液晶ディスプレイ）パネルに貼り合せた組成物の硬化物が、ＰＭＭＡの反りの応力を緩和できない。そのため、組成物の硬化物の割れ、及び組成物の硬化物のパネルからの剥離が発生するという問題があった。

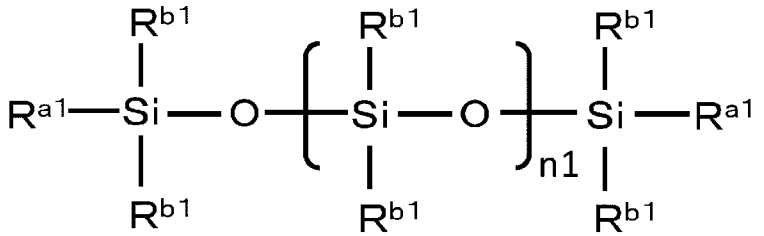
[0008] 本発明は、室温で速硬化性がある付加反応型ポリオルガノシロキサン組成物であって、組成物の硬化物が、高い伸びを有し、応力緩和性に優れ、高温高湿下での信頼特性が良好であり、かつ、冷熱サイクルの信頼性に優れる、付加反応型ポリオルガノシロキサン組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明は、以下の構成を有する。

［１］（Ａ１）式（Ｉ）：

[化1]



(I)

（式中、

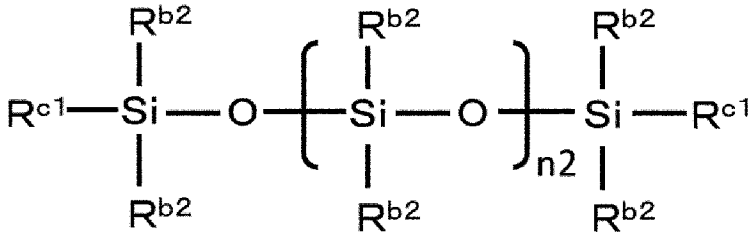
R^{a1}は、独立して、C_2－C_6アルケニル基であり、

R^{b1}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ１は、（Ａ１）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサンと；

（Ｂ１）式（II）：

[化2]



(II)

（式中、

R^{c1}は、水素原子であり、

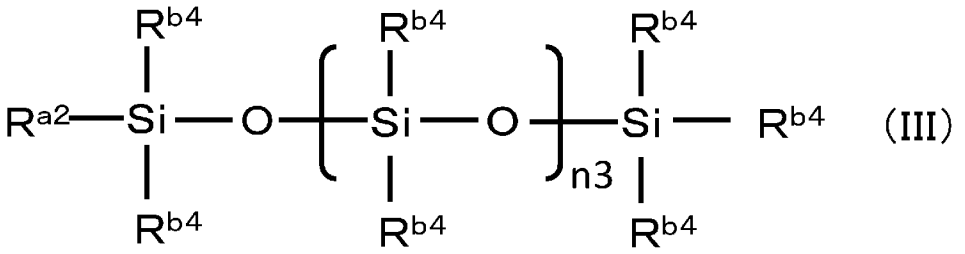
R^{b2}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ２は、（Ｂ１）の２３℃における粘度を０．１～３００ｍＰａ・ｓとする数である）で示されるポリオルガノハイロドジェンシロキサンと；

（Ｂ２）$R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}$単位（式中、$R^{b3}$は、独立して、$C_1$－$C_6$アルキル基又は$C_6$－$C_{20}$アリール基であり、$R^{c2}$は、水素原子である）及び$SiO_{4/2}$単位からなり、一分子中に、ケイ素原子に結合した水素原子を３個以上有する、ポリオルガノハイドロジェンシロキサンと；

（Ａ２）式（III）：

[化3]



(III)

（式中、

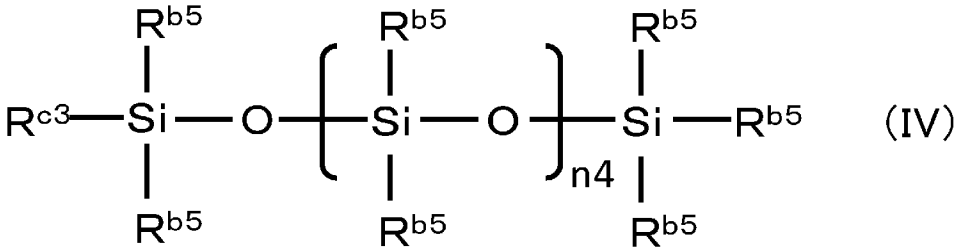
R^{a2}は、独立して、C_2－C_6アルケニル基であり、

R^{b4}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ３は、（Ａ２）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサン、及び

（Ｂ３）式（IV）：

[化4]



(IV)

（式中、

R^{c3}は、水素原子であり、

R^{b5}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ４は、（Ｂ３）の２３℃における粘度を０．１ｍＰａ・ｓ～３００ｍＰａ・ｓとする数である）で示される直鎖状ポリオルガノハイロドジェンシロキサン

からなる群より選択される１以上と；

（Ｃ）白金系触媒と；

を含み、

（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）は０重量部以

上６０重量部以下であり、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～２．２であり、

ここで、Vi_{A1}は、（Ａ１）のアルケニル基のモル数であり、Vi_{A2}は、（Ａ２）のアルケニル基のモル数であり、H_{B1}は、（Ｂ１）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B2}は、（Ｂ２）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B3}は、（Ｂ３）の水素原子のモル数である、硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［２］（Ｂ２）が、３～５個の$SiO_{4/2}$単位が環状シロキサン骨格を形成し、各$SiO_{4/2}$単位に２個の$R^{b3}_{2}R^{c2}SiO_{1/2}$単位が結合している、環状ポリオルガノハイドロジェンシロキサンである、［１］の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［３］組成物が（Ａ２）を含み、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～２．２である、［１］又は［２］の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［４］（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）が５～３７重量部であり、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～０．９９であり、かつ、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）が、０．３～０．８である、［３］の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［５］組成物が（Ｂ３）を含み、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が０．６～２．５である、［１］～［４］のいずれかの硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［６］（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が０．６～０．９９である、［５］の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［７］画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部との接着用である、［１］～［６］のいずれかの硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

［８］［１］～［７］のいずれかの硬化性ポリオルガノシロキサン組成物を用いて、画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部とを接着

した画像表示装置。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、室温で速硬化性がある付加反応型ポリオルガノシロキサン組成物であって、組成物の硬化物が、高い伸びを有し、応力緩和性に優れ、高温高湿下での信頼特性が良好であり、かつ、冷熱サイクルの信頼性に優れる、付加反応型ポリオルガノシロキサン組成物が提供される。

発明を実施するための形態

[0011] ［硬化性ポリオルガノシロキサン組成物］

硬化性ポリオルガノシロキサン組成物（以下、単に「組成物」ともいう。）は、（Ａ１）と；（Ｂ１）と；（Ｂ２）と；（Ａ２）及び（Ｂ３）からなる群より選択される１以上と；（Ｃ）白金系触媒と；を含み、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）は０重量部以上６０重量部以下であり、$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$が０．６～２．２であり、$Vi_{A1}$は、（Ａ１）のアルケニル基のモル数であり、$Vi_{A2}$は、（Ａ２）のアルケニル基のモル数であり、$H_{B1}$は、（Ｂ１）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B2}は、（Ｂ２）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B3}は、（Ｂ３）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数である。

[0012] 組成物は、「（Ａ２）と（Ｂ３）との組み合わせ」、「（Ａ２）」又は「（Ｂ３）」を含む。なお、組成物が（Ａ２）を含み、（Ｂ３）を含まない場合は、「$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$」は、「$(H_{B1}+H_{B2})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$」となる。また、組成物が（Ｂ３）を含み、（Ａ２）を含まない場合は、「$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$」は、「$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/Vi_{A1}$」となり、そして、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対する（Ａ２）の含有量は、０重量部となる。

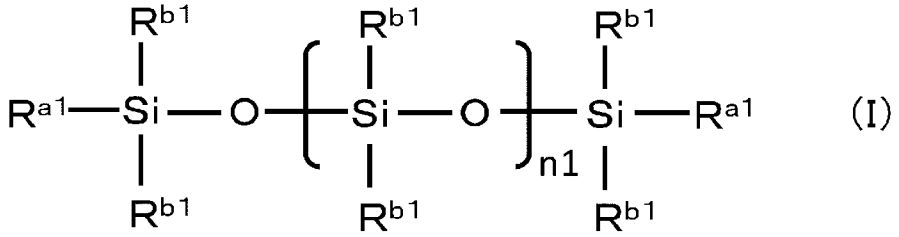
なお、（Ｂ２）を、「架橋性ポリオルガノハイドロジェンシロキサン」ともいう。

[0013] （１）（Ａ１）式（Ｉ）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサ

ン

（Ａ１）は、式（Ｉ）：

[化5]



（式中、

Ｒａ１は、独立して、Ｃ２－Ｃ６アルケニル基であり、

Ｒｂ１は、独立して、Ｃ１－Ｃ６アルキル基又はＣ６－Ｃ２０アリール基であり、

ｎ１は、（Ａ１）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示される。（Ａ１）は、シロキサン鎖の両方の末端にアルケニル基を有する、両末端アルケニル基含有直鎖状ポリオルガノシロキサンである。

[0014] 組成物が（Ａ１）を含むことで、硬化時に架橋反応による安定した３次元構造を確保し、硬化物の伸びを制御し、良好な視認性を確保することができる。

[0015] Ｃ２－Ｃ６アルケニル基は、例えば、ビニル基、アリル基、３－ブテニル基、及び５－ヘキセニル基等が挙げられる。Ｃ１－Ｃ６アルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等が挙げられる。Ｃ６－Ｃ２０アリール基は、例えば、フェニル基、ナフチル基、及びアントラセニル基等が挙げられる。

[0016] Ｒａ１は、合成が容易で、また硬化前の組成物の流動性や、硬化物の耐熱性を損ねないという点から、ビニル基が好ましい。Ｒｂ１は、合成が容易で、組成物の流動性や硬化後の機械的強度等のバランスが優れているという点から、Ｃ１－Ｃ６アルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。よって、（Ａ１）は、両末端がジメチルビニルシロキサン単位で閉塞され、中間単位がジメチルシロキサン単位からなるポリメチルビニルシロキサンが好ましい。

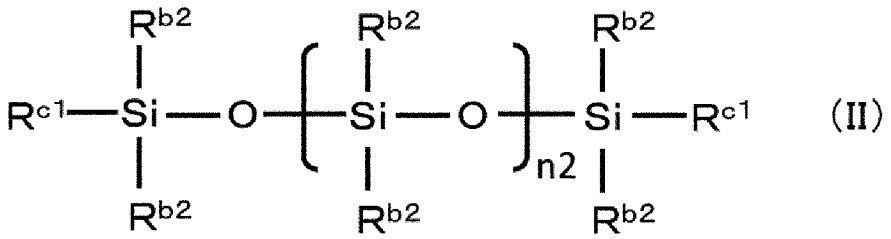
[0017] （Ａ１）の粘度は、組成物の安定した液状性を確保する観点から、２３℃において１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓであり、好ましくは５０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓであり、より好ましくは１００ｍＰａ・ｓ～５００，０００ｍＰａ・ｓである。これらの粘度範囲になるように、（Ａ１）の重量平均分子量、即ち、ｎ１を調整することが好ましい。

[0018] 本明細書において、粘度は、ＪＩＳ　Ｋ　６２４９に準拠して、回転粘度計を用いて、６０ｒｐｍ、２３℃の条件で測定した値である。

[0019] （２）（Ｂ１）式（II）で示されるポリオルガノハイドロジェンシロキサン

（Ｂ１）は、式（II）：

[化6]



（II）

（式中、

R^{c1}は、水素原子であり、

R^{b2}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ２は、（Ｂ１）の２３℃における粘度を０．１～３００ｍＰａ・ｓとする数である）で示されるポリオルガノハイロドジェンシロキサン）で示される。（Ｂ１）は、シロキサン鎖の両方の末端に、ケイ素原子に結合した水素原子を有する、両末端ＳｉＨ基含有直鎖状ポリオルガノシロキサンである。

[0020] （Ｂ１）は、架橋点間の分子鎖を延長させ、組成物の硬化物の伸び及び応力緩和性を向上させる成分である。

[0021] R^{b2}は、合成が容易で、機械的強度及び硬化前の流動性などの特性のバランスが優れているという点から、C_1－C_6アルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。よって、（Ｂ１）は、両末端がジメチルハイドロジェンシロキサン単位で閉塞され、中間単位がジメチルシロキサン単位からなるポリ

メチルハイドロジェンシロキサンが好ましい。

[0022] （Ｂ１）の粘度は、２３℃において０．１～３００ｍＰａ・ｓであり、１～２００ｍＰａ・ｓが好ましく、０．１～５０ｍＰａ・ｓがより好ましい、１～３０ｍＰａ・ｓが特に好ましい。これらの粘度範囲になるように、（Ｂ１）の重量平均分子量、即ち、ｎ２を調整することが好ましい。

[0023] （３）（Ｂ２）架橋性ポリオルガノハイドロジェンシロキサン

（Ｂ２）は、$R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}$単位（式中、$R^{b3}$は、独立して、$C_1$－$C_6$アルキル基又は$C_6$－$C_{20}$アリール基であり、$R^{c2}$は、水素原子である）及び$SiO_{4/2}$単位からなり、一分子中に、ケイ素原子に結合した水素原子を３個以上有する、ポリオルガノハイドロジェンシロキサンである。

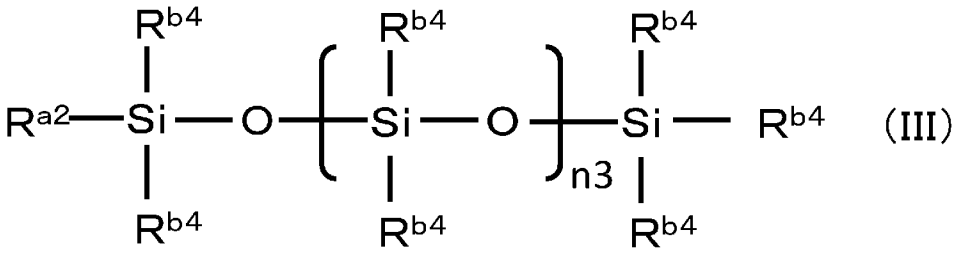
[0024] （Ｂ２）は、硬化物を網状化して、硬度を調整するのに寄与する成分である。（Ｂ２）は、分岐状であっても環状であってもよい。ケイ素原子に結合した水素原子であるR^{c2}は、一分子中、３～１００個であることが好ましく、より好ましくは、３～５０個である。R^{b3}は、合成の容易さ等の点から、C_1－C_6アルキル基が好ましく、メチルが特に好ましい。よって、（Ｂ２）は、$[R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}]_8[SiO_{4/2}]_4$又は$[R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}]_{10}[SiO_{4/2}]_5$のように、３～５個の$SiO_{4/2}$単位が環状シロキサン骨格を形成し、各$SiO_{4/2}$単位に２個の$R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}$単位が結合しているものが好ましい。

[0025] （Ｂ２）の粘度は、１～１００ｍＰａ・ｓが好ましく、１～５０ｍＰａ・ｓがより好ましい。

[0026] （４）（Ａ２）式（III）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサン、及び（Ｂ３）式（IV）で示される直鎖状ポリオルガノハイドロジェンシロキサンからなる群より選択される１以上

（Ａ２）は、式（III）：

[化7]



(III)

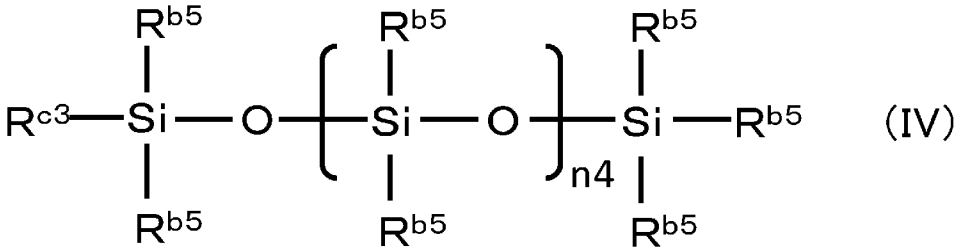
（式中、

R^{a2}は、独立して、C_2－C_6アルケニル基であり、

R^{b4}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ３は、（Ａ２）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示され、（Ｂ３）は、式（IV）：

[化8]



(IV)

（式中、

R^{c3}は、水素原子であり、

R^{b5}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ４は、（Ｂ３）の２３℃における粘度を０．１～３００ｍＰａ・ｓとする数である）で示される。

[0027] （Ａ２）は、シロキサン鎖の一方の末端にのみアルケニル基を有する、片末端アルケニル基含有直鎖状ポリオルガノシロキサンであり、（Ｂ３）は、シロキサン鎖の一方の末端にのみケイ素に結合する水素原子を有する、片末端ＳｉＨ基含有直鎖状ポリオルガノシロキサンである。即ち、（Ａ２）及び（Ｂ３）は、シロキサン鎖の一方の末端にのみ反応性基（即ち、（Ａ２）におけるアルケニル基、又は、（Ｂ３）におけるヒドロシリル基（ＳｉＨ））を有する。組成物が（Ａ２）及び／又は（Ｂ３）を含むことで、硬化時に架

橋反応による３次元構造の密度を程よく低下させることができる。これにより、組成物の硬化物の応力緩和性を向上させることができる。

[0028] 式（III）において、R^{a2}は、好ましいものを含み、R^{a1}と同義である。R^{b4}は、好ましいものを含み、R^{b1}と同義である。よって、（Ａ２）としては、一方の末端がジメチルビニルシロキサン単位で閉塞され、もう一方の末端がトリメチルシロキサン単位で閉塞され、中間単位がジメチルシロキサン単位からなるポリメチルビニルシロキサンが好ましい。

[0029] （Ａ２）の粘度は、組成物の安定した液状性を確保する観点から、２３℃において１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓであり、好ましくは５０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓであり、より好ましくは１００ｍＰａ・ｓ～５００，０００ｍＰａ・ｓである。これらの粘度範囲になるように、（Ａ２）の重量平均分子量、即ち、ｎ３を調整することが好ましい。

[0030] 式（IV）において、R^{b5}は、合成が容易で、機械的強度および硬化前の流動性などの特性のバランスが優れているという点から、C_1－C_6アルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。よって、（Ｂ３）は、一方の末端がジメチルハイドロジェンシロキサン単位で閉塞され、もう一方の末端がトリメチルシロキサン単位で閉塞され、中間単位がジメチルシロキサン単位からなるポリメチルハイドロジェンシロキサンが好ましい。

[0031] （Ｂ３）の粘度は、２３℃において０．１ｍＰａ・ｓ～３００ｍＰａ・ｓであり、１ｍＰａ・ｓ～２００ｍＰａ・ｓが好ましく、１ｍＰａ・ｓ～５０ｍＰａ・ｓがより好ましく、１ｍＰａ・ｓ～３０ｍＰａ・ｓが特に好ましい。これらの粘度範囲になるように、（Ｂ３）の重量平均分子量、即ち、ｎ４を調整することが好ましい。

[0032] （５）（Ｃ）白金系触媒

（Ｃ）は、（Ａ１）及び（Ａ２）のアルケニル基と、（Ｂ１）、（Ｂ２）及び（Ｂ３）のヒドロシリル基（ＳｉＨ）との間の付加反応を促進するための触媒である。触媒活性が良好な観点から、白金、ロジウム、パラジウムの

ような白金族金属原子の化合物が好適に用いられ、塩化白金酸、塩化白金酸とアルコールの反応生成物、白金－オレフィン錯体、白金－ビニルシロキサン錯体、白金－ケトン錯体、白金－ホスフィン錯体のような白金化合物、ロジウム－ホスフィン錯体、ロジウム－スルフィド錯体のようなロジウム化合物、パラジウム－ホスフィン錯体のようなパラジウム化合物が好ましく、白金化合物がより好ましく、白金－ビニルシロキサン錯体が特に好ましい。

[0033] （添加剤）

組成物は、本発明の効果を損なわない範囲で、（Ｄ）希釈剤、（Ｅ）接着付与剤及び（Ｆ）白金系触媒の抑制剤からなる群より選択される１以上の添加剤を含むことができる。（Ｄ）希釈剤、（Ｅ）接着付与剤及び（Ｆ）白金触媒の抑制剤は、それぞれ単独でも、２種以上の組合せであってもよい。

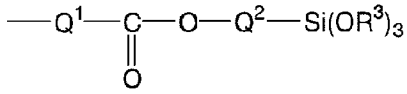
[0034] 組成物が（Ｄ）希釈剤を含むことで、組成物の粘度が調整される。（Ｄ）は、硬化反応に関与するアルケニル基を含有しないシリコーンオイルであり、両末端がトリメチルシロキサン単位で閉塞され、中間単位がジメチルシロキサン単位からなるポリメチルシロキサンが好ましい。（Ｄ）は、２３℃における粘度が、１～５，０００ｍＰａ・ｓであるのが好ましく、５～１，０００ｍＰａ・ｓであるのがより好ましい。

[0035] 組成物が（Ｅ）接着付与剤を含むことで、組成物と基材との接着力がより向上する。（Ｅ）接着付与剤として、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラプロポキシシラン、テトラブトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランのようなジ、トリ、テトラアルコキシシラン類；３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、３－グリシドキシプロピル（メチル）ジメトキシシラン、３－グリシドキシプロピル（メチル）ジエトキシシランのような３－グリシドキシプロピル基含有アルコキシシラン類；２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリエトキシシラン、２－（３，４－エポキシシクロヘキシ

ル）エチル（メチル）ジメトキシシランのような２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチル基含有アルコキシシラン類；ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（２－メトキシエトキシ）シラン、メチルビニルジメトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、アリルトリエトキシシラン、メチルアリルジメトキシシランのようなアルケニルアルコキシシラン類；３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－アクリロキシプロピル（メチル）ジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピル（メチル）ジメトキシシランのような（メタ）アクリロキシプロピルアルコキシシラン類；１，１，３，５，７－ペンタメチルシクロテトラシロキサンと３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシランとの反応生成物などの有機ケイ素化合物が挙げられる。

[0036] 有機ケイ素化合物として、例えば、具体的には、下記式：

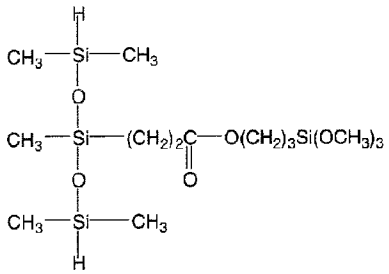
[化9]



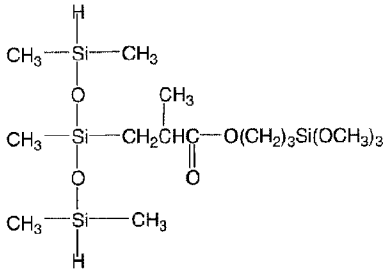
（式中、Q^1及びQ^2は、互いに独立して、アルキレン基、好ましくはC_1－C_4アルキレン基を表し、R^3は、C_1－C_4アルキル基を表す）で示される側鎖を有する有機ケイ素化合物が挙げられる。

[0037] このような有機ケイ素化合物としては、下記の化合物が好ましい。

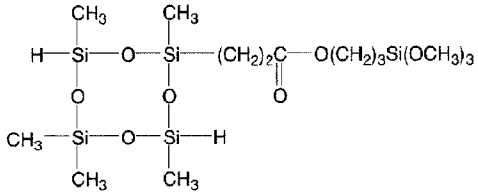
[化10]



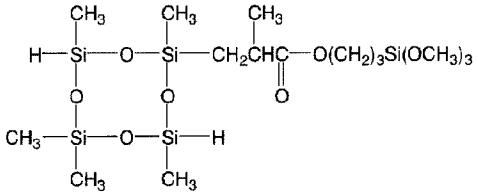
,



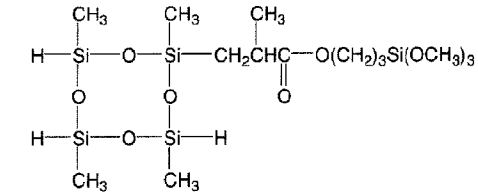
,



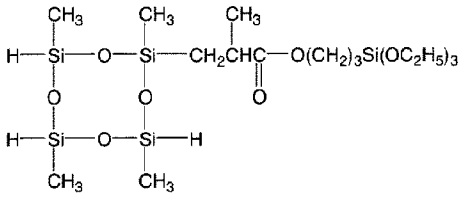
,



,



,



[0038] 組成物が（Ｆ）白金系触媒の抑制剤を含むことで、組成物の硬化速度が調整される。（Ｆ）白金系触媒の抑制剤は、アセチレン性シラン、３－ヒドロキシ－１－プロペニル（ＯＨ－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－ＣＨ＝ＣＨ－）基を有するオレフィン性シロキサン及びビニルオルガノシロキサンからなる群より選択される１種以上が挙げられる。このような白金系触媒の抑制剤は、特開昭５２－４７０５３号公報に記載されている。

[0039] （組成等）

組成物において、（Ａ２）の含有量は、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、０重量部以上６０重量部以下である。（Ａ２）の含有量が、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、６０重量部超であると、組成物の室温での速硬化性が劣る。（Ａ２）の含有量は、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、１～６０重量部が好ましく、５～５２重量部がより好ましく、５～３７重量部が更に好ましく、１７～３７重量部が特に好ましい。（Ａ２）の含有量が、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、５～３７重量部であると、接着力がより向上する傾向があり、１７～３７重量部であると、接着力に加えて、硬化物の伸びがより向上し、応力緩和性がより向上する傾向がある。

[0040] 組成物において、$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$は０．６～２．２である。$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$が、０．６未満であると、組成物の硬化が遅いか、硬化しない。$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$が、２．２超であると、硬化物の高温高湿下での信頼特性が劣る。

[0041] $(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$の好ましい範囲は、０．６～１．４、０．６～１．００、０．６～０．９９であり、０．６～０．８、０．７～０．８であってもよい。$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$が、前記好ましい範囲であれば、硬化物を高温で加熱した場合（例えば、１００～１８０℃で加熱した場合）であっても、柔軟性の変化率が小さい傾向がある。即ち、組成物を硬化させた後、更に高温で加熱した場合であっても、外部からの応力を適度に緩和して対変形性を確保できる硬化物が得られる傾向がある。このような硬化物は、冷熱サイクルの信頼性により優れる。また、$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$が、０．８以下であれば、組成物の硬化物が、より高い伸びを有する傾向がある。

[0042] （好ましい組成等）

組成物は、以下を満足するのが好ましい。以下において、「組成物が（Ａ２）を含む場合」とは、「組成物が（Ａ２）及び（Ｂ３）を含む場合」であ

り、好ましくは「組成物が（Ａ２）を含み、（Ｂ３）を含まない場合」である。また、「組成物が（Ｂ３）を含む場合」とは、「組成物が（Ａ２）及び（Ｂ３）を含む場合」であり、好ましくは「組成物が（Ｂ３）を含み、（Ａ２）を含まない場合」である。

[0043] 組成物が（Ａ２）を含む場合、組成物において、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）は０．６～２．２であることが好ましい。（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が、０．６以上であると、組成物の速硬化性が向上する。（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が、２．２以下であると、硬化物の高温高湿下での信頼特性が向上する。（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）は、より好ましくは０．６～１．００であり、更に好ましくは０．６～０．９９であり、より更に好ましくは０．６～０．８であり、特に好ましくは０．７～０．８である。（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が、前記好ましい範囲であれば、硬化物を高温で加熱した場合であっても、柔軟性の変化率が小さい傾向がある。また、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が、０．８以下であれば、組成物の硬化物が、より高い伸びを有する傾向がある。

[0044] 組成物が（Ａ２）を含む場合、（Ａ１）及び（Ａ２）は、硬化時に架橋反応による３次元構造の密度制御がしやすい観点から、高粘度（例えば、５，０００ｍＰａ・ｓ～２０，０００ｍＰａ・ｓ）の（Ａ１）と低粘度の（Ａ２）（例えば、５０ｍＰａ・ｓ～１，０００ｍＰａ・ｓ）の組合せを含むのが好ましい。

[0045] 組成物が（Ａ２）を含む場合、組成物において、接着力がより向上し、透明性に優れ、黄変が小さい硬化物が得られる傾向があることから、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）が、好ましくは０．２～０．９であり、より好ましくは０．２～０．８であり、特に好ましくは０．３～０．８である。

[0046] 以上より、組成物が（Ａ２）を含む場合、組成物は、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）が５～３７重量部であり、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～０．９９であり、かつ、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）が、０．３～０．８であるのが好ましい。

[0047] 組成物が（Ｂ３）を含む場合、組成物において、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}は、０．６～２．５であることが好ましい。（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が、０．６以上であると、組成物の速硬化性が向上する。（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が、２．５以下であると、硬化物の高温高湿下での発泡が十分に抑制できる。（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}は、より好ましくは０．６～２．２であり、更に好ましくは０．６～２．０であり、より更に好ましくは０．６～１．４であり、なお更に好ましくは０．６～０．９９であり、特に好ましくは０．８～０．９９である。（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が、好ましくは０．６～１．４、より好ましくは０．６～０．９９であると、硬化物を高温で加熱した場合であっても、柔軟性の変化率が小さい傾向がある。

[0048] 組成物が（Ｂ３）を含む場合、組成物において、H_{B3}／（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）が、好ましくは０．１～０．９であり、より好ましくは０．１５～０．５であり、特に好ましくは０．２～０．４である。H_{B3}／（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）が、０．１以上であると、硬化時に架橋反応による３次元構造の密度を程よく低下でき、組成物の硬化物の応力緩和性がより向上し、０．９以下であると、組成物の速硬化性が向上する。

[0049] 組成物が（Ｂ３）を含む場合、組成物において、H_{B2}／（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）が、好ましくは０．１～０．９であり、より好ましくは０．１～０．７であり、特に好ましくは０．１５～０．５５である。H_{B2}／（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）が、０．１以上であると組成物の速硬化性が向上し、０．９以下であると、高温で加熱した後の硬化物の柔軟性が向上する。

[0050] 硬化物を高温で加熱した後であっても、応力緩和性に優れる傾向があることから、組成物は、（Ａ２）と（Ｂ３）との組み合わせを含むのが好ましい。

[0051] 組成物が（Ａ２）を含む場合、組成物は、（Ａ１）及び（Ａ２）のみからなるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサンを含むのが好ましく、この場合、組成物は、（Ａ１）及び（Ａ２）以外のアルケニル基含有ポリオルガノ

シロキサンを含まない。組成物が（Ａ２）を含まない場合、組成物は、（Ａ１）のみからなるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサンを含むのが好ましく、この場合、組成物は、（Ａ１）以外のアルケニル基含有ポリオルガノシロキサンを含まない。

[0052] 組成物が（Ｂ３）を含む場合、組成物は、（Ｂ１）、（Ｂ２）及び（Ｂ３）のみからなるポリオルガノハイドロジェンシロキサンを含むのが好ましく、この場合、組成物は、（Ｂ１）、（Ｂ２）及び（Ｂ３）以外のポリオルガノハイロドジェンシロキサンを含まない。組成物が、（Ｂ３）を含まない場合、組成物は、（Ｂ１）及び（Ｂ２）のみからなるポリオルガノハイドロジェンシロキサンを含むのが好ましく、この場合、組成物は、（Ｂ１）及び（Ｂ２）以外のポリオルガノハイドロジェンシロキサンを含まない。

[0053] よって、組成物が（Ａ２）及び（Ｂ３）を含む場合、組成物は、（Ａ１）及び（Ａ２）のみからなるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサン、及び、（Ｂ１）、（Ｂ２）及び（Ｂ３）のみからなるポリオルガノハイドロジェンシロキサンを含むのが好ましい。この場合、組成物は、（Ａ１）及び（Ａ２）以外のアルケニル基含有ポリオルガノシロキサン、並びに、（Ｂ１）及び（Ｂ２）以外のポリオルガノハイドロジェンシロキサンを含まない。

[0054] 組成物における（Ｃ）の含有量は、適切な硬化速度の確保の観点から、（Ａ１）及び（Ａ２）の総重量に対して、白金族金属原子換算で、好ましくは０．１～１０００重量ｐｐｍ、より好ましくは０．５～２００重量ｐｐｍである。

[0055] 組成物における（Ｄ）の含有量は、組成物における（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、５０重量部以下であるのが好ましく、３０重量部以下であるのがより好ましく、２０重量部以下であるのがさらに好ましい。

[0056] 組成物における添加剤の総含有量は、組成物における（Ａ１）と、（Ｂ１）と、（Ｂ２）と、（Ａ２）及び（Ｂ３）からなる群より選択される１以上との合計１００重量部に対して、１００重量部以下であるのが好ましく、３

０重量部以下であるのがより好ましく、２０重量部以下であるのがさらに好ましい。

[0057] 組成物は、（Ａ１）と、（Ｂ１）と、（Ｂ２）と、（Ａ２）及び（Ｂ３）からなる群より選択される１以上と、（Ｃ）と、任意成分とを配合することにより得ることができる。容易に、組成物を均一な状態にし、透明な硬化物を得ることができる点から、組成物は、「（Ａ１）、（Ａ２）及び（Ｃ）の組合せ」又は「（Ａ１）及び（Ｃ）の組合せ」を含み、（Ｂ１）、（Ｂ２）及び（Ｂ３）を含まない第１部分と、（Ａ１）と、（Ｂ１）と、（Ｂ２）と、（Ａ２）及び（Ｂ３）からなる群より選択される１以上とを含み、（Ｃ）を含まない第２部分とからなる、２液型の組成物であるのが好ましい。そして、第１部分と第２部分とを混合し、均一な組成物とすることが好ましい。任意成分は適宜添加することができる。

[0058] 組成物は、２３℃における粘度が、塗布時の展延性の点から、１００，０００ｍＰａ・ｓ以下であることが好ましく、より好ましくは、５０～５０，０００ｍＰａ・ｓである。組成物が、第１部分及び第２部分からなる２液型の組成物である場合、第１部分及び第２部分の粘度は、好ましくは、１０～１００，０００ｍＰａ・ｓであり、より好ましくは、５０～５０，０００ｍＰａ・ｓであり、特に好ましくは、１００～２０，０００ｍＰａ・ｓである。

[0059] 組成物は、室温（例えば、５～４０℃）で硬化させることができる、室温硬化性組成物であってもよい。また、組成物は、加熱することによって、硬化させる、熱硬化性樹脂組成物であってもよい。加熱温度は、例えば、４０超８０℃以下とすることができ、６０～７０℃が好ましい。また、加熱時間は、例えば、０．５～１０時間とすることができ、０．５～２時間が好ましく、０．５分～６０分とすることがより好ましく、１分以上３０分未満が特に好ましい。

[0060] 組成物は、組成物からなる画像表示装置用シール剤として利用することができる。画像表示装置用シール剤を画像表示部と保護部の間に介在させ、加

熱により硬化させて、画像表示部と保護部とを封止することができる。組成物は、画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部との接着用であるのが好ましい。

[0061] 組成物は、画像表示装置において好適に使用することができ、特に、フラットパネル型の画像表示装置の保護部と画像表示部との間に介在させる樹脂として好ましい。よって、本発明は、組成物を用いた画像表示装置、具体的には、組成物を用いて、画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部とを接着した画像表示装置に関する。具体的には、光学用プラスチック等で形成される透明な保護部を構成する保護パネル上に、組成物を塗布した後、画像表示部を構成する画像表示パネルを貼り合わせ、加熱する工程を含む、画像表示装置の製造方法により製造される画像表示装置に関する。

実施例

[0062] 次に、実施例及び比較例を挙げて、本発明を更に詳細に説明する。ただし、本発明は、これらの実施例によって限定されるものではない。表示は、特に断りがない限り、重量部、重量％である。

[0063] 表１～表９に示す組成で、各成分を、混合することにより、実施例及び比較例の（Ａ）及び（Ｂ）からなる２液型の組成物を調製した。表１～表９において、「ＭＩＸ」は「（Ａ）」及び「（Ｂ）」の合計に対する量を意味する。

[0064] 使用した各成分は、以下のとおりである。ここで、記号は以下を意味する。

Ｍ：$(CH_3)_3SiO_{1/2}$

M^H：$H(CH_3)_2SiO_{1/2}$

M^V：$CH_2=CH_2(CH_3)_2SiO_{1/2}$

Ｄ：$(CH_3)_2SiO_{2/2}$

D^H：$H(CH_3)SiO_{2/2}$

Ｑ：$SiO_{4/2}$（四官能性）

[0065] Ａ１－１：両末端がM^V単位で閉塞され、中間単位がＤ単位からなるポリメチ

ルビニルシロキサン（２３℃での粘度１２，２００ｍＰａ・ｓ）

ａ２：下記（１）～（３）の混合物。この混合物中、Ａ１－２が２５重量％であり、Ａ２が５０重量％であり、Ｄ１が２５重量％である。

（１）Ａ１－２：両末端がM^{V}単位で閉塞され、中間単位がＤ単位からなるポリメチルビニルシロキサン（２３℃での粘度６００ｍＰａ・ｓ）

（２）Ａ２：一方の末端がM^{V}単位で閉塞され、もう一方の末端がＭ単位で閉塞され、中間単位がＤ単位からなるポリメチルビニルシロキサン（２３℃での粘度６００ｍＰａ・ｓ）

（３）Ｄ１：両末端がＭ単位で閉塞され、中間単位がＤ単位からなるポリジメチルシロキサン（２３℃での粘度６００ｍＰａ・ｓ）

Ｂ１：$M^{H}D_{20}M^{H}$で示される直鎖状ポリメチルハイドロジェンシロキサン（２３℃での粘度２０ｍＰａ・ｓ）

Ｂ２：平均単位式が［Ｈ（CH_3）$_2$$SiO_{1/2}$］$_8$［$SiO_{4/2}$］$_4$で示される架橋性ポリメチルハイドロジェンシロキサン（有効水素量１％）

ｂ３：下記（４）～（６）の混合物。この混合物中、Ｂ１－２が２５重量％であり、Ｂ３が５０重量％であり、Ｄ２が２５重量％である。

（４）Ｂ１－２：$M^{H}D_{20}M^{H}$で示される直鎖状ポリメチルハイドロジェンシロキサン（２３℃での粘度２０ｍＰａ・ｓ）

（５）Ｂ３：$M^{H}D_{20}M$で示される直鎖状ポリメチルハイドロジェンシロキサン（２３℃での粘度２０ｍＰａ・ｓ）

（６）Ｄ２：$MD_{20}M$で示される直鎖状ポリジメチルシロキサン（２３℃での粘度２０ｍＰａ・ｓ）

Ｂ４：$MD^{H}_{17}D_{83}M$で示される直鎖状ポリメチルハイドロジェンシロキサン（２３℃での粘度１２０ｍＰａ・ｓ）

Ｃ１：塩化白金酸を１，３－ジビニル－１，１，３，３－テトラメチルジシロキサンとモル比１：４で加熱することによって得られ、白金含有量が４．９重量％である錯体

[0066] 物性の評価は、下記のようにして行った。結果を、表１～表９に示す。

（１）粘度

回転粘度計（ビスメトロン　ＶＤＡ－Ｌ）（芝浦システム株式会社製）を用いて、２３℃における粘度（ｍＰａ・ｓ）を測定した。その他は、ＪＩＳ　Ｋ　６２４９に準拠して測定を行った。

[0067] （２）タックフリータイム

（Ａ）の組成物及び（Ｂ）の組成物を体積比１：１で押し出し、その先にミキシングノズルで混合しながら、５ｇを平板上に取り出し、２つの液が接触した時間を０とし、エチルアルコールで清浄にした指先で表面に軽く触れ、試料が指先に付着しなくなるまでの時間をタックフリータイムとした。

[0068] （３）針入度

未硬化のシリコーンゲル組成物４０ｍｌを、容量５０ｍｌの耐熱ガラスビーカーにとり、６０℃で３０分加熱して硬化させることにより、シリコーンゲルを得た。室温に冷却した後、ＪＩＳ　Ｋ　６２４９により、１／４コーンを用いて、加熱処理前の針入度（１）を測定した。また、未硬化のシリコーンゲル組成物４０ｍｌを、容量５０ｍｌの耐熱ガラスビーカーにとり、６０℃で３０分加熱して硬化させて、加熱処理前のシリコーンゲルを得た。次いで、１５０℃で１時間、加熱処理することにより、加熱処理後のシリコーンゲルを得た。室温に冷却した後、ＪＩＳ　Ｋ　６２４９により、１／４コーンを用いて、加熱処理後の針入度（２）を測定した。加熱処理による針入度変化率は、以下の数式（１）により求めた。針入度が大きいことは、硬化物の柔軟性が高く、応力緩和性に優れることを意味する。針入度変化率が小さいことは、加熱処理後の硬化物の柔軟性の変化率が小さいことを意味する。

針入度変化率＝（加熱処理前の針入度（１）－加熱処理後の針入度（２））÷加熱処理前の針入度（１）・・・数式（１）

[0069] （４）イエローインデックス（ＹＩ）

基材として、ガラス板（５ｃｍ×５ｃｍ×１ｍｍ厚）２枚を使用した。予め基材に配置したスペーサーによって、組成物の厚みが２００μｍになるよ

うにした。組成物を介して２枚のガラス板を、組成物の寸法が５０ｍｍ×５０ｍｍ、厚さが２００μｍになるように貼り合わせて、貼り合せ体を得た。貼り合せ体を、２５℃において３０分、７０℃において３０分熱処理して、組成物の硬化物を介して、２枚の基材が接着されている接着体を得た。接着体を２５℃の状態に戻した後に、変色の度合いの指標であるイエローインデックスを測定した。イエローインデックスの測定は、分光測式計（（株）ミノルタ製ＣＭ－３５００ｄ）を用いて行なった。

[0070] （５）ヘーズ（Ｈａｚｅ）

「（４）イエローインデックス」と同様にして、試料を作製した。作製した試料について、ＪＩＳ　Ｋ　７１０５に準拠し、ヘーズメータＮＤＨ５０００（日本電色工業株式会社製）を用いて、ヘーズを測定した。

[0071] （６）ｂ＊（Ｄ６５）

「（４）イエローインデックス」と同様にして、試料を作製した。作製した試料について、ｂ＊（Ｄ６５）を測定した。

[0072] （７）発泡

（７－１）試料（１）の作製

「（４）イエローインデックス」と同様にして、試料を作製した。

（７－２）試料（２）の作製

基材として、ガラス板（５ｃｍ×５ｃｍ×１ｍｍ厚）２枚を使用した。予め基材に配置したスペーサーによって、組成物の厚みが２００μｍになるようにした。組成物を介して２枚のガラス板を、組成物の寸法が５０ｍｍ×５０ｍｍ、厚さが２００μｍになるように貼り合わせて、貼り合せ体を得た。貼り合せ体を、６０℃において３０分熱処理して、組成物の硬化物を介して、２枚の基材が接着されている接着体を得た。この接着体を試料とした。

（７－３）発泡試験

作製した各試料を８５℃、８５％ＲＨの恒温恒湿機に５００時間入れ、目視により樹脂の気泡の有無を確認した。表において、「１／３発泡」とは、３つの試料のうち、１つの試料に気泡が確認されたことを示す。

[0073] （８）ガラス／ガラスせん断接着力（ＭＰａ）及び伸び（％）

平行に並べた２枚のガラス板（長さ８０ｍｍ、幅２５ｍｍ、厚さ２ｍｍ）の間に、組成物を縦２５ｍｍ、横１０ｍｍ、厚さ１５０μｍとなるように貼り合せ、これを６０℃で３０分間加熱して硬化させて、せん接着力測定用の試験体を作製した。得られた試験体を接着面に対して垂直方向に１０ｍｍ／分の速度で引っ張り、接着力及び伸びを測定した。

[0074] （９）冷熱サイクル試験

基材として、ガラス板（１４ｃｍ×１０ｃｍ×１ｍｍ厚）およびＰＭＭＡ（株式会社クラレ製）（１６ｃｍ×１１ｃｍ×１ｍｍ厚）を使用した。予め基材に配置したスペーサーによって、組成物の厚みが４００μｍになるように貼り合わせて、貼り合せ体を得た。貼り合せ体を、６０℃において３０分熱処理して、組成物の硬化物を介して、２枚の基材が接着されている接着体を得た。接着体を１サイクル（－４０℃、３０分と８５℃、３０分）の冷熱サイクル機に１００サイクル保持し、取り出し、目視により剥離（基材の分離）、樹脂割れの有無を目視により確認した。冷熱試験で、剥離及び樹脂割れが無いことは、高温高湿下での信頼性に優れる。表において、「２／５」とは、５つの試料のうち、２つの試料に剥離又は樹脂割れが確認されたことを示す。

[0075] 結果をまとめる。比較例７におけるH_{B2}は、Ｂ４におけるケイ素原子に結合した水素原子の値である。

[0076]

[表1]

	実施例1			実施例2			実施例3		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	52.08	49.034	45.988	54.5	50.244	45.988	56.94	51.464
a2	54	38	46	54	38	46	54	38	46
B1		9	4.5		6.8	3.4		4.6	2.3
B2		0.92	0.46		0.7	0.35		0.46	0.23
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			2.00			1.50			0.99
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			10.85			8.22			5.50
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			5.42			5.49			5.56
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			28			27			27
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			0.58			0.58			0.59

粘度(mPa・s)	3350	3240		3350	3580		3350	4060	
タックフリータイム			2'20			3'20			6'20
加熱処理前の針入度(1)			39			42			28
加熱処理後の針入度(2)			14			16			26
針入度変化率(%)			64			62			7
Haze			0.01			0.02			0.03
YI			0.28			0.07			0.08
b＊			0.17			0.07			0.06
発泡(試料1)			なし			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.18			0.23			0.28
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			58			64			57

[0077] [表2]

	実施例4			実施例5			実施例6		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	57.92	51.954	45.988	58.46	52.224	45.988	59.52	52.754
a2	54	38	46	54	38	46	54	38	46
B1		3.7	1.85		3.2	1.6		1.58	0.79
B2		0.38	0.19		0.34	0.17		0.9	0.45
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.80			0.70			0.98
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			4.47			3.92			5.52
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			5.59			5.60			5.64
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			27			27			26
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			0.58			0.58			0.20

粘度(mPa・s)	3350	4260		3350	4400		3350	4600	
タックフリータイム			9'00			12'00			3'30
加熱処理前の針入度(1)			64			91			13
加熱処理後の針入度(2)			54			77			10
針入度変化率(%)			16			15			23
Haze			0.04			0.04			0.04
YI			0.21			0.21			0.23
b＊			0.13			0.13			0.15
発泡(試料1)			なし			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.1			0.03			0.2
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			72			80			32

[0078]

[表3]

	実施例7			実施例8			実施例9		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	54.89	50.439	89.988	84.93	87.459	19.988	14.94	17.464
a2	54	38	46	10	10	10	80	80	80
B1		7	3.5		4.6	2.3		4.6	2.3
B2		0.11	0.055		0.47	0.235		0.46	0.23
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			1.00			0.98			1.00
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			5.47			5.55			5.50
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			5.50			5.63			5.49
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			27			5			52
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			0.90			0.58			0.59

粘度(mPa・s)	3350	3680		10400	8340		1570	1170	
タックフリータイム			12'00			3'20			11'00
加熱処理前の針入度(1)			124			11			90
加熱処理後の針入度(2)			112			8			84
針入度変化率(%)			10			27			7
Haze			0.04			0.05			0.01
YI			0.24			0.28			0.1
b＊			0.13			0.17			0.07
発泡(試料1)			なし			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.02			0.2			0.05
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			110			36			43

[0079] [表4]

	比較例1			比較例2			比較例3		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	59.47	52.729	45.988	49.9	47.944	45.988	60.84	53.414
a2	54	38	46	54	38	46	54	38	46
B1		2.3	1.15		11	5.5			0
B2		0.23	0.115		1.1	0.55		1.16	0.58
B4									
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.49			2.45			1.00
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			2.75			13.15			5.68
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			5.63			5.36			5.67
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			26			28			26
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			0.59			0.59			0.00

粘度(mPa・s)	3350	4600		3350	2870		3350	4930	
タックフリータイム			30分以上			2'00			3'00
加熱処理前の針入度(1)			未硬化			38			6
加熱処理後の針入度(2)			未硬化			14			3
針入度変化率(%)			未硬化			63			50
Haze			未硬化			0.02			0.04
YI			未硬化			0.27			0.27
b＊			未硬化			0.16			0.17
発泡(試料1)			未硬化			3/3発泡			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			未硬化			5/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			未硬化			0.25			0.31
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			未硬化			60			8

[0080]

[表5]

	比較例4			比較例5			比較例6			比較例7		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	54.2	50.094	99.988	94.82	97.404				45.988	55.7	50.844
a2	54	38	46				99.988	94.93	97.459	54	38	46
B1		7.8	3.9		4.7	2.35		4.6	2.3		4.6	2.3
B2					0.48	0.24		0.47	0.235			
B4											1.7	0.85
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			1.00			1.00			1.60			1.02
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			5.50			5.67			8.74			5.62
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			5.48			5.65			5.46			5.52
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			27			0			67			27
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			1.00			0.58			0.37			0.58

粘度(mPa･s)	3350	3570		12680	10400		840	730		3350	3800	
タックフリータイム			30分以上			2'30			30分以上			30分以上
加熱処理前の針入度(1)			未硬化			6			未硬化			30
加熱処理後の針入度(2)			未硬化			3			未硬化			20
針入度変化率(%)			未硬化			50			未硬化			33
Haze			未硬化			0.04			未硬化			0.06
YI			未硬化			0.19			未硬化			0.13
b＊			未硬化			0.13			未硬化			0.09
発泡(試料1)			未硬化			なし			未硬化			1/3発泡
冷熱サイクル(100サイクル)			未硬化			0/5			未硬化			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			未硬化			0.32			未硬化			0.32
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			未硬化			8			未硬化			46

[0081] [表6]

	実施例10			実施例11			実施例12			実施例13		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1	99.988	95	97.494	99.988	89.45	94.719	99.988	90.8	95.394	99.988	83.6	91.814
B1－1			0			0			0			0
B2		0.6	0.3		0.35	0.175		0.6	0.3		0.36	0.18
b3		4.4	2.2		10.2	5.1		8.6	4.3		16	8
B4												
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.60			0.70			0.80			0.99
$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$(mmol)			4.31			4.89			5.62			6.75
Vi_{A1}(mmol)			7.21			7.01			7.06			6.79
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			0			0			0			0
$H_{B2}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.68			0.35			0.52			0.26
$H_{B3}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.16			0.32			0.24			0.37

粘度 mPa･s	3600	3070		3600	2500		3600	2640		3600	2050	
タックフリータイム			4'40			7'30			3'30			4'40
加熱処理前の針入度(1)			52			102			32			59
加熱処理後の針入度(2)			47			95			27			53
針入度変化率 ((1)-(2))/(1)			9.6			6.9			15.6			10.2
Haze			0.01			0.01			0.03			0.05
YI			0.03			0.03			0.04			0.03
b＊			0.02			0.01			0.03			0.01
発泡(試料2)			なし			なし			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.26			0.04			0.43			0.26
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			28			30			26			33

[0082]

[表7]

	実施例14			実施例15			実施例16		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1	99.98	80.8	90.37	99.988	82.42	91.204	99.988	75.8	87.894
B1－1			0		5.7	2.85			0
B2		0.44	0.22		0.38	0.19		1.2	0.6
b3		18.8	9.4		11.5	5.75		23	11.5
B4									
C1	0.02		0.01	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	9.8	0.0	4.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			1.20			1.40			2.01
$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$(mmol)			8.01			9.46			13.04
Vi_{A1}(mmol)			6.69			6.75			6.50
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			0			0			0
$H_{B2}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.27			0.20			0.45
$H_{B3}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.37			0.19			0.27

粘度 mPa・s	3600	1900		3600	2000		3600	1580	
タックフリータイム			4'00	.		3'30			2'00
加熱処理前の針入度(1)			58			58			20
加熱処理後の針入度(2)			48			21			12
針入度変化率 ((1)-(2))/(1)			17.2			63.8			40.0
Haze			0.01			0.01			0.04
YI			0.08			0.05			0.06
b＊			0.04			0.02			0.04
発泡(試料2)			なし			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.22			0.29			0.24
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			29			37			16

[0083] [表8]

	比較例8			比較例9			比較例10			比較例11		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1	99.988	98.8	99.394	99.988	65.3	82.644	99.988	99.6	99.794	99.988	91	95.494
B1－1			0			0		8	4		8	4
B2		0.2	0.1		1.7	0.85		0.4	0.2			0
b3		1	0.5		33	16.5			0			0
B4									0		1	0.5
C1	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100	100	108	104	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9	5.9	0.0	2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.18			3.04			1.03			1.00
$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$(mmol)			1.29			18.61			7.60			7.04
Vi_{A1}(mmol)			7.36			6.12			7.38			7.07
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			0			0			0			0
$H_{B2}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.76			0.45			-			-
$H_{B3}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.12			0.28			0.00			0.00

粘度 (mPa・s)	3600	3500		3600	1060		3600	2840		3600	2600	
タックフリータイム			30分以上			1'20			5'00			30分以上
加熱処理前の針入度(1)			未硬化			22			7			18
加熱処理後の針入度(2)			未硬化			8			3			7
針入度変化率 ((1)-(2))/(1)			未硬化			63.6			57.1			61.1
Haze			未硬化			0.03			0.03			0.02
YI			未硬化			0.03			0.06			0.03
b＊			未硬化			0.02			0.02			0.02
発泡(試料2)			未硬化			3/3 発泡			なし			1/3発泡
冷熱サイクル(100サイクル)			未硬化			5/5			5/5			2/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			未硬化			0.21			0.24			0.23
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			未硬化			15			11			17

[0084]

[表9]

	実施例17			実施例18		
	(A)	(B)	Mix	(A)	(B)	Mix
A1－1	45.988	55.73	50.859	89.988	83.4	86.694
a2	54	38	46	10	10	10
B1－1		1.9	0.95		2	1
B2		0.47	0.235		0.5	0.25
b3		3.9	1.95		4.1	2.05
C1	0.012		0.006	0.012		0.006
合計	100	100	100	100	100	100
Pt含有量(ppm)	5.9	0	2.9			2.9
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.98			0.97
$(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})/Vi_{A1}$			1.25			1.02
$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$(mmol)			4.81			5.09
$Vi_{A1}+Vi_{A2}$(mmol)			4.91			5.23
Vi_{A1}(mmol)			3.86			5.00
$H_{B1}+H_{B2}$(mmol)			4.21			4.45
$(H_{B1}+H_{B2})/(Vi_{A1}+Vi_{A2})$			0.86			0.85
A1及びA2の合計100部に対する、A2の重量			27			5
$H_{B1}/(H_{B1}+H_{B2})$			0.43			0.43
$H_{B2}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.5			0.5
$H_{B3}/(H_{B1}+H_{B2}+H_{B3})$			0.13			0.13

粘度 mPa	3630	4120		11060	4200	
タックフリータイム			10'00			5'00
加熱処理前の針入度(1)			46			12
加熱処理後の針入度(2)			44			12
針入度変化率 ((1)-(2))/(1)			4.3			0.0
Haze			0.05			0.05
YI			0.04			0.1
b＊			0.03			0.05
発泡(試料2)			なし			なし
冷熱サイクル(100サイクル)			0/5			0/5
ガラス/ガラスせん断接着力(MPa)			0.35			0.53
ガラス/ガラスせん断伸び(%)			30			24

[0085] 実施例１～９の組成物は、（Ａ２）を含み、（Ｂ３）を含まない。実施例１０～１６の組成物は、（Ｂ３）を含み、（Ａ２）を含まない。実施例１７～１８の組成物は、（Ａ２）及び（Ｂ３）の両方を含む。

[0086] 実施例の各組成物は、室温での速硬化性に優れ、硬化後の組成物は、高い伸びを有し、応力緩和性に優れ、高温高湿下における信頼特性が良好であり、かつ、冷熱サイクルの信頼性に優れていた。

[0087] 実施例１～２と実施例３～５とを比較すると、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対する（Ａ２）の重量がほぼ同じであり、かつ、H_{B1}／（H_{B1}＋H_{B2}）がほぼ同じである場合、（H_{B1}＋H_{B2}＋H_{B3}）／（Vi_{A1}＋

Vi_{A2}）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$））が０．９９以下である実施例３～５の硬化物は、針入度変化率が小さく、加熱処理後であっても、応力緩和性に優れていた。更に、実施例３と実施例４～５とを比較すると、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$））が０．８以下である実施例４～５の硬化物は、より高い伸びを有していた。

実施例３と実施例６～７とを比較すると、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対する（Ａ２）の重量がほぼ同じであり、かつ、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$））がほぼ同じである場合、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）が特に好ましい範囲である実施例３の硬化物は、接着力がより向上した。また、実施例６及び７の組成物において（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$））が実施例４及び５とほぼ同じに代えた組成物に対して、実施例４及び５の組成物は、接着力がより向上した硬化物が得られると推測される。

実施例３～８と実施例９とを比較すると、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）がほぼ同じであり、かつ、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$））がほぼ同じである場合、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）の重量が更に好ましい範囲であると、接着力がより向上し、（Ａ２）の重量が特に好ましい範囲であると、接着力がより向上することに加えて、伸びがより向上した。

[0088] 比較例１は、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６未満であるため、室温での硬化が遅かった。

比較例２は、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が２．２超であるため、硬化物中に気泡が確認され、冷熱サイクル試験後の全ての試験片において、剥離及び樹脂割れの発生が見られ、高温高湿下での信頼性に劣っていた。

比較例３は、（Ｂ１）を含まないため、応力緩和性が劣り、かつ、伸びが

小さい硬化物が得られた。

比較例４は、（Ｂ２）を含まないため、室温での硬化が遅かった。

比較例５は、（Ａ２）及び（Ｂ３）の両方を含まないため、応力緩和性が劣り、かつ、伸びが小さい硬化物が得られた。

比較例６は、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）が６０重量部超であるため、室温での硬化が遅かった。

比較例７は、（Ｂ２）の代わりに、中間単位にケイ素原子に結合する水素原子を有する直鎖状ポリオルガノハイロドジェンシロキサンを用いているため、室温での硬化が遅かった。加えて、比較例７は、硬化物に中に気泡が確認された。

[0089] 実施例１０～１５と実施例１６とを比較すると、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}）が０．６～１．４である場合、応力緩和性がより向上し、冷熱サイクル試験後の剥離及び樹脂割れの発生が全く無く、冷熱サイクル試験後の信頼特性がより向上する。なお、実施例７は、冷熱サイクル試験後の４つの試験片において、剥離及び樹脂割れの発生は無かった。そして、実施例１６は、冷熱サイクル試験後の１つの試験片において、試験片の角にほんの少しだけ剥離が発生していたが、試験片に多数の気泡、亀裂は観察されなかった。一方、比較例において、全ての試験片において多数の気泡、亀裂が観察された。

実施例１０～１３と実施例１４～１６とを比較すると、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）（即ち、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}）が０．６～０．９９である場合、加熱処理後の硬化物の柔軟性の低下が小さくなり、加熱処理後であっても、応力緩和性に優れていた。

[0090] 比較例８は、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６未満であるため、室温での硬化が遅かった。

比較例９は、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が２．２超であるため、高温高湿での処理後の硬化物中に、気泡が確認され、冷熱サイクル試験後の全ての試験片において、剥離及び樹脂割れの発生が見られ、高温高

湿下での信頼性に劣っていた。

比較例１０は、（Ａ２）及び（Ｂ３）の両方を含まないため、応力緩和特性が劣り、かつ、冷熱サイクル試験後の全ての試験片において、剥離及び樹脂割れの発生が見られ、高温高湿下での信頼性に劣っていた。

比較例１１は、（Ｂ２）の代わりに、中間単位にケイ素原子に結合する水素原子を有する直鎖状ポリオルガノハイロドジェンシロキサンを用いているため、室温での硬化が遅かった。加えて、比較例１１は、応力緩和特性が劣り、高温高湿での処理後の硬化物中に泡が確認され、冷熱サイクル試験後の試験片の２つにおいて剥離及び樹脂割れの発生が確認され、高温高湿下での信頼性に劣っていた。

[0091] 実施例１７と実施例３と、及び、実施例１８と実施例８とを比較すると、（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対する（Ａ２）の重量がほぼ同じであり、かつ、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）がほぼ同じである場合、（Ｂ３）を含む実施例１７及び１８は、針入度変化率がより小さくなり、加熱処理後であっても、応力緩和性に優れていた。

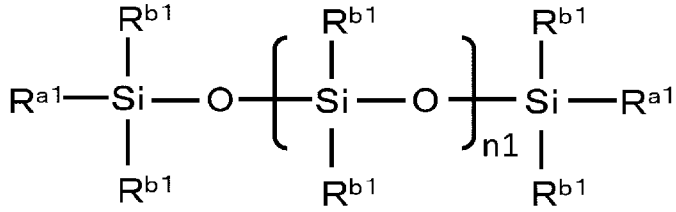
産業上の利用可能性

[0092] 硬化性ポリオルガノシロキサン組成物は、ブラウン管、液晶、プラズマ、有機ＥＬ等の画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部との接着において有用である。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ１）式（Ｉ）：

[化11]



(I)

（式中、

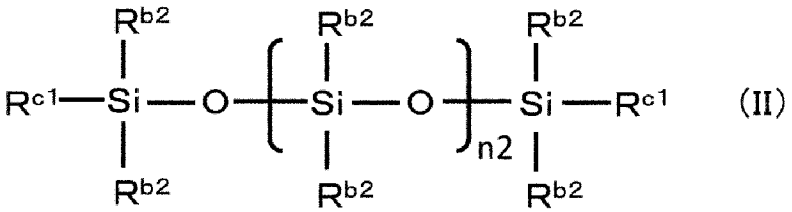
R^{a1}は、独立して、C_2－C_6アルケニル基であり、

R^{b1}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ１は、（Ａ１）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサンと；

（Ｂ１）式（II）：

[化12]



(II)

（式中、

R^{c1}は、水素原子であり、

R^{b2}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

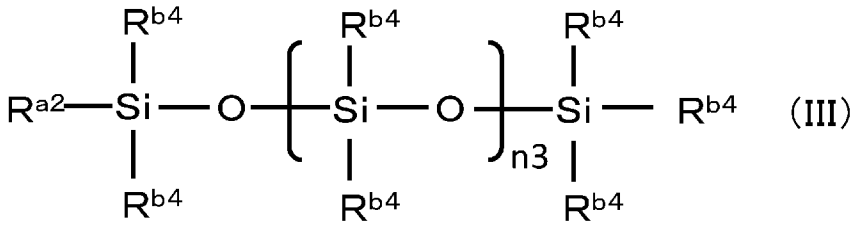
ｎ２は、（Ｂ１）の２３℃における粘度を０．１～３００ｍＰａ・ｓとする数である）で示されるポリオルガノハイドロジェンシロキサンと；

（Ｂ２）$R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}$単位（式中、$R^{b3}$は、独立して、$C_1$

－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、R^{c2}は、水素原子である）及び$SiO_{4/2}$単位からなり、一分子中に、ケイ素原子に結合した水素原子を３個以上有する、ポリオルガノハイドロジェンシロキサンと；

（Ａ２）式（III）：

[化13]



（III）

（式中、

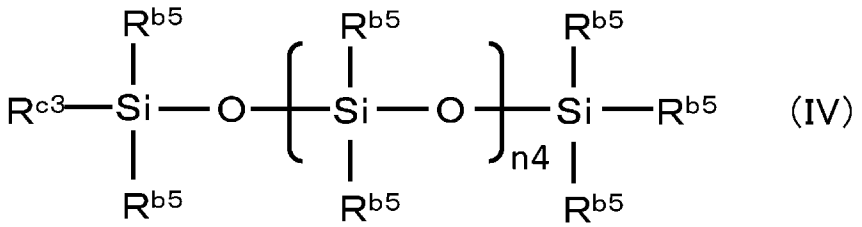
R^{a2}は、独立して、C_2－C_6アルケニル基であり、

R^{b4}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ３は、（Ａ２）の２３℃における粘度を１０ｍＰａ・ｓ～１，０００，０００ｍＰａ・ｓにする数である）で示されるアルケニル基含有ポリオルガノシロキサン、及び

（Ｂ３）式（IV）：

[化14]



（IV）

（式中、

R^{c3}は、水素原子であり、

R^{b5}は、独立して、C_1－C_6アルキル基又はC_6－C_{20}アリール基であり、

ｎ４は、（Ｂ３）の２３℃における粘度を０．１ｍＰａ・ｓ～３００

ｍＰａ・ｓとする数である）で示される直鎖状ポリオルガノハイドロジェンシロキサン

からなる群より選択される１以上と；

（Ｃ）白金系触媒と；

を含み、

（Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）が０重量部以上６０重量部以下であり、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～２．２であり、ここで、Vi_{A1}は、（Ａ１）のアルケニル基のモル数であり、Vi_{A2}は、（Ａ２）のアルケニル基のモル数であり、H_{B1}は、（Ｂ１）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B2}は、（Ｂ２）のケイ素原子に結合した水素原子のモル数であり、H_{B3}は、（Ｂ３）の水素原子のモル数である、硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項2] （Ｂ２）が、３～５個の$SiO_{4/2}$単位が環状シロキサン骨格を形成し、各$SiO_{4/2}$単位に２個の$R^{b3}{}_2R^{c2}SiO_{1/2}$単位が結合している、環状ポリオルガノハイドロジェンシロキサンである、請求項１記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項3] 組成物が（Ａ２）を含み、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～２．２である、請求項１又は２記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項4] （Ａ１）及び（Ａ２）の合計１００重量部に対して、（Ａ２）が５～３７重量部であり、（$H_{B1}+H_{B2}$）／（$Vi_{A1}+Vi_{A2}$）が０．６～０．９９であり、かつ、H_{B1}／（$H_{B1}+H_{B2}$）が、０．３～０．８である、請求項３記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項5] 組成物が（Ｂ３）を含み、（$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が０．６～２．５である、請求項１～４のいずれか１項記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項6] （$H_{B1}+H_{B2}+H_{B3}$）／Vi_{A1}が０．６～０．９９である、請求

項５記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項7] 画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部との接着用である、請求項１～６のいずれか１項記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか１項記載の硬化性ポリオルガノシロキサン組成物を用いて、画像表示装置の画像表示部を有する基部と透光性の保護部とを接着した画像表示装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/022201

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L83/07(2006.01)i, *C08L83/05*(2006.01)i, *G09F9/00*(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)
C08L83/07, C08L83/05, G09F9/00

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2014/104080 A1 (Momentive Performance Materials Japan L.L.C.), 03 July 2014 (03.07.2014), claim 1; paragraphs [0078] to [0080] & US 2015/0337189 A1 claim 1 & EP 2940077 A1 & CN 104870568 A	1-8
A	JP 63-256773 A (Toray Silicone Co., Ltd.), 24 October 1988 (24.10.1988), claim 1 (Family: none)	1-8

☐ 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
29 August 2017 (29.08.17)	12 September 2017 (12.09.17)

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

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０２２２０１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L83/07(2006.01)i, C08L83/05(2006.01)i, G09F9/00(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.　C08L83/07, C08L83/05, G09F9/00

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	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７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）

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	WO 2014/104080 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）2014.07.03 請求項1、[0078]－[0080] & US 2015/0337189 A1、請求項1 & EP 2940077 A1 & CN 104870568 A	1-8
A	JP 63-256773 A（トーレ・シリコーン株式会社）1988.10.24 請求項1 （ファミリーなし）	1-8

☐　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
２９．０８．２０１７	１２．０９．２０１７

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　４７７２
中村　英司
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７