

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006 年 12 月 14 日 (14.12.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/132233 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 23/22 (2006.01) *C08L 53/00* (2006.01)
C03C 27/12 (2006.01) *C09K 3/10* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/311308
- (22) 国際出願日: 2006 年 6 月 6 日 (06.06.2006)
- (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2005-166600 2005 年 6 月 7 日 (07.06.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社カネカ (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒5308288 大阪府大阪市北区中之島 3 丁目 2 番 4 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 八尾剛史 (YAO, Takeshi) [JP/JP]; 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西 5 丁目 1-1 株式会社カネカ内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 安富康男, 外(YASUTOMI, Yasuo et al.); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原 3 丁目 5 番 3 6 号 新大阪 M T-2 ビル Osaka (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 樹脂組成物

(57) **Abstract:** The invention provides a resin composition which is excellent in mechanical strength and elasticity and exhibits little gravity deformation even under high-temperature conditions, that is, a resin composition characterized by comprising an isobutylene polymer (A), an aromatic vinyl thermoplastic elastomer (B) consisting of a polymer block (b1) composed of aromatic vinyl monomer units and a polymer block (b2) composed of monomer units of an aliphatic hydrocarbon except isobutylene, and a filler (C). The composition is favorably usable as sealing material, particularly hot-melt sealing material for double-glazing units or as a hot-melt spacer for double-glazing units.

(57) 要約: 本発明は、機械的強度と弾性に優れ、更に、高温条件下における自重変形が小さい樹脂組成物を提供することを目的とする。本発明はイソブチレン系重合体 (A)、芳香族ビニル系化合物を構成単量体とする重合体ブロック (b1) と、イソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物を構成単量体とする重合体ブロック (b2) とからなる芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー (B)、および、充填材 (C) からなることを特徴とする樹脂組成物に関する。この組成物は、例えば、シーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材、あるいは複層ガラス用ホットメルトスペーサーとして好適に使用することが出来る。

WO 2006/132233 A1

明 細 書

樹脂組成物

技術分野

- [0001] 本発明は、機械的強度と弾性に優れ、更に、高温条件下においても低自重変形性を示す樹脂組成物に関する。また、この樹脂組成物からなるシーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材や、複層ガラス用ホットメルトスペーサーに関する。

背景技術

- [0002] シーリング材は、水密性や気密性を得るために目地に充填する材料として、自動車や建材などに幅広く使用される。シーリング材には高い気密性が求められ、また使用する用途により異なるものの、多くの場合、高弾性や高機械的強度などの特性を有することが求められる。
- [0003] 建材用シーリング材の使用例の一つとして、複層ガラスへの使用が挙げられる。複層ガラスとは、一般的に2枚以上のガラスパネルからなり、その間にスペーサーを入れて間隔が保たれるようにしたガラスである。複層ガラスでは、スペーサーとガラスの間等にシーリング材が施工され、ガラスパネル間は、乾燥空気、窒素、アルゴンや六フッ化硫黄といった気体で満たされており、これにより、断熱性、遮音性、結露防止などの効果が得られることとなる。
- [0004] 複層ガラスの構造はさまざまであり、その構造に応じて、種々のシーリング材がさまざまな方法で施工される。このようなシーリング材としては、例えばホットメルト接着剤が挙げられる。また、スペーサーとしてホットメルトスペーサーを用いる場合もある。ホットメルト材を使用した複層ガラスの例としては、塩化ビニル樹脂や、イソブチレン系重合体を主成分として構成されたホットメルトブチルなどの熱可塑性樹脂に乾燥剤を練り込んだ材料をスペーサーとした複層ガラスが知られている(特許文献1)。
- [0005] 上記イソブチレン系重合体を主成分として構成されたホットメルトブチルは、気密性や水密性を保持できるガスバリア性、耐候性、粘着性などの特性を有することから、複層ガラス用シーリング材によく使用されている。具体的には、内部に乾燥剤を入れたアルミスペーサーを用いる構造の複層ガラスにおいて、そのアルミスペーサーとガ

ラスとの間の固定用の一次シール剤としてホットメルト塗布されて使われたり、またそのアルミスペーサーの外部に二次シール剤としてホットメルト塗布されたりする例が挙げられる。また最近では、このホットメルトブチルに乾燥剤を練り込んだ材料をそのまま複層ガラスの片側の端部にホットメルト塗布し、熱可塑樹脂製スペーサーとして用いられている例もある。いずれの構成においても、ホットメルトブチルの担うべき役割は、ガラスとの接着による気密性維持にある。しかしながらその使用環境によっては長期使用中にホットメルトブチルが破壊したり変形剥離したりすることによって、その性能が維持出来ず、気密性が失われるケースがある。また、特に、高温条件下での自重による変形(自重変形性)や、弾性や機械的強度の不足が問題となることがある。

[0006] 特許文献1:特開平7-17748号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明の課題は、シーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材、および複層ガラス用ホットメルトスペーサーとして使用することが可能な樹脂組成物であって、機械的強度と弾性に優れ、更に、高温条件下での自重による変形が小さい樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。

[0009] すなわち本発明は、イソブチレン系重合体(A)、芳香族ビニル系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b1)と、イソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b2)とからなる芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)、および、充填材(C)からなることを特徴とする樹脂組成物に関する。

[0010] 好ましい実施形態においては、上記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の数平均分子量は30000～300000である。

[0011] 好ましい実施形態においては、上記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)にお

ける上記重合体ブロック(b2)と上記重合体ブロック(b1)の重量比が $(b2)/(b1) = 95/5 \sim 50/50$ である。

[0012] 好ましい実施形態においては、上記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)は、スチレン系熱可塑性エラストマーである。

[0013] さらに好ましい実施形態においては、上記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)は、スチレンー(エチレン/プロピレン)ースチレントリブロック共重合体およびスチレンー(エチレン/ブチレン)ースチレントリブロック共重合体からなる群から選ばれる少なくとも1種である。

[0014] また上記充填材(C)は、炭酸カルシウムおよびカーボンブラックからなる群より選ばれる少なくとも1種であるのが好ましい。

[0015] また上記樹脂組成物は、吸湿性化合物(D)をさらに含有するのが好ましい。

[0016] 上記吸湿性化合物(D)は、シリカゲル、アルミナおよびゼオライトからなる群より選ばれる少なくとも1種であるのが好ましい。

[0017] さらに本発明は、上記樹脂組成物からなるシーリング材に関する。

[0018] さらに本発明は、上記樹脂組成物からなる複層ガラス用ホットメルトシーリング材に関する。

[0019] さらに本発明は、上記樹脂組成物からなる複層ガラス用ホットメルトスペーサーに関する。

[0020] 以下に本発明を詳述する。

本発明に係る樹脂組成物は、イソブチレン系重合体(A)、芳香族ビニル系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b1)と、イソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b2)とからなる芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)、および、充填材(C)からなる。

[0021] 本発明に係る組成物においては、イソブチレン系重合体(A)により、ホットメルト接着性が付与される。また、芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)は、芳香族ビニル系化合物ブロックを有していることに由来する剛性を有していることが特徴であり、他の熱可塑性エラストマーを用いた場合と比較して、組成物の水密性や気密性を損なわないばかりでなく、高温条件下で自重変形しないという利点がある。更に、充填材(

C)により、剛性が付与される。

[0022] イソブチレン系重合体(A)としては、ポリイソブチレン、ポリブテン、ブチルゴム等として通常市販されている多くの商品がこれに相当する。具体的にはEXXON製ビスタネックス(LM-MS、MH、HまたはMML-80、100、120、140等)、新日本石油製テトラックス(3T、4T、5T、6T等)、ポリブテン(HV)ハイモール(4H、5H、6H等)、およびBASF製オパノール(B10、B12、B15、B50、B80、B100、B120、B150、B220等)、EXXON製BUTYL(007、065、068、168、268、269、365)などが例示できる。特に限定するものではないが、十分なホットメルト性を付与するためには、重合体中にイソブチレンを構成単量体として、重合体100重量部あたり50重量部以上有するのが好ましく、80重量部以上含有するのがより好ましく、90重量部以上含有するのが更に好ましい。イソブチレン系重合体(A)に含有されるイソブチレン以外の単量体としては、カチオン重合可能な単量体成分であれば特に限定されないが、芳香族ビニル類、脂肪族オレフィン類、脂環式アルケン類、ジエン類、ビニルエーテル類、 β -ピネン等の単量体が例示できる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。

[0023] 上記芳香族ビニル類としては、スチレン、*o*-、*m*-又は*p*-メチルスチレン、 α -メチルスチレン、 β -メチルスチレン、2,6-ジメチルスチレン、2,4-ジメチルスチレン、 α -メチル-*o*-メチルスチレン、 α -メチル-*m*-メチルスチレン、 α -メチル-*p*-メチルスチレン、 β -メチル-*o*-メチルスチレン、 β -メチル-*m*-メチルスチレン、 β -メチル-*p*-メチルスチレン、2,4,6-トリメチルスチレン、 α -メチル-2,6-ジメチルスチレン、 α -メチル-2,4-ジメチルスチレン、 β -メチル-2,6-ジメチルスチレン、 β -メチル-2,4-ジメチルスチレン、*o*-、*m*-又は*p*-クロロスチレン、2,6-ジクロロスチレン、2,4-ジクロロスチレン、 α -クロロ-*o*-クロロスチレン、 α -クロロ-*m*-クロロスチレン、 α -クロロ-*p*-クロロスチレン、 β -クロロ-*o*-クロロスチレン、 β -クロロ-*m*-クロロスチレン、 β -クロロ-*p*-クロロスチレン、2,4,6-トリクロロスチレン、 α -クロロ-2,6-ジクロロスチレン、 α -クロロ-2,4-ジクロロスチレン、 β -クロロ-2,6-ジクロロスチレン、 β -クロロ-2,4-ジクロロスチレン、*o*-、*m*-又は*p*-*t*-ブチルスチレン、*o*-、*m*-又は*p*-メトキシスチ

レン、o-、m-又はp-クロロメチルスチレン、o-、m-又はp-ブロモメチルスチレン、シリル基で置換されたスチレン誘導体、インデン、ビニルナフタレン等が挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。

- [0024] 上記脂肪族オレフィン類としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、2-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、ペンテン、ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、オクテン等が挙げられる。また上記脂環式アルケン類としては、シクロヘキセン、ビニルシクロヘキサン、ノルボルネン等が挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。
- [0025] 上記ジエン類としては、ブタジエン、イソプレン、ヘキサジエン、シクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ジシクロペンタジエン、ジビニルベンゼン、エチリデンノルボルネン等が挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。
- [0026] 上記ビニルエーテル類としては、メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、(n-、イソ-)プロピルビニルエーテル、(n-、sec-、tert-、イソ-)ブチルビニルエーテル、メチルプロペニルエーテル、エチルプロペニルエーテル等が挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。
- [0027] イソブチレン系重合体(A)の数平均分子量は、特に制限はないが、1000~300000が好ましく、特に10000~100000が好ましい。
- [0028] 本発明においては、各重合体の数平均分子量はゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)によってポリスチレン換算で求めた値であり、例えば、Waters社製GPCシステム(カラム:昭和電工(株)製Shodex K-804(ポリスチレンゲル)、移動相:クロロホルム)を使用することにより測定することができる。
- [0029] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)中の重合体ブロック(b1)を構成する芳香族ビニル系化合物としては、特に限定されないが、例えば、芳香族ビニル類として既に例示した各化合物が挙げられる。
- [0030] 芳香族ビニル系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b1)は、芳香族ビニル系化合物以外の単量体を含んでいても、含んでいなくてもよい。芳香族ビニル系化合物以外の単量体を含む場合には、高温条件下での自重変形性を十分小さくするた

めには、重合体ブロック(b1)全体のなかで芳香族ビニル化合物由来の単量体単位が60重量%以上を占めることが好ましく、80重量%以上を占めることがより好ましい。重合体ブロック(b1)全体のなかで芳香族ビニル系化合物由来の単量体単位が60重量%未満の場合、重合体ブロックの凝集力が低下するため好ましくない。芳香族ビニル化合物以外の単量体としては、芳香族ビニル化合物と重合可能な単量体であれば特に限定されないが、例えば、上記の脂肪族オレフィン類、脂環式アルケン類、ジエン類、ビニルエーテル類、 β -ピネン等の単量体が例示できる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上組み合わせて用いてもよい。

[0031] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)中の重合体ブロック(b2)を構成するイソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物としては、イソブチレンを除く脂肪族オレフィン類、ジエン類などが挙げられる。さらに本発明においては、「脂肪族炭化水素系化合物」には脂環式アルケン類などの脂環式化合物も含むものとする。具体的には、上述の脂肪族オレフィン類、脂環式アルケン類、ジエン類等として例示した各化合物が挙げられる。

[0032] イソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b2)は、脂肪族炭化水素系化合物以外の単量体を含んでいてもよいし含んでいなくてもよい。脂肪族炭化水素系化合物以外の単量体を含む場合には、樹脂組成物中のイソブチレン系重合体(A)との相溶性を上げるためには、重合体ブロック(b2)全体のなかで脂肪族炭化水素系化合物が60重量%以上を占めることが好ましく、80重量%以上を占めることがより好ましい。重合体ブロック(b2)中の脂肪族炭化水素系化合物以外の単量体としては、特に限定されないが、上記のビニルエーテル類等の単量体が例示できる。

[0033] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の組成における上記重合体ブロック(b2)と上記重合体ブロック(b1)との重量比率は、特に制限はないが、 $(b2)/(b1) = 95/5 \sim 50/50$ が好ましく、 $95/5 \sim 60/40$ がさらに好ましい。特に、高温条件下での自重変形性を小さくするという観点から、 $85/15 \sim 65/35$ が好ましい。

[0034] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の数平均分子量は、特に制限はないが、30000～300000が好ましい。特に、高温条件下での自重変形性の改善とホットメ

ルト作業性の観点から、50000～150000が好ましい。なお、上述の通り、本明細書における数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、ポリスチレン換算で算出した値である。

- [0035] 本発明に係る樹脂組成物における芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の割合としては、特に制限はないが、イソブチレン系重合体(A)100重量部に対し、好ましくは1～30重量部であり、さらに好ましくは5～20重量部である。芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の割合が少ないと、高温条件下での自重変形性の改善効果が小さく、多すぎると、硬くなりすぎてホットメルトでのシール部の剥離が起こるなど、粘着性が悪くなる。
- [0036] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の構造は、特に制限されないが、例えば、直鎖状、分岐状、星状等の構造を有するブロック共重合体、ジブロック共重合体、トリブロック共重合体、マルチブロック共重合体のいずれでも良い。
- [0037] 芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の組成は、入手性や高温での流動性の面から、スチレン系ブロックと、ブタジエンおよび／又はイソプレンのブロックよりなるブロック共重合体やその水素添加物が挙げられ、より具体的な例としては、SBS(スチレンーブタジエンーすチレンブロック共重合体)、SIS(スチレンーイソプレンーすチレンブロック共重合体)、SEBS(スチレンー(エチレン／ブチレン)ーすチレンブロック共重合体)、SEPS(スチレンー(エチレン／プロピレン)ーすチレンブロック共重合体)、SEEPS(スチレンー[エチレンー(エチレン／プロピレン)]ーすチレンブロック共重合体)などが挙げられる。これらのうち、特にSEBS、SEPS、SEEPSが好ましい。
- [0038] 充填材(C)は、本発明の樹脂組成物の剛性を向上させる効果があり、また、使用温度域での形状維持性を向上させ、またホットメルト時の垂れを抑制する効果を有する。充填材(C)としては、特に制限はなく従来公知のものを使用することができる。例えば、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、溶融シリカ、結晶シリカ、珪藻土、クレー、タルク、雲母、カオリン、酸化チタン、酸化亜鉛、カーボンブラック、ベントナイト、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウム等よりなる群から選択される少なくとも1種を使用することができる。これらのうちで、炭酸カルシウム、カーボンブラックが好ましく、少量で剛性を向上させる効果を有するカーボンブラックが特

に好ましい。

- [0039] 充填材(C)の添加量は、特に制限はないが、イソブチレン系重合体(A)100重量部に対し、1～300重量部とするのが好ましく、50～150重量部であるのがより好ましい。
- [0040] 本発明に係る組成物は、さらに吸湿性化合物(D)を含有していてもよい。吸湿性化合物(D)としては、ゼオライト、シリカゲル、アルミナが例示でき、これらはそれぞれ単独で、または2種以上を組み合わせ使用することができる。このような吸湿性化合物は、本発明に係る樹脂組成物の水蒸気透過率を減少させ、複層ガラスのガラス板に挟まれた空隙部が湿気によって曇ることを防ぐことができる。吸湿性化合物(D)の配合量はイソブチレン系重合体(A)100重量部に対して1～100重量部であることが好ましい。
- [0041] 本発明に係る樹脂組成物には、物性を損なわない範囲で、さらに酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、顔料、界面活性剤、難燃剤等を適宜配合することができる。公知のブロッキング防止剤、帯電防止剤、着色剤、無機ないし有機抗菌剤、滑剤なども配合することができる。
- [0042] 本発明に係る樹脂組成物の製造方法は、特に限定されるものではなく、例えば、ロール、バンバリーミキサー、ニーダー、攪拌機を備えた溶融釜又は一軸若しくは二軸の押出機を用いて機械的に混練する方法を用いることができる。このときに、必要に応じて加熱してもよい。また、均一溶液とし、溶剤を留去する方法も用いることができる。
- [0043] 混練条件としては、芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)が溶融する温度以上であればよく、260℃以下が好ましい。
- [0044] 本発明に係る樹脂組成物は、さらに必要に応じ、熱可塑性樹脂組成物に対して一般に採用される成形方法及び成形装置を用いて成形でき、例えば、押出成形、射出成形、プレス成形、ブロー成形等によって成形することができる。
- [0045] 以上のようにして得られた樹脂組成物は、高弾性かつ高機械的強度を有し、また高温条件下での自重による変形が小さい。一方で、ガラスに対する施工、つまり、アプリケーションのような塗布機を想定した場合、剪断力が発生し、容易に流動することから

、例えば、シーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材として、あるいは複層ガラス用ホットメルトスペーサーとして好適に使用することが出来る。

発明の効果

- [0046] 本発明に係る樹脂組成物は、高温条件下での自重による変形が小さく、また従来の組成物と比較して、高い弾性および機械的強度を有する。本発明に係る樹脂組成物は、高い弾性や機械的強度、ガスバリア性等が要求されるシーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材として、あるいは複層ガラス用ホットメルトスペーサーとして好適に用いることができる。

発明を実施するための最良の形態

- [0047] 以下に、実施例に基づき本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらにより何ら制限を受けるものではない。

- [0048] [実施例等記載成分の内容]

PIB:ポリイソブチレン(BASF社製、商品名「オパノールB12」)

SEBS:スチレンー(エチレン/ブチレン)ースチレントリブロック共重合体(クレイトンジャパン社製、商品名「クレイトンG1650」)

SEPS:スチレンー(エチレン/プロピレン)ースチレントリブロック共重合体(クラレ社製、商品名「セプトン2007」)

SEEPS:スチレンー[エチレンー(エチレン/プロピレン)]ースチレントリブロック共重合体(クラレ社製、商品名「セプトン4033」)

炭酸カルシウム(白石カルシウム社製、商品名「ソフトン3200」)

カーボンプラック(旭カーボン社製、商品名「旭カーボン # 60HN」)

シリカゲル(東ソーシリカ社製、商品名「ニップジェルCX200」)

- [0049] [自重変形性試験の方法]

まず、金型とプレス成形機(設定温度180℃)を用いて、得られた樹脂組成物を幅20mm×長さ40mm×厚み6mmのシートに成形した。幅50mm×長さ50mm×厚み5mmのガラス板を準備し、図1のように、上記シートをガラス面に対し垂直に圧着させた。シートを圧着させたガラス板を、台を用いて地面に対し垂直に固定して、120℃の熱風乾燥機中で12時間放置した。12時間の試験後、図2のように、上記シートの

下部の位置について、元の位置と加熱後の位置の距離 x (mm)を測定した。上記の加熱試験後の距離 x (mm)の大きさにより、以下の基準で自重変形性を評価した。

○:上記の加熱試験後の距離 x (mm)が1mm未満である。

△:上記の加熱試験後の距離 x (mm)が1mm以上、3mm未満である。

×:上記の加熱試験後の距離 x (mm)が3mm以上である。

[0050] [引張試験の試験方法]

JIS K 6251に準拠し、2.0mm厚ミニダンベルを作製し、これを用いて引張り試験を行った。この際、引張速度500mm/分とした。

[0051] (実施例1)

イソブチレン系重合体(BASF社製、オパノールB12)90重量部、スチレンー(エチレン/プロピレン)ースチレントリブロック共重合体(SEPS、セプトン2007、クラレ社製)10重量部、炭酸カルシウム(ソフトン3200、白石カルシウム社製)40重量部、カーボンブラック(旭カーボン#60HN、旭カーボン社製)50重量部、シリカゲル(ニップジェルCX200、東ソーシリカ社製)10重量部をラボプラストミル(東洋精機製作所社製)にて、設定温度170℃の条件下で10分間熔融混練し、樹脂組成物を得た。

[0052] (実施例2)

表1に示すように、芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)として、スチレンー[エチレンー(エチレン/プロピレン)]ースチレントリブロック共重合体(SEEPS、セプトン4033、クラレ社製)を使用した以外は、実施例1と同様にして、樹脂組成物を得た。この組成物を用いて、上記の方法で各種物性評価を行った。その結果を表1に示す。

[0053] (実施例3)

表1に示すように、芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)として、スチレンー(エチレン/ブチレン)ースチレントリブロック共重合体(SEBS、クレイトンG1650、クレイトンジャパン社製)を使用した以外は、実施例1と同様にして、樹脂組成物を得た。この組成物を用いて、上記の方法で各種物性評価を行った。その結果を表1に示す。

[0054] (比較例1)

表1に示すように、イソブチレン系重合体(A)と芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の割合が異なる以外は、実施例1と同様にして、樹脂組成物を得た。この組成

物を用いて、上記の方法で各種物性評価を行った。その結果を表1に示す。

[0055] [表1]

成分	構成成分		製品名	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
(A)	イソブチレン系重合体	ポリイソブチレン	オパノール B12	90	90	90	100
(B)	芳香族ビニル系 熱可塑性エラストマー	SEPS	セプトン2007	10			
		SEEPS	セプトン4033		10		
		SEBS	クレイトンG1650			10	
(C)	充填材	炭酸カルシウム	ソフトン3200	40	40	40	40
		カーボンブラック	旭カーボン #60HN	50	50	50	50
(D)	吸湿性化合物	シリカゲル	ニップジェルCX200	10	10	10	10
自重変形性試験(120℃)							
引張強度(50%伸び) [MPa]				○	○	○	×
				1.0	1.0	1.1	0.4

[0056] 実施例1～3では、高温条件下での自重変形性が改善され、変形は確認されなかつ

た。

[0057] 一方、芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)が含まれていない比較例1では、高温条件下(120℃)での自重による変形が大きく、3mm以上の変形が確認された。

[0058] また、50%伸びにおける引張強度は、実施例1～3では1.0～1.1MPaを示した一方、比較例1では0.4MPaであり、実施例1～3は機械的強度に優れることがわかる。

[0059] 以上のように、本発明に係る組成物は、機械的強度や弾性に優れるだけでなく、特に高温での自重変形性が小さいことがわかった。このような樹脂組成物は、シーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材、複層ガラス用ホットメルトスペーサーに好適に使用できる。

産業上の利用可能性

[0060] 本発明の樹脂組成物は、シーリング材、特に複層ガラス用ホットメルトシーリング材、複層ガラス用ホットメルトスペーサーに好適に使用できる。

図面の簡単な説明

[0061] [図1]自重変形性試験用試験体の概略構成図である。

[図2]図1の試験体の断面図である。

請求の範囲

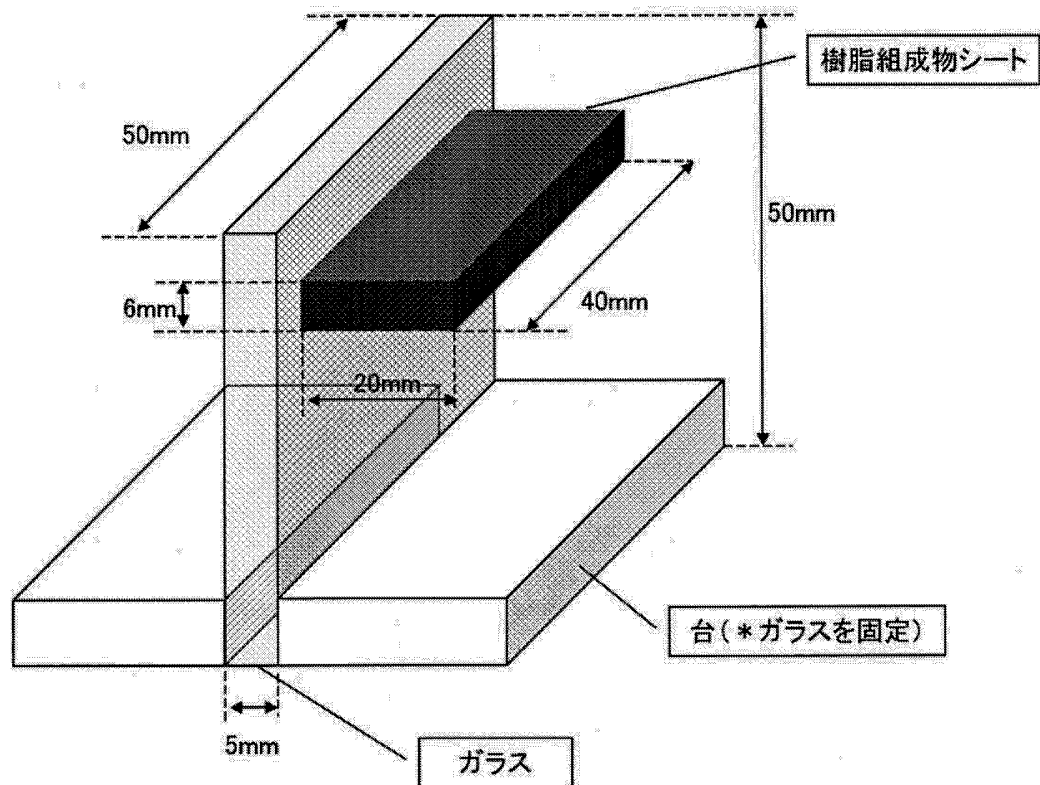
- [1] イソブチレン系重合体(A)、
芳香族ビニル系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b1)と、イソブチレン以外の脂肪族炭化水素系化合物を構成単量体とする重合体ブロック(b2)とからなる芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)、および、
充填材(C)
からなることを特徴とする樹脂組成物。
- [2] 前記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)の数平均分子量が30000～300000であることを特徴とする請求項1に記載の樹脂組成物。
- [3] 前記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)において、前記重合体ブロック(b2)と前記重合体ブロック(b1)の重量比が $(b2)/(b1) = 95/5 \sim 50/50$ であることを特徴とする請求項1または2に記載の樹脂組成物。
- [4] 前記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)が、スチレン系熱可塑性エラストマーであることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [5] 前記芳香族ビニル系熱可塑性エラストマー(B)が、スチレンー(エチレン／プロピレン)ーすチレントリブロック共重合体、スチレンー(エチレン／ブチレン)ーすチレントリブロック共重合体およびスチレンー[エチレンー(エチレン／プロピレン)]ーすチレンブロック共重合体からなる群から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項1～4のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [6] 前記充填材(C)が、炭酸カルシウムおよびカーボンブラックからなる群より選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [7] 吸湿性化合物(D)をさらに含有することを特徴とする請求項1～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [8] 吸湿性化合物(D)が、シリカゲル、アルミナおよびゼオライトからなる群より選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項7に記載の樹脂組成物。
- [9] 請求項1～8のいずれか一項に記載の樹脂組成物からなる、シーリング材。
- [10] 請求項1～8のいずれか一項に記載の樹脂組成物からなる、複層ガラス用ホットメル

トシーリング材。

- [11] 請求項1～8のいずれか一項に記載の樹脂組成物からなる、複層ガラス用ホットメル
トスペーサー。

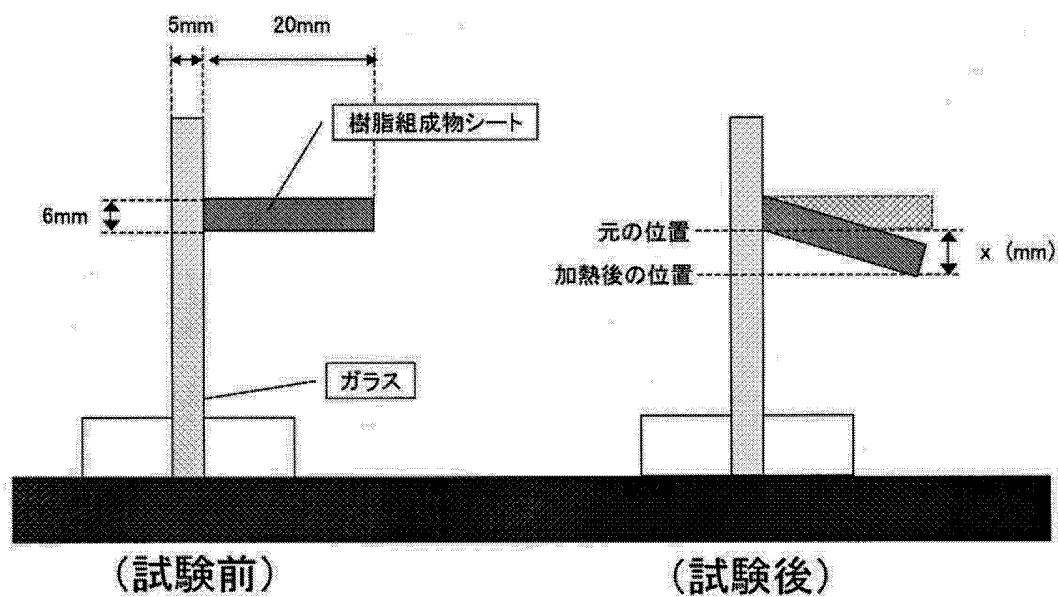
[図1]

自重変形性試験体



[図2]

自重変形性試験体 (断面図)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/311308

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L23/22(2006.01)i, C03C27/12(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L53/00(2006.01)i, C09K3/10(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)

C08L1/00-101/16, C03C27/12, C08K3/00-13/08, C09K3/10

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	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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.
X Y	JP 2001-40330 A (Aica Kogyo Co., Ltd.), 13 February, 2001 (13.02.01), Full descriptions (Family: none)	1-6, 9 7, 8, 10, 11
X	JP 2000-219781 A (Kuraray Co., Ltd.), 08 August, 2000 (08.08.00), Full descriptions (Family: none)	1-6
X	JP 2000-143890 A (Kuraray Co., Ltd.), 26 May, 2000 (26.05.00), Full descriptions (Family: none)	1-6

☒ 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
20 July, 2006 (20.07.06)

Date of mailing of the international search report
01 August, 2006 (01.08.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/311308

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 3-166247 A (Kuraray Co., Ltd.), 18 July, 1991 (18.07.91), Full descriptions	1-6
Y	JP 7-17748 A (Tokai Kogyo Kabushiki Kaisha), 20 January, 1995 (20.01.95), Full descriptions	7, 8, 10, 11
P, X	JP 2006-8925 A (Kabushiki Kaisha Shido), 12 January, 2006 (12.01.06), Full descriptions (Family: none)	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2006/311308

JP 3-166247 A	1991.07.18	JP 2795707 B2	1998.09.10
JP 7-17748 A	1995.01.20	JP 3137505 B2	2001.02.26

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C08L23/22(2006.01)i, C03C27/12(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L53/00(2006.01)i, C09K3/10(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. C08L1/00-101/16, C03C27/12, C08K3/00-13/08, C09K3/10											
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2006年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2006年	日本国実用新案登録公報	1996-2006年	日本国登録実用新案公報	1994-2006年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2006年										
日本国実用新案登録公報	1996-2006年										
日本国登録実用新案公報	1994-2006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 請求の範囲の番号									
X Y	JP 2001-40330 A(アイカ工業株式会社)2001.02.13, 全明細書 (ファミリーなし)	1-6, 9 7, 8, 10, 11									
X	JP 2000-219781 A(株式会社クラレ)2000.08.08, 全明細書 (ファミリーなし)	1-6									
☒ 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 20.07.2006		国際調査報告の発送日 01.08.2006									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 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) 三谷 祥子 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	4 J 9362								

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 請求の範囲の番号
X	JP 2000-143890 A(株式会社クラレ)2000.05.26, 全明細書 (ファミリーなし)	1-6
X	JP 3-166247 A(株式会社クラレ)1991.07.18, 全明細書	1-6
Y	JP 7-17748 A(東海興業株式会社)1995.01.20, 全明細書	7, 8, 10, 11
PX	JP 2006-8925 A(株式会社シード)2006.01.12, 全明細書 (ファミリーなし)	1-11

JP 3-166247 A	1991. 07. 18	JP 2795707 B2	1998. 09. 10

JP 7-17748 A	1995. 01. 20	JP 3137505 B2	2001. 02. 26
