(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
2024年12月26日(26.12.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/262261 A1

(51) 国際特許分類:
*C08L 63/00* (2006.01) *C08K 5/1515* (2006.01)
*C08G 59/40* (2006.01) *C08L 21/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/019520

(22) 国際出願日： 2024年5月28日(28.05.2024)

(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 2023-102199 2023年6月22日(22.06.2023) JP

(71) 出願人：株式会社スリーボンド(**THREEBOND CO., LTD.**) [JP/JP]；〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ Tokyo (JP).

(72) 発明者：今井 雄介(**IMAI, Yusuke**)；〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ 株式会社スリーボンド内 Tokyo (JP). 三橋 向輝(**MIHASHI, Koki**)；〒1920398 東京都八王子市南大沢四丁目３番地３ 株式会社スリーボンド内 Tokyo (JP).

(74) 代理人：ＩＢＣ一番町弁理士法人(**IBC**)；〒1020082 東京都千代田区一番町１０番地２ 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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)）

WO 2024/262261 A1

(54) **Title:** EPOXY RESIN COMPOSITION AND CURED PRODUCT THEREOF

(54) 発明の名称： エポキシ樹脂組成物およびその硬化物

(57) **Abstract:** Provided is an epoxy resin composition having high adhesion characteristics. An epoxy resin composition according to the present invention contains the following components (A)-(D): (A) an epoxy resin (excluding component (B) indicated below); (B) an epoxy resin derived from cottonseed oil; (C) rubber particles; and (D) a latent curing agent.

(57) 要約：高い接着特性を有するエポキシ樹脂組成物を提供する。 本発明のエポキシ樹脂組成物は、下記（Ａ）～（Ｄ）成分を含む： （Ａ）エポキシ樹脂（但し、下記（Ｂ）成分を除く）（Ｂ）綿実油由来エポキシ樹脂 （Ｃ）ゴム粒子 （Ｄ）潜在性硬化剤。

# 明　細　書

## 発明の名称 ： エポキシ樹脂組成物およびその硬化物

## 技術分野

[0001] 本発明は、接着力の高いエポキシ樹脂組成物に関する。

## 背景技術

[0002] エポキシ樹脂は骨格が剛直であり、耐熱性や耐薬品性に優れていることから接着剤、塗料、土木建築用材料、電気電子部品の絶縁材料など様々な分野に広く用いられている。近年、電気電子部品は製品の軽量化のためプラスチック部材が多く用いられているが、プラスチック部材を含む、またはプラスチック部材からなる被着体は、その耐熱性が低いことから、低温で硬化するエポキシ樹脂が求められている。また、近年、省エネルギー化の観点からも、低温で硬化するエポキシ樹脂が求められている。そして、これまで低温で硬化するエポキシ樹脂としては、ポリチオール化合物を含むエポキシ樹脂組成物が一般的であった（特開２０１４－１７３００７号公報、特開平６－２１１９６９号公報（米国特許第５４３０１１２号明細書に対応））。一方、エポキシ樹脂は硬くて脆いことから、衝撃を加えると簡単に破断してしまう。そのため、エポキシ樹脂にゴム粒子を添加する等の手法によりエポキシ樹脂の接着強度を向上させる技術が提案されている（特開２０１８－００２７６６号公報（米国特許出願公開第２０１７／０３６９６２９号明細書に対応））。

## 発明の概要

[0003] エポキシ樹脂硬化物による接着強さや剥離強さといった接着特性（具体的には、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さ）について、さらなる向上が求められている。また、上記特開２０１４－１７３００７号公報等に開示されたようなポリチオール化合物を含むエポキシ樹脂組成物は、特徴的な臭気があり作業者に忌避されやすく、また、その硬化物の耐湿性が十分でないなどの問題がある。

[0004] 本発明は、前記事情に鑑みてなされたものであり、高い接着特性を有する（具体的には、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さの両方において優れる）硬化物を形成できるエポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。また、本発明の他の目的は、ポリチオール化合物を含まなくても低温硬化可能なエポキシ樹脂組成物であり、かつ、その硬化物が、高い接着特性を有する（具体的には、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さの両方において優れる）エポキシ樹脂組成物を提供することにある。

[0005] 本発明者らは、上記課題を解決するべく鋭意検討した結果、以下で詳説するエポキシ樹脂組成物によれば、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さの両方において優れる硬化物を形成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0006] すなわち、上記諸目的のうち少なくとも一つは、下記の構成を有する本発明によって達成でき、本発明は、下記態様および形態を包含する。

[0007] ［１］下記（Ａ）～（Ｄ）成分を含む、エポキシ樹脂組成物：

（Ａ）エポキシ樹脂（但し、下記（Ｂ）成分を除く）

（Ｂ）綿実油由来エポキシ樹脂

（Ｃ）ゴム粒子

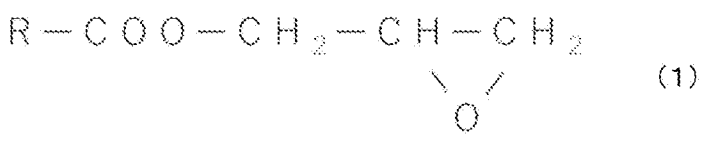
（Ｄ）潜在性硬化剤；

［２］前記（Ａ）成分が、ビスフェノール型エポキシ樹脂である、［１］に記載のエポキシ樹脂組成物；

［３］前記（Ｂ）成分が、綿実油に含まれる成分由来のエステル化合物であって、エステル部分において１以上のエポキシ基を有する化合物である、［１］または［２］に記載のエポキシ樹脂組成物；

［４］前記（Ｂ）成分が、下記式（１）で表される構造を有する、［１］～［３］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物：

[0008] [化1]



(1)

[0009] 上記式（１）中、Ｒは、炭素数が１３以上の炭化水素基である；

［５］前記（Ｂ）成分が、リノール酸グリシジルエステルおよび／またはオレイン酸グリシジルエステルである、［１］～［４］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［６］前記（Ｃ）成分が、コアシェル粒子である、［１］～［５］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［７］前記（Ｃ）成分の含有量が、前記（Ａ）成分１００質量部に対して１～１００質量部である、［１］～［６］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［８］前記（Ｂ）成分の含有量が、前記（Ａ）成分１００質量部に対して０．１～５０質量部である、［１］～［７］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［９］更に（Ｅ）成分として無機充填材を含む、［１］～［８］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［１０］前記（Ｃ）成分が、アクリルゴム粒子である、［１］～［９］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［１１］前記（Ｅ）成分が、炭酸カルシウム粉、シリカ粉、およびタルク粉からなる群から選択される少なくとも一種を含む、［９］または［１０］に記載のエポキシ樹脂組成物；

［１２］前記（Ｅ）成分が、ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を含む、［９］～［１１］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［１３］ポリチオール化合物を実質的に含まない、［１］～［１２］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物；

［１４］［１］～［１３］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を硬化させてなる、硬化物。

## 発明を実施するための形態

[0010] 以下に本発明の実施の形態を説明する。なお、本発明は、以下の実施の形態のみには限定されず、特許請求の範囲内で種々改変することができる。ま

た、本明細書に記載される実施の形態は、任意に組み合わせることにより、他の実施の形態とすることができる。

[0011] 本明細書の全体にわたり、単数形の表現は、特に言及しない限り、その複数形の概念をも含むと理解されるべきである。したがって、単数形の冠詞（例えば、英語の場合は「ａ」、「ａｎ」、「ｔｈｅ」等）は、特に言及しない限り、その複数形の概念をも含むと理解されるべきである。また、本明細書において使用される用語は、特に言及しない限り、当該分野で通常用いられる意味で用いられると理解されるべきである。したがって、他に定義されない限り、本明細書中で使用される全ての専門用語および科学技術用語は、本発明の属する分野の当業者によって一般的に理解されるのと同じ意味を有する。矛盾する場合、本明細書（定義を含む）が優先する。また、本明細書において「Ｘ～Ｙ」は、その前後に記載される数値（ＸおよびＹ）を下限値および上限値として含む意味で使用し、「Ｘ以上Ｙ以下」を意味する。また、濃度および％は、特に断りのない限りそれぞれ質量濃度および質量％を表すものとし、比は特に断りのない限り質量比とする。また、特記しない限り、操作および物性等の測定は、室温（２０～２５℃）／相対湿度４０～５５％ＲＨの条件で行う。また、「Ａおよび／またはＢ」は、Ａ、Ｂの各々およびこれらの組み合わせを含むことを意味する。

[0012] ＜エポキシ樹脂組成物＞

本発明の一態様は、下記（Ａ）～（Ｄ）成分を含む、エポキシ樹脂組成物を提供する：

（Ａ）エポキシ樹脂（但し、下記（Ｂ）成分を除く）

（Ｂ）綿実油由来エポキシ樹脂

（Ｃ）ゴム粒子

（Ｄ）潜在性硬化剤。

[0013] 以下、上記構成を有するエポキシ樹脂組成物を、単に「本発明に係るエポキシ樹脂組成物」または単に「エポキシ樹脂組成物」とも称する。また、上記構成を有する（Ａ）成分を、単に「本発明の（Ａ）成分」または単に「（

Ａ）成分」とも称する。同様に、上記構成を有する（Ｂ）成分を、単に「本発明の（Ｂ）成分」または単に「（Ｂ）成分」とも称する。さらに、上記構成を有する（Ｃ）成分を、単に「本発明の（Ｃ）成分」または単に「（Ｃ）成分」とも称する。さらにまた、上記構成を有する（Ｄ）成分を、単に「本発明の（Ｄ）成分」または単に「（Ｄ）成分」とも称する。

[0014] 本発明に係るエポキシ樹脂は、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さの両方において優れる硬化物を形成できる。すなわち、本発明によれば、エポキシ樹脂組成物の硬化物において、高い接着強度と剥離強度との両方をバランスよく向上させることができる。また、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、低温で硬化させることができる。

[0015] 《（Ａ）成分》

本発明の（Ａ）成分は、エポキシ樹脂である。（Ａ）成分としてのエポキシ樹脂は、エポキシ基を１以上有する化合物であれば、特に限定されない。なお、エポキシ基は、化合物（エポキシ樹脂）中、グリシジル基の形態で含まれていてもよい。また、（Ａ）成分には、後述する（Ｂ）成分（綿実油由来エポキシ樹脂）は含まれない。また、（Ａ）成分には、１以上のエポキシ基に加え、ケイ素原子を含む化合物（すなわち、後述するシランカップリング剤）は含まれない。

[0016] （Ａ）成分として用いられるエポキシ樹脂は、固体でも液体でも良く、作業性に優れるという点から、液体であることが好ましい。なお、本明細書において、「液体」とは、２５℃において流動性を有する状態（液状）であることを意味する。具体的には、「２５℃で液状である」とは、２５℃において、コーンプレート型回転粘度計を用いて剪断速度１０$s^{-1}$にて測定された粘度が、１００Ｐａ・ｓ以下であるものをいう。なお、ここでいう粘度は、コーンプレート型回転粘度計を用いて剪断速度１０$s^{-1}$にて測定された粘度である。一例として、（Ａ）成分として用いられるエポキシ樹脂の２５℃における粘度は、０．０１Ｐａ・ｓ以上１００Ｐａ・ｓ未満であると好ましく、０．１～５０Ｐａ・ｓであるとより好ましく、０．３～１０Ｐａ・ｓであ

るとさらに好ましく、０．５～５Ｐａ・ｓであると特に好ましい。

[0017] 接着特性をより向上させるという観点から、（Ａ）成分は、一分子中に２以上のエポキシ基を有する化合物を含むことが好ましい。すなわち、（Ａ）成分は、一分子中にエポキシ基を２以上有する多官能エポキシ樹脂を含むことが好ましい。かような化合物（多官能エポキシ樹脂）について、一分子中に含まれるエポキシ基の数の上限は特に制限されないが、６個以下であると好ましい。一例として、（Ａ）成分としての化合物に含まれるエポキシ基の数は、２～６個（２～６官能エポキシ樹脂）であると好ましく、２～３個（２～３官能エポキシ樹脂）であるとより好ましく、２個（２官能エポキシ樹脂）であると特に好ましい。

[0018] （Ａ）成分として用いられるエポキシ樹脂のエポキシ当量は、特に制限されないが、接着特性のさらなる向上という観点から、５０～２５０ｇ／ｅｑであると好ましく、１００～２００ｇ／ｅｑであるとより好ましく、１５０～１９５ｇ／ｅｑであると特に好ましい。なお、本明細書において、エポキシ当量は、ＪＩＳ　Ｋ－７２３６：２００９に準拠して測定される値である。また、当該方法によってエポキシ当量を求めることができない場合には、対象となるエポキシ樹脂（化合物）の分子量を、当該エポキシ樹脂（化合物）一分子中に含まれるエポキシ基の数で割った値として算出してもよい。

[0019] （Ａ）成分として用いられるエポキシ樹脂の具体例としては、特に限定されないが、例えば、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＤ型エポキシ樹脂などのビスフェノール型エポキシ樹脂；水素化ビスフェノール型エポキシ樹脂；１，２－ブタンジオールジグリシジルエーテル、１，３－ブタンジオールジグリシジルエーテル、１，４－ブタンジオールジグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、２，３－ブタンジオールジグリシジルエーテル、１，５－ペンタンジオールジグリシジルエーテル、１，６－ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、

１，４－シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテルなどのアルキレングリコール型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂などのノボラック型エポキシ樹脂；Ｎ，Ｎ－ジグリシジル－４－グリシジルオキシアニリン、４，４’－メチレンビス（Ｎ，Ｎ－ジグリシジルアニリン）、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、テトラグリシジル－ｍ－キシリレンジアミン等のグリシジルアミン化合物；グリシジル基を４つ有するナフタレン型エポキシ樹脂などが挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。

[0020] 本発明に用いられる（Ａ）成分は、低温硬化性と接着強度向上の観点から、ビスフェノール型エポキシ樹脂であることが好ましい。ビスフェノール型エポキシ樹脂（ビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂）としては、特に限定されないが、例えば、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＤ型エポキシ樹脂などが挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよいが、なかでもビスフェノールＡ型エポキシ樹脂とビスフェノールＦ型エポキシ樹脂とを併用すると、接着特性を良好に維持することができる。また、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂とビスフェノールＦ型エポキシ樹脂とを併用する場合、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂５０質量部に対し、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂を４０～６０質量部含むことが好ましい。

[0021] エポキシ樹脂組成物中における（Ａ）成分の含有量は特に制限されないが、エポキシ樹脂組成物の総質量１００質量部に対して、２０～８０質量部であると好ましく、３０～７０質量部であるとより好ましく、４０～６０質量部であると特に好ましい。（Ａ）成分としての化合物は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。なお、２種以上が併用される場合、（Ａ）成分の含有量は、合計量を指す。

[0022] 前記ビスフェノール型エポキシ樹脂の市販品としては、特に限定されない

が、例えばｊＥＲ（登録商標）８２８、１００１、８０１、８０６、８０７、１５２、６０４、６３０、８７１、ＹＸ８０００、ＹＸ８０３４、ＹＸ４０００（三菱ケミカル株式会社製）、ＥＰＩＣＬＯＮ（登録商標）８３０、８５０、８３０ＬＶＰ、８５０ＣＲＰ、８３５ＬＶ、ＨＰ４０３２Ｄ、７０３、７２０、７２６、８２０（ＤＩＣ株式会社製）、ＥＰ４１００、ＥＰ４０００、ＥＰ４０８０、ＥＰ４０８５、ＥＰ４０８８、ＥＰＵ６、ＥＰＵ７Ｎ、ＥＰＲ４０２３、ＥＰＲ１３０９、ＥＰ４９２０（株式会社ＡＤＥＫＡ製）、ＴＥＰＩＣ（登録商標）（日産化学工業株式会社製）、ＫＦ－１０１、ＫＦ－１００１、ＫＦ－１０５、Ｘ－２２－１６３Ｂ、Ｘ－２２－９００２（信越化学工業株式会社製）、デナコール（登録商標）ＥＸ４１１、３１４、２０１、２１２、２５２（ナガセケムテックス株式会社製）、Ｄ．Ｅ．Ｒ．－３３１、３３２、３３４、４３１、５４２（ダウ・ケミカル社製）、ＹＨ－４３４、ＹＨ－４３４Ｌ（新日鉄住友化学株式会社製）等が挙げられる。これらは単独あるいは２種以上を混合して使用してもよい。

[0023] 《（Ｂ）成分》

本発明の（Ｂ）成分は、綿実油由来エポキシ樹脂である。綿実油由来エポキシ樹脂とは、綿実油を原料としたエポキシ樹脂をいう。具体的には、綿実油由来エポキシ樹脂は、綿実油に含まれる成分を原料として得られた化合物であり、かつ、一分子中にエポキシ基を１以上有していれば特に限定されない。接着特性をより向上させるという観点から、（Ｂ）成分に含まれるエポキシ基の数は、１個である（（Ｂ）成分は、単官能エポキシ樹脂である）ことが好ましい。なお、エポキシ基は、グリシジル基の形態で当該成分に含まれていてもよい。なお、（Ｂ）成分には、１以上のエポキシ基に加え、ケイ素原子を含む化合物（すなわち、後述するシランカップリング剤）は含まれない。

[0024] ここで、綿実油とは、綿の種子を原料とした油脂であり、リノール酸、パルミチン酸、オレイン酸を主成分とし、ステアリン酸、パルミトレイン酸、ミリスチン酸およびリノレン酸などの脂肪酸組成を有している天然成分であ

る。綿実油に含まれる成分としては、パルミチン酸（$C_{15}H_{31}-COOH$）、ミリスチン酸（$C_{13}H_{27}-COOH$）、ステアリン酸（$C_{17}H_{35}-COOH$）、ペンタデカン酸（$C_{14}H_{29}-COOH$）、アラキジン酸（$C_{19}H_{39}-COOH$）、ベヘン酸（$C_{21}H_{43}-COOH$）、リグノセリン酸（$C_{23}H_{47}-COOH$）等の飽和脂肪酸；オレイン酸（$C_{17}H_{33}-COOH$）、パルミトレイン酸（$C_{15}H_{29}-COOH$）、イコセン酸（$C_{19}H_{37}-COOH$）、テトラコセン酸（ネルボン酸、$C_{23}H_{45}-COOH$）等の一価不飽和脂肪酸；リノール酸（$C_{17}H_{31}-COOH$）、リノレン酸（$C_{17}H_{29}-COOH$）等の多価不飽和脂肪酸が挙げられる。なお、「綿実油由来エポキシ樹脂」とは、綿実油に含まれる上記成分のうち、少なくとも一種の成分に由来するエポキシ樹脂をいう。

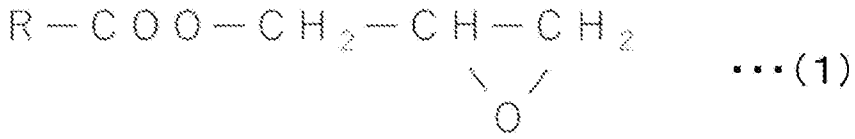
[0025] また、本明細書において、綿実油に含まれる成分に「由来する」エポキシ樹脂（綿実油由来エポキシ樹脂）とは、当該エポキシ樹脂が、綿実油に含まれる成分のうち、少なくとも一種の成分の有する反応性基が縮合反応すること（例えば、エステル化反応）により生じる構造単位（構造）を有するエポキシ樹脂（エポキシモノマーを含む）であることを意味する。

[0026] （Ｂ）成分としての綿実油由来エポキシ樹脂は、上述の飽和脂肪酸または不飽和脂肪酸（綿実油に含まれる成分）由来のエステル化合物であって、エステル部分（－Ｃ（＝Ｏ）ＯＲにおけるＲ）に１以上のエポキシ基（より好ましくは、１個のエポキシ基）を有する化合物であると好ましい。一方、（Ｂ）成分としての綿実油由来エポキシ樹脂は、綿実油に含まれる不飽和脂肪酸における不飽和結合をエポキシ化して得られる化合物である、エポキシ化綿実油を実質的に含まないことが好ましい。すなわち、エポキシ樹脂組成物は、上記エポキシ化綿実油を実質的に含まないことが好ましい。なお、本明細書中、エポキシ樹脂組成物がある成分を「実質的に含まない」とは、エポキシ樹脂組成物の総質量に対して、当該成分の含有量が、０．５質量％以下であることを言い、好ましくは０．１質量％以下であり、最も好ましくは０質量％である。

[0027] 本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、（Ｂ）成分として、上記のような長鎖脂肪酸（炭素数１２以上の脂肪酸）に由来するエポキシ化合物を含むことにより、高い靭性（粘り）を有すると推測される。その結果、得られる硬化物もまた高い靭性を有し、高い接着特性を発揮する。一方、（Ｂ）成分の代わりに、炭素鎖の短い（炭素数１２未満である）脂肪酸に由来するエポキシ化合物を用いた場合には、エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の靭性が低下し、接着特性が低下する（後述の比較例４）。また、（Ｂ）成分を用いなかった場合にも、優れた接着特性が得られない（後述の比較例１および３）。なお、上記メカニズムは推測に基づくものであり、その正誤が本発明の技術的範囲に影響を及ぼすものではない。

[0028] （Ｂ）成分は、下記式（１）で表される構造を有することが好ましい。すなわち、（Ｂ）成分は、式（１）で表される構造を有するグリシジルエステルを含むことが好ましい。式（１）の構造を有することで、エポキシ樹脂組成物の硬化物は高い接着強度を発揮することができる。

[0029] [化2]



・・・(1)

[0030] 上記式（１）中、Ｒは、炭素数が１３以上の炭化水素基である。ここで、「炭化水素基」とは、炭素原子およびそれに結合する水素原子からなる基を意味する。炭化水素基は、飽和もしくは不飽和の、直鎖状、分岐鎖状もしくは環状の炭化水素基を含む。炭化水素基の例としては、直鎖状または分岐鎖状のアルキル基、アルケニル基、アルキニル基等の脂肪族（鎖式）炭化水素基；シクロアルキル基、シクロアルケニル基、シクロアルキニル基等の脂環式炭化水素基；アリール基等の芳香族炭化水素基；およびこれらを組み合わせたもの、例えば、アラルキル基、アリールアルキル基などが挙げられる。

[0031] Ｒは、接着特性の観点から、炭素数が１３～２５の炭化水素基であると好ましく、炭素数が１３～２０の炭化水素基であるとより好ましく、炭素数が

１６～１８の炭化水素基であるとさらにより好ましく、炭素数が１７の炭化水素基であると特に好ましい。また、接着特性の観点から、Ｒは、炭素数が１３～２５の脂肪族（鎖式）炭化水素基であると好ましく、炭素数が１３～２０の脂肪族（鎖式）炭化水素基であるとより好ましく、炭素数が１６～１８の脂肪族（鎖式）炭化水素基であるとさらにより好ましく、炭素数が１７の脂肪族（鎖式）炭化水素基であると特に好ましい。

[0032] さらに、接着特性の観点から、Ｒは、１以上の不飽和結合を有するアルケニル基であると好ましく、不飽和結合を１つまたは２つ含むアルケニル基であるとより好ましい。さらにまた、接着特性の観点から、Ｒは直鎖状であることが好ましい。

[0033] 一実施形態において、Ｒは、炭素数が１３～２５である直鎖状のアルケニル基であると好ましく、炭素数が１３～２０である直鎖状のアルケニル基であるとより好ましく、炭素数が１６～１８である直鎖状のアルケニル基であるとさらにより好ましく、炭素数が１７である直鎖状のアルケニル基であると特に好ましい。このとき、アルケニル基に含まれる不飽和結合の数は、１または２であると好ましい。

[0034] 一実施形態において、（Ｂ）成分は、綿実油に含まれる一価および多価の不飽和脂肪酸から選択される少なくとも一種に由来するエポキシ樹脂であると好ましく、綿実油に含まれる一価および二価の不飽和脂肪酸から選択される少なくとも一種に由来するエポキシ樹脂であるとより好ましい。また、他の実施形態において、（Ｂ）成分は、オレイン酸、パルミトレイン酸、イコセン酸、テトラコセン酸（ネルボン酸）、リノール酸、およびリノレン酸からなる群から選択される少なくとも一種に由来するエポキシ樹脂を含むと好ましい。さらに他の実施形態において、（Ｂ）成分は、オレイン酸、パルミトレイン酸、イコセン酸、テトラコセン酸（ネルボン酸）、およびリノール酸からなる群から選択される少なくとも一種に由来するエポキシ樹脂を含むと好ましい。さらに他の実施形態において、（Ｂ）成分は、オレイン酸、および／またはリノール酸に由来するエポキシ樹脂を含むと好ましい。

[0035] （Ｂ）成分の具体例としては、例えば、リノール酸グリシジルエステル、オレイン酸グリシジルエステル、リノレン酸グリシジルエステル、パルミトレイン酸グリシジルエステル、イコセン酸グリシジルエステル、テトラコセン酸（ネルボン酸）グリシジルエステル等の不飽和脂肪酸由来のグリシジルエステル；パルミチン酸グリシジルエステル、ミリスチン酸グリシジルエステル、ペンタデカン酸グリシジルエステル、アラキジン酸グリシジルエステル、ベヘン酸グリシジルエステル、リグノセリン酸グリシジルエステル等の飽和脂肪酸由来のグリシジルエステルが挙げられるが、これに限定されるものではない。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。

[0036] 上記の中でも、接着強度の観点から、（Ｂ）成分は、リノール酸グリシジルエステル、オレイン酸グリシジルエステル、リノレン酸グリシジルエステル、パルミトレイン酸グリシジルエステル、イコセン酸グリシジルエステル、およびテトラコセン酸グリシジルエステルからなる群から選択される少なくとも一種を含有することが好ましく、リノール酸グリシジルエステル、オレイン酸グリシジルエステル、パルミトレイン酸グリシジルエステル、イコセン酸グリシジルエステル、およびテトラコセン酸グリシジルエステルからなる群から選択される少なくとも一種を含有することがより好ましく、リノール酸グリシジルエステルおよび／またはオレイン酸グリシジルエステルを含有することが特に好ましい。

[0037] （Ｂ）成分は、合成品、市販品のいずれを用いてもよい。（Ｂ）成分の合成方法としては、綿実油の含有成分をエポキシ化することができる方法であれば特に制限されない。（Ｂ）成分の合成方法の例としては、綿実油の含有成分が有しているカルボキシ基をエポキシ化する方法、綿実油の含有成分が有しているカルボキシ基と、エポキシ基（グリシジル基）を有するアルコール化合物とをエステル化する方法、綿実油の含有成分が有している不飽和二重結合をエポキシ化する方法などが挙げられる。

[0038] エポキシ樹脂組成物中における（Ｂ）成分の含有量は、（Ａ）成分１００

質量部に対し、０．１～５０質量部であることが好ましく、１～４０質量部であることがより好ましく、３～２５質量部であることがさらにより好ましく、８～２０質量部であることが特に好ましく、１２～１８質量部であることが最も好ましい。上記（Ｂ）成分の含有量が０．１質量部以上である場合、高い接着強度を維持することができる。一方、上記（Ｂ）成分の含有量が５０質量部以下である場合、高い剥離強度を維持することができる。（Ｂ）成分としての綿実油由来エポキシ樹脂は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。なお、２種以上が併用される場合、（Ｂ）成分の含有量は、合計量を指す。

[0039] 《（Ｃ）成分》

本発明の（Ｃ）成分は、ゴム粒子である。ここでいうゴム粒子とは、ゴム弾性を示す層を含む粒子である。ゴム粒子は、ゴム弾性を示す１層のみからなる粒子であっても良いし、ゴム弾性を示す層を少なくとも１層有する、多層構造の粒子（コアシェル粒子）であっても良い。接着特性の観点から、（Ｃ）成分は、コアシェル粒子であると好ましい。

[0040] コアシェル粒子とは、粒子のコア層（核）の部分とシェル層（壁）の部分とが異なる性質の重合体からなる粒子である。好ましいコアシェル粒子（粉末粒子）の製造方法としては、以下の通りである：まず、コア層を形成する重合性モノマーを重合する（１回目の重合工程）。この重合性モノマーの例として、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－プロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－デシル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、２－ブトキシエチル（メタ）アクリレートなどの（メタ）アクリレート系モノマー；スチレン、ビニルトルエン、イソプロペニルベンゼン（α－メチルスチレン）などの芳香族ビニル系化合物；アクリロニトリル、メタクリロニトリル、シアン化ビニリデンなどのシアン化ビニル化合物；２－ヒドロキシエチルフマレート、ヒドロキシブチルビニルエーテル、モノ

ブチルマレエートなどが挙げられる。さらに、重合性モノマーの例として、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、ヘキサンジオールトリ（メタ）アクリレート、オリゴエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンポリエチレントリ（メタ）アクリレートなどの反応性基を２個以上有する架橋性モノマー；ジビニルベンゼンなどの芳香族ジビニルモノマー；トリメリット酸トリアリル、トリアリルイソシアヌレートなどが挙げられる。これら重合性モノマーは、一種または異なる二種以上を選択して使用できる。次に、上記に例示される重合性モノマーを用いて得られた重合体粒子をコア層とし、さらに、コア層の組成とは異なるように重合性モノマーを重合させて、シェル層を形成させる重合を行う（２回目の重合工程）。この際用いられる重合性モノマーの具体例としては、上述のコア層を得るための重合性モノマーと同様のものが挙げられ、これらから選択し使用することができる。シェル材として使用される重合性モノマーとしては、アルキル基（（メタ）アクリロイルオキシ基に結合するアルキル基）の炭素数が１～４の（メタ）アクリレートが好ましい。その具体例としては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－プロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0041] 少量の添加で所期の効果が得られやすいという観点から、（Ｃ）成分としてのゴム粒子は、ポリアクリル酸エステル重合体、ポリメタクリル酸エステル重合体、およびアクリル酸エステル－メタクリル酸エステル共重合体からなる群から選択される少なくとも一種の（共）重合体を含む、ポリ（メタ）アクリル酸エステル系コアシェル粒子であると好ましい。

[0042] また、（Ｃ）成分としてのゴム粒子は、エポキシ樹脂組成物の調製時、あらかじめ（Ａ）成分としてのエポキシ樹脂内に分散された状態のものを使用しても良い。具体的には、エポキシ樹脂内にハイパワーホモジナイザーなど

の混合撹拌装置により分散されたゴム粒子や、エポキシ樹脂内で乳化重合により合成されたゴム粒子がこれに相当する。なお、エポキシ樹脂に分散されたゴム粒子を用いる場合、これに含まれるエポキシ樹脂は、（Ａ）成分に含まれるものとする。

[0043] （Ｃ）成分の平均粒径は、０．００１～５μｍが好ましく、０．０１～１μｍがより好ましく、さらに好ましくは０．０５～０．５μｍである。なお、上記平均粒径の測定方法は、レーザー回折・散乱法（累積体積比率５０％となる粒径：Ｄ５０）である。

[0044] （Ｃ）成分としては、特に限定されないが、例えば、ブタジエンゴム粒子、アクリルゴム粒子、シリコーンゴム粒子、ブチルゴム粒子、オレフィンゴム粒子、ハイスチレンゴム粒子、ＮＢＲ（ニトリルゴム）粒子、ＳＢＲ（スチレンブタジエンゴム）粒子、ＩＲ（イソプレンゴム）粒子、ＥＰＲ（エチレンプロピレンゴム）粒子等が用いられる。中でも接着特性の観点から、（Ｃ）成分としては、ブタジエンゴム粒子および／またはアクリルゴム粒子が好ましく、アクリルゴム粒子が特に好ましい。

[0045] エポキシ樹脂組成物中における（Ｃ）成分の含有量（配合量）は、特に限定されないが、（Ａ）成分１００質量部に対して、１～１００質量部であると好ましく、３～６０質量部であるとより好ましく、５～３０質量部であると特に好ましく、１０～２０質量部であると最も好ましい。上記（Ｃ）成分の含有量が１質量部以上である場合、高い剥離強度を維持することができる。一方、上記（Ｃ）成分の含有量が１００質量部以下である場合、高い接着強度を維持することができる。（Ｃ）成分としてのゴム粒子は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。なお、２種以上が併用される場合、（Ｃ）成分の含有量は、合計量を指す。

[0046] （Ｃ）成分としてのブタジエンゴム粒子の市販品としては、メタブレン（登録商標）Ｅ－９０１、Ｃ－２２３Ｅ、Ｃ－３０３Ａ、Ｃ－１４０Ａ(三菱ケミカル株式会社製)、カネエース（登録商標）ＭＸ－１５３、ＭＸ－１３６、ＭＸ－２５７、ＭＸ－１２７、ＭＸ－４５１(株式会社カネカ製)；アクリル

ゴム粒子の市販品としては、メタブレン（登録商標）Ｗ－３００Ａ、Ｗ－４５０Ａ、Ｗ－６００Ａ、Ｗ－３７７(三菱ケミカル株式会社製)、アクリセット（登録商標）ＢＰＦ－３０７、ＢＰＡ－３２８(株式会社日本触媒製)、ゼフィアックＦ－３５１Ｇ（アイカ工業株式会社製）等が挙げられるがこれらに限定されるものではない。これらは、それぞれ単独で用いても良いし、また二種以上を混合して用いても良い。

[0047] 《（Ｄ）成分》

本発明の（Ｄ）成分は、潜在性硬化剤である。ここで、潜在性硬化剤とは、室温（２５℃）では（Ａ）成分としてのエポキシ樹脂および（Ｂ）成分としての綿実油由来エポキシ樹脂に対し不活性であり、加熱等の刺激を加えることにより溶解、分解、転移反応などにより活性化し、上記（Ａ）成分および（Ｂ）成分の硬化を促進する機能を有する化合物である。加熱により活性化する潜在性硬化剤としては、従来公知の各種物質を用いることができる。このような物質として例えば、ジシアンジアミドおよびその誘導体、ヒドラジド化合物、アミンイミド、アミン化合物とエポキシ化合物、イソシアネート化合物、または尿素化合物との反応生成物であるアミンアダクト化合物、酸無水物、フェノールノボラック樹脂等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または二種以上が併用されてもよい。

[0048] （Ｄ）成分は、上記で挙げた化合物からなる群から選択される少なくとも一種を含むことが好ましく、上記で挙げた化合物からなる群から選択される少なくとも一種であることがより好ましい。なかでも、硬化性の観点から、（Ｄ）成分としては、アミンアダクト化合物が好ましく、変性脂肪族ポリアミンのアミンアダクト化合物が特に好ましい。なお、（Ｄ）成分は、保存安定性および低温硬化性の観点から、固形であることが好ましい。好ましい軟化点は、６０～１５０℃であり、さらに好ましくは１００～１４０℃であり、特に好ましくは１１５～１２５℃である。なお、ここでいう軟化点とは環球法にて測定した値である。また、（Ｄ）成分は、マイクロカプセル型硬化剤の形態であってもよい。

[0049] （Ｄ）成分が固体である場合、平均粒径は、好ましくは０．１～５０μｍであり、より好ましくは１～３０μｍであり、特に好ましくは２～２０μｍであり、最も好ましくは３～１０μｍである。上記平均粒径が０．１～５０μｍであることで、（Ａ）成分および（Ｂ）成分に混合した際の分散性に優れ、安定した硬化性を示すエポキシ樹脂組成物を作製することができる。上記平均粒径の測定方法は、レーザー回折・散乱法（累積体積比率５０％となる粒径：Ｄ５０）である。

[0050] （Ｄ）成分の含有量は、（Ａ）成分１００質量部に対し、１～６０質量部であると好ましく、３～４５質量部であるとより好ましく、５～３０質量部であるとさらに好ましく、１０～２５質量部であると特に好ましい。上記（Ｄ）成分の含有量が１質量部以上であると接着強度が上がり、６０質量部以下であると保存安定性が向上する。（Ｄ）成分としての潜在性硬化剤は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。なお、２種以上が併用される場合、（Ｄ）成分の含有量は、合計量を指す。

[0051] （Ｄ）成分の市販品としては、特に限定されないが、例えばアミンアダクト型潜在性硬化剤としては、フジキュアー（登録商標）ＦＸＥ－１０００、ＦＸＲ－１０２０、ＦＸＲ－１０３０、ＦＸＢ－１０５０、ＦＸＲ－１０８１（株式会社Ｔ＆Ｋ　ＴＯＫＡ製）、アミキュア（登録商標、以下同じ）ＰＮ－２３、アミキュアＰＮ－Ｈ、アミキュアＰＮ－３１、アミキュアＰＮ－４０、アミキュアＰＮ－５０、アミキュアＰＮ－Ｆ、アミキュアＰＮ－２３Ｊ、アミキュアＰＮ－３１Ｊ、アミキュアＰＮ－４０Ｊ、アミキュアＭＹ－２４、アミキュアＭＹ－２５、アミキュアＭＹ－Ｒ、アミキュアＰＮ－Ｒ（味の素ファインテクノ株式会社製）等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。

[0052] 《（Ｅ）成分》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、さらに（Ｅ）成分として無機充填材を含むことが好ましい。エポキシ樹脂組成物が無機充填材を含むことにより、接着強度を向上させることができる。（Ｅ）成分としての無機充填材の例

としては、ガラス粉、シリカ粉、タルク粉、アルミナ粉、マイカ粉、セラミックス粉、シリコーン粉、炭酸カルシウム粉、窒化アルミ粉、カーボン粉、カオリンクレー粉、乾燥粘土鉱物粉、乾燥珪藻土粉；カーボンブラック、硫酸バリウム、アルミナホワイト、クレー、酸化チタン；ＺｎＳ：Ａｇ、ＺｎＳ：Ｃｕ、ＺｎＳ：Ｍｎ、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ、$Sr_4Al_{14}O_{25}$：Ｅｕ、$Y_2O_2S$：Ｅｕ、$Y_2O_3$：Ｅｕ等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。なお、上記カーボンブラック、硫酸バリウム、アルミナホワイト、クレー、酸化チタン等は着色剤（無機顔料）としても機能しうる。また、ＺｎＳ：Ａｇ、ＺｎＳ：Ｃｕ、ＺｎＳ：Ｍｎ、$SrAl_2O_4$：Ｅｕ、$Sr_4Al_{14}O_{25}$：Ｅｕ、$Y_2O_2S$：Ｅｕ、$Y_2O_3$：Ｅｕ等は着色剤（蛍光無機顔料）としても機能しうる。

[0053] 中でも、接着特性の観点から、（Ｅ）成分は、ガラス粉、シリカ粉、タルク粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むと好ましく、シリカ粉、タルク粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むとより好ましく、シリカ粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むとさらにより好ましく、炭酸カルシウム粉を含むと特に好ましく、ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を含むと最も好ましい。ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉は、微量の有機成分を含むことから、靭性を向上させる効果が高く、接着特性を向上させる効果に優れる。

[0054] 炭酸カルシウム粉は、ガラスなどの他の無機充填材と比較すると柔らかい（靭性が高い）材料である。そのため、炭酸カルシウム粉を含むエポキシ樹脂組成物は、その硬化物の樹脂強度が向上するという無機充填材の一般的な効果に加え、靭性を保持できることから、被着体への接着特性がより向上しうるものと考えられる。そして、ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を含むことにより、エポキシ樹脂組成物の靭性がより高くなる結果、接着特性がより向上する。

[0055] （Ｅ）成分としての無機充填材の形状は特に制限されず、例えば、球状、

不定形、針状、繊維状等の形状等が挙げられ、なかでも、不定形が好ましい。無機充填材は、脂肪酸、シラン化合物等で表面処理したものでもよい。

[0056] （Ｅ）成分の平均粒径は、好ましくは０．０１～３０μｍであり、より好ましくは０．１～１５μｍであり、さらにより好ましくは１．１μｍを超えて１５μｍ以下であり、特に好ましくは５～１５μｍであり、最も好ましくは９～１５μｍである。上記平均粒径の測定方法は、レーザー回折・散乱法（累積体積比率５０％となる粒径：Ｄ５０）である。

[0057] エポキシ樹脂組成物中における（Ｅ）成分の含有量は、（Ａ）成分１００質量部に対して、１～１２０質量部であると好ましく、１０～１１０質量部であるとより好ましく、１０～１０５質量部であるとさらにより好ましく、１０～１００質量部であるとさらにより好ましく、２０～１００質量部であるとさらにより好ましく、２０～９０質量部であると特に好ましく、５０～８０質量部であると最も好ましい。上記（Ｅ）成分の含有量が１～１２０質量部であれば、接着特性を良好に維持することができる。（Ｅ）成分としての無機充填材は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。なお、２種以上が併用される場合、（Ｅ）成分の含有量は、合計量を指す。

[0058] 前記ホタテ貝殻由来炭酸カルシウム粉の市販品としては、特に限定されないが、ホタテ末（Ｒ）、ホタテ末（Ｓ）（株式会社エヌ・シー・コーポレーション製）、ホタテ貝殻炭酸カルシウム（ノムラ産業株式会社製）等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、または２種以上併用されてもよい。

[0059] 《任意成分》

さらに、エポキシ樹脂組成物は、本発明の特性を損なわない範囲で、分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤、保存安定剤等の添加剤（任意成分）をさらに含んでもよいし、含まなくてもよい。

[0060] したがって、本発明の一実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｄ）成分と、分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および

保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。また、本発明の他の実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｄ）成分と、着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。さらに、本発明の他の実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｄ）成分と、保存安定剤と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。さらに、本発明の他の実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｅ）成分と、分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。さらに、本発明の他の実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｅ）成分と、着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。さらに、本発明の他の実施形態によれば、上記（Ａ）～（Ｅ）成分と、保存安定剤と、を含む、エポキシ樹脂組成物もまた提供される。

[0061] 分散剤は、（Ｃ）、（Ｄ）および（Ｅ）成分を（Ａ）成分中に均一に分散させるための助剤である。エポキシ樹脂組成物が分散剤を含むことで、（Ｃ）、（Ｄ）および（Ｅ）成分の（Ａ）成分中における経時での沈降や分離を抑制し、保存安定性を向上させることができる。分散剤としては、（Ｃ）、（Ｄ）および（Ｅ）成分を（Ａ）成分中に分散させられるものであれば、特に限定されないが、（Ｃ）、（Ｄ）および（Ｅ）成分の分散性を向上させ、経時での接着特性を低下させない観点から、分散剤は、カルボン酸エステルおよびリン酸エステルからなる群から選択される少なくとも一種を含むと好ましい。

[0062] シランカップリング剤としては、例えば、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、３－グリシドキシプロピルメチルジプロピルオキシシラン、３－グリシドキシプロピルジメチルモノメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルジメチルモノエトキシシラン、３

－グリシドキシプロピルジメチルモノプロピルオキシシラン、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、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トリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン等のエポキシ基含有シランカップリング剤；ビニルトリス（２－メトキシエトキシ）シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン等のビニル基含有シランカップリング剤；３－メタ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メチルジエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルジメチルモノメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルジメチルモノエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、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メチルジプロピルオキシシラン、３－アクリロキシプロピルジメチルモノメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルジメチルモノエトキシシラン、３－アクリロキシプロピルジメチルモノプロピルオキシシラン等の（メタ）アクリロイル基含有シランカップリング剤；Ｎ－（２－アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ基含有シランカップリング剤；３－スルファニルプロピルトリメトキシシラン、３－クロロプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。これらの中でも、接着力が優れるという観点より、グリシジル基含有シランカップリング剤がより好ましい。なお、グリシジル基含有シランカップリング剤（すなわち、エポキシ基およびケイ素原子を含む化合物）は本発明の（Ａ）成分および（Ｂ）成分のいずれにも含まれず、シランカップリング剤（すなわち、任意成分の一つ）として扱う。これらは単独で用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。シランカップリング剤の配合量（含有量）は、本発明の（Ａ）成分１００質量部に対して０．１～２０質量部であることが好ましい。上記シランカップリング剤の含有量が０．１～

２０質量部であれば、接着強度を良好に維持できる。なお、シランカップリング剤は、本発明の（Ａ）成分および（Ｂ）成分に含まれない。

[0063] 着色剤としては、インダントロンブルー、キナクリドンレッド、ジオキサジンバイオレット、フタロシアニンブルー等の有機顔料、蛍光有機顔料、染料などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。なお、ここでいう着色剤は、本発明の（Ｅ）成分を含まない。

[0064] レオロジーコントロール剤とは、レオロジー物性をコントロールする作用を奏する添加剤をいい、チクソトロピック剤、沈降防止剤、タレ止め剤、増粘剤等と呼ばれるものである。レオロジーコントロール剤の例としては、有機系レオロジーコントロール剤があり、具体的には、脂肪酸アマイド系レオロジーコントロール剤や、エチルセルロース系レオロジーコントロール剤等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0065] 保存安定剤としては、ホウ酸エステル化合物、リン酸、アルキルリン酸エステル、ｐ－トルエンスルホン酸、ｐ－トルエンスルホン酸メチル等が挙げられる。ホウ酸エステル化合物としては、ホウ酸トリエチル、ホウ酸トリブチル、トリメトキシボロキシンなどが挙げられるがこれらに限定されるものではない。アルキルリン酸エステルとしては、リン酸トリメチル、リン酸トリブチルなどが挙げられるが、これらに限定されるものではない。保存安定剤は単独でも複数を混合して使用しても良い。保存安定性を考慮すると、ホウ酸トリブチル、トリメトキシボロキシン、リン酸、およびｐ－トルエンスルホン酸メチルからなる群から選択される少なくとも１種であることが好ましい。

[0066] 《好ましい形態》

以下、本発明に係るエポキシ樹脂組成物の好ましい実施形態についてさらに説明する。

[0067] 一実施形態において、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種

から実質的に構成されると好ましい。また、本発明の他の実施形態によれば、エポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から実質的に構成されると好ましい。また、本発明の他の実施形態によれば、エポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分および保存安定剤から実質的に構成されると好ましい。

[0068] さらに、他の実施形態として、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｅ）成分ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から実質的に構成されると好ましい。また、本発明の他の実施形態によれば、エポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｅ）成分、ならびに着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から実質的に構成されると好ましい。また、本発明の他の実施形態によれば、エポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｅ）成分および保存安定剤から実質的に構成されると好ましい。

[0069] 上記形態において、「エポキシ樹脂組成物が、Ｘから実質的に構成される」とは、Ｘの合計含有量が、エポキシ樹脂組成物の総質量を１００質量％として（エポキシ樹脂組成物に対して）、９９質量％を超える（上限：１００質量％）ことを意味する。好ましくは、エポキシ樹脂組成物は、Ｘから構成される（上記合計含有量＝１００質量％）。例えば、「エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から実質的に構成される」とは、上記（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤の合計含有量が、エポキシ樹脂組成物の総質量を１００質量％として（エポキシ樹脂組成物に対して）、９９質量％を超える（上限：１００質量％）ことを意味し、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｄ）成分ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコン

トロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。また、他の実施形態において、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。また、他の実施形態において、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｄ）成分および保存安定剤から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。さらに、他の実施形態において、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｅ）成分ならびに分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。さらに、他の実施形態において、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｅ）成分、ならびに着色剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。さらに、他の実施形態において、エポキシ樹脂組成物が、上記（Ａ）～（Ｅ）成分および保存安定剤から構成される（上記合計含有量＝１００質量％）ことが好ましい。

[0070] なお、上記各形態における上記（Ａ）～（Ｅ）成分、分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤の好ましい含有量は、上記各成分に関する説明の項に記載の含有量の範囲がそれぞれ参照され、当該好ましい範囲をそれぞれ選択し、組み合わせることができる。

[0071] 《エポキシ樹脂組成物の製造方法》

エポキシ樹脂組成物は、従来公知の方法により製造することができる。例えば、（Ａ）～（Ｄ）成分、ならびに必要に応じて添加される（Ｅ）成分および上記任意成分の所定量を秤量して、プラネタリーミキサー等の混合手段を使用して混合することにより、本発明に係るエポキシ樹脂組成物を得ることができる。すなわち、本発明の他の態様は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分を混

合することを含む、エポキシ樹脂組成物の製造方法もまた提供する。当該製造方法は、任意で、上記（Ｅ）成分を混合することをさらに有していてもよい。このとき、混合される（Ｅ）成分は、ガラス粉、シリカ粉、タルク粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むと好ましく、シリカ粉、タルク粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むとより好ましく、シリカ粉および炭酸カルシウム粉からなる群から選択される少なくとも一種を含むとさらにより好ましく、炭酸カルシウム粉を含むと特に好ましく、ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を含むと最も好ましい。さらに、上記製造方法は、任意で、分散剤、シランカップリング剤、着色剤、レオロジーコントロール剤および保存安定剤からなる群から選択される少なくとも一種を混合することをさらに有していてもよく、着色剤および／または保存安定剤を混合することをさらに有していてもよく、保存安定剤を混合することをさらに有していてもよい。

[0072] 上記において、製造条件は特に制限されないが、好ましくは１０～７０℃の温度で、好ましくは０．１～５時間、各成分を混合することにより製造することができる。

[0073] ＜硬化物＞

本発明の他の態様は、上記エポキシ樹脂組成物を硬化させてなる硬化物もまた提供する。エポキシ樹脂組成物を硬化させて硬化物を得る方法は、特に制限されず、所望の用途によって適切に選択できる。一例としては、エポキシ樹脂組成物を被着体に塗布して塗膜を形成した（塗布方法／工程）後、上記塗膜を硬化する（硬化方法／工程）方法がある。かような方法について、以下説明するが、本発明に係る硬化物を得る方法は、下記方法に限定されず、適宜改変可能である。

[0074] 《塗布方法／工程》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、２５℃で液状（液体）であると好ましい。かような形態であることにより、被着体への塗布が容易になる。エポキシ樹脂組成物を被着体へ塗布する方法としては、公知のシール剤や接着剤

の塗布方法がそのまま、あるいは適宜修飾して用いられる。例えば、自動塗布機を用いたディスペンシング、スプレー、インクジェット、スクリーン印刷、グラビア印刷、ディッピング、スピンコートなどの方法を用いることができる。なお、作業性の観点から、エポキシ樹脂組成物の好ましい粘度は、例えば１～１００Ｐａ・ｓであり、さらに好ましくは３～５０Ｐａ・ｓであり、特に好ましくは５～１０Ｐａ・ｓである。なお、上記粘度は、実施例に記載の方法および条件により測定された値を意図する。

[0075] 《硬化方法／工程および硬化物》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物は低温で硬化させることができる。硬化温度として、具体的には５０～１２０℃であり、６０～１１０℃であってもよく、７０～１００℃であってもよい。硬化時間は特に限定されないが、１０分以上５時間以下が好ましく、２０分以上２時間以下がより好ましい。このように、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、ポリチオール化合物を含んでいなくとも、低温で硬化させることができる。ここで、「ポリチオール化合物」とは、一分子中にチオール基を２個以上有している化合物をいう。すなわち、一実施形態において、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、上記（Ａ）～（Ｄ）成分ならびに必要に応じて添加される（Ｅ）成分および上記任意成分を含み、かつ、ポリチオール化合物を実質的に含まない。なお、本明細書中、エポキシ樹脂組成物がある成分を「実質的に含まない」とは、エポキシ樹脂組成物の総質量に対して、当該成分の含有量が、０．５質量％以下であることを言い、好ましくは０．１質量％以下であり、最も好ましくは０質量％である。

[0076] 《引張せん断接着強さ》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、引張せん断接着強さに優れる。具体的には、硬化物の引張せん断接着強さが、例えば２０．０ＭＰａ以上であり、好ましくは２２．０ＭＰａ以上であり、より好ましくは２５．０ＭＰａ以上である。一方、その上限は特に制限されないが、例えば５０．０ＭＰａ以下であってもよく、３０．０ＭＰａ以下であっ

てもよい。なお、上記引張せん断接着強さは、実施例に記載の方法により測定される値である。

[0077] 《Ｔ型はく離接着強さ》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、Ｔ型はく離接着強さに優れる。具体的には、硬化物のＴ型はく離接着強さが、例えば１．０ｋＮ／ｍ以上であり、好ましくは１．３ｋＮ／ｍ以上であり、より好ましくは１．５ｋＮ／ｍ以上である。一方、その上限は特に制限されないが、例えば４．０ｋＮ／ｍ以下であってもよく、３．０ｋＮ／ｍ以下であってもよい。なお、上記Ｔ型はく離接着強さは、実施例に記載の方法により測定される値である。

[0078] 《接着特性》

本発明に係るエポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、その引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さが、いずれも上記好ましい範囲内であると好ましい。一実施形態において、硬化物の引張せん断接着強さが２０．０ＭＰａ以上であり、かつ、硬化物のＴ型はく離接着強さが１．０ｋＮ／ｍ以上であると好ましい。他の実施形態において、硬化物の引張せん断接着強さが２２．０ＭＰａ以上であり、かつ、硬化物のＴ型はく離接着強さが１．３ｋＮ／ｍ以上であるとより好ましい。さらに他の実施形態において、硬化物の引張せん断接着強さが２５．０ＭＰａ以上であり、かつ、硬化物のＴ型はく離接着強さが１．５ｋＮ／ｍ以上であると特に好ましい。

[0079] ＜用途＞

本発明に係るエポキシ樹脂組成物は接着特性（特に、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さ）が高く、また、低温硬化可能であるため、様々な用途に使用することができる。具体例としては、自動車部品分野では、スイッチ部分、ヘッドランプ、エンジン内部品、電装部品、駆動エンジン、ブレーキオイルタンク、フロントフード、フェンダー、ドアなどのボディパネル、ウインドウ等の接着、封止、注型、コーティング等；電子材料分野では、フラットパネルディスプレイ（液晶ディスプレイ、有機ＥＬディスプレイ

、発光ダイオード表示装置、フィールドエミッションディスプレイ）や、ビデオディスク、ＣＤ、ＤＶＤ、ＭＤ、ピックアップレンズ、ハードディスク等の接着、封止、注型、コーティング等；電池分野では、リチウム電池、リチウムイオン電池、マンガン電池、アルカリ電池、燃料電池、シリコン系太陽電池、色素増感型電池、有機太陽電池等の接着、封止、コーティング等；光学部品分野では、光スイッチ周辺、光コネクタ周辺の光ファイバー材料、光受動部品、光回路部品、光電子集積回路周辺の接着、封止等；光学機器分野では、カメラモジュール、レンズ用材料、ファインダプリズム、ターゲットプリズム、ファインダーカバー、受光センサー部、撮影レンズ、プロジェクションテレビの当社レンズ等の接着、封止等；インフラ分野では、ガス管、水道管などの接着、ライニング材、封止材等に使用が可能である。本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、低温硬化可能であり、接着特性が高いことから、接着用途に好適に使用可能である。

## 実施例

[0080] 次に実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。なお、特に記載がない限り、操作・試験等は２５℃、５５％ＲＨの環境下で実施した。

[0081] 実施例および比較例において、エポキシ樹脂組成物を下記の通り調製した。

[0082] ＜エポキシ樹脂組成物の調製＞

まず、以下に示す成分を準備した。次いで、各成分を表１に示す添加量（エポキシ樹脂組成物中における含有量）となるように採取し（単位：質量部）、常温（２５℃）にてプラネタリーミキサーで６０分間混合し、エポキシ樹脂組成物を調製した。得られたエポキシ樹脂組成物について、各種物性に関して下記のようにして測定した。

[0083] （Ａ－１）ビスフェノールＡ型／Ｆ型混合エポキシ樹脂（２官能） 商品名：ＥＰＩＣＬＯＮ（登録商標） ＥＸＡ－８３５ＬＶ（ＤＩＣ株式会社製） ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂とビスフェノールＦ型エポキシ樹脂と

の混合物（質量比５０：５０）　エポキシ当量：１６５ｇ／ｅｑ　粘度（２５℃）：２Ｐａ・ｓ

（Ｂ－１）式（１）の構造を有する、単官能綿実油由来エポキシ樹脂（リノール酸グリシジルエステルおよびオレイン酸グリシジルエステルの混合物）　商品名：ＣＲ－Ｇ（岡村製油株式会社製）

（Ｂ’－１）ネオデカン酸グリシジルエステル　商品名：ＣＡＲＤＵＲＡ（登録商標）　Ｅ１０Ｐ（ＨＥＸＩＯＮ社製）

（Ｃ－１）アクリルゴムのコアシェル粒子（ポリ（メタ）アクリル酸エステル系コアシェル粒子）　商品名：ゼフィアック（登録商標）Ｆ－３５１Ｇ（アイカ工業株式会社製）平均粒径：０．３μｍ

（Ｄ－１）変性脂肪族ポリアミンのアミンアダクト型潜在性硬化剤　商品名：ＦＸＲ－１０８１（株式会社Ｔ＆Ｋ　ＴＯＫＡ製）平均粒径：５μｍ、軟化点１２１℃

（Ｅ－１）ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉　商品名：ホタテ末（Ｒ）（株式会社エヌ・シー・コーポレーション）平均粒径：１０μｍ

（Ｅ－２）炭酸カルシウム粉　商品名：ＡＣＥ２５（株式会社カルファイン）平均粒径：１．１μｍ

（Ｅ－３）シリカ粉　商品名：ＳＯ－Ｅ２（株式会社アドマテックス）平均粒径：０．５μｍ

（Ｅ－４）粉砕型タルク粉　商品名：タルクＣＳ（ソブエクレー株式会社製）　平均粒径：８μｍ

表１の実施例および比較例の各エポキシ樹脂組成物の評価において使用した試験方法は下記の通りである。

[0084]　＜接着特性＞

（引張せん断接着強さ）

引張せん断接着強さの測定：鉄試験片（ＳＰＣＣ－ＳＤ鋼板、幅２５ｍｍ×長さ１００ｍｍ×厚さ１．６ｍｍ）同士を以下の手順で接着した。エポキシ樹脂組成物を一方の試験片に塗布して均一に延ばした後、幅方向に２５ｍ

ｍ、長さ方向に１０ｍｍの接着面になるように、もう一方の試験片を貼り合わせた。このように貼り合わせた試験片を治具で固定した状態で、熱風乾燥炉により８０℃にて６０分間加熱し、硬化させた。試験片の温度が室温（２５℃）に戻った後、準備した試験片を引張り試験機により引張速度１０ｍｍ／ｍｉｎにて測定し、「引張せん断接着強さ」（ＭＰａ）とした。試験の詳細については、ＪＩＳＫ６８５０：１９９９に従った。引張せん断接着強さの評価基準は以下の通りである。

[0085] ［評価基準］

２２．０ＭＰａ以上：優れている

２０．０ＭＰａ以上２２．０ＭＰａ未満：やや優れている

２０．０ＭＰａ未満：劣っている。

[0086] （Ｔ型はく離接着強さ）

Ｔ型はく離接着強さの測定：Ｌ字型に曲げた鉄試験片同士（ＳＰＣＣ－ＳＤ鋼板、幅２５ｍｍ×長さ１５０ｍｍ×厚さ０．５ｍｍ、ただし長さ１００ｍｍの地点（端部から１００ｍｍの部分）でＬ字型に曲げたもの）を以下の手順で接着した。エポキシ樹脂組成物を一方の試験片の長さ１００ｍｍの面に塗布して均一に延ばした後、もう一方の試験片をＴ字型になるように貼り合わせた。このように貼り合わせた試験片を治具で固定した状態で、熱風乾燥炉により８０℃にて６０分間加熱し、硬化させた。試験片の温度が室温（２５℃）に戻った後、準備した試験片を引張り試験機により引張速度５０ｍｍ／ｍｉｎにて測定し「Ｔ型はく離接着強さ」（ｋＮ／ｍ）とした。試験の詳細についてはＪＩＳＫ６８５４－３：１９９９に従った。Ｔ型はく離接着強さの評価基準は以下の通りである。

[0087] ［評価基準］

１．０ｋＮ／ｍ以上：優れている

１．０ｋＮ／ｍ未満：劣っている。

[0088] ＜粘度測定＞

０．５ｍＬのエポキシ樹脂組成物を採取して、測定用カップに吐出した。

以下の条件で、ＥＨＤ型粘度計（東機産業株式会社製）にて「粘度」（Ｐａ・ｓ）を測定した。

[0089] ［測定条件］

コーンローター：３°×Ｒ１４

回転速度：１０ｒｐｍ

測定時間：５分

測定温度：２５℃。

[0090] [表1]

| | 実施例１ | 実施例２ | 実施例３ | 実施例４ | 実施例５ | 実施例６ | 比較例１ | 比較例２ | 比較例３ | 比較例４ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| （Ａ－１） | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| （Ｂ－１） | 5 | 10 | 15 | 15 | 15 | 15 | | 5 | | |
| （Ｂ’－１） | | | | | | | | | | 15 |
| （Ｃ－１） | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | | | 15 | 15 |
| （Ｄ－１） | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 |
| （Ｅ－１） | 70 | 70 | 70 | | | | 120 | 65 | 75 | |
| （Ｅ－２） | | | | 70 | | | | | | |
| （Ｅ－３） | | | | | 70 | | | | | |
| （Ｅ－４） | | | | | | 70 | | | | |
| 合計 | 210 | 215 | 220 | 220 | 220 | 220 | 240 | 190 | 210 | 150 |
| 粘度(Pa・s) | 20.8 | 15.2 | 9.7 | 8.0 | 8.2 | 40.1 | 60 | 13.8 | 80 | 3.0 |
| 引張せん断接着強さ(MPa) | 22.2 | 25.6 | 26.6 | 21.3 | 21.1 | 20.5 | 13.5 | 20.7 | 15.9 | 17.2 |
| T型はく離接着強さ(kN/m) | 1.5 | 1.6 | 2.2 | 1.9 | 2.1 | 1.7 | 0.4 | 0.6 | 0.9 | 0.7 |

[0091] 実施例１～６によれば、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さの両方に優れ、高い接着特性を有することが分かる。特に、無機充填材の中でもホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を（Ｅ）成分として使用した実施例１～３では、特に引張せん断接着強さが高いことが分かる。

[0092] 比較例１は本発明の（Ｂ）、（Ｃ）成分を含んでいないため、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さのいずれもが劣る結果となった。比較例２では、本発明の（Ｃ）成分を含んでいないため、Ｔ型はく離接着強さが劣る結果となった。比較例３では、本発明の（Ｂ）成分を含んでいないため、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さのいずれもが劣る結果となった。比較例４では、本発明の（Ｂ）の代わりに、（Ｂ’－１）成分（本発明の（Ｂ）成分ではない成分）として、綿実油由来エポキシ樹脂ではない単官能エポキシ樹脂を使用し、さらに、本発明の（Ｅ）成分を含んでいないため

、引張せん断接着強さおよびＴ型はく離接着強さのいずれもが劣る結果となった。

## 産業上の利用可能性

[0093] 本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、高い接着力を有する。したがって、本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、様々な部材に使用できる接着剤、シール剤、コーティング剤等として有用であることから産業上有用である。

[0094] 本出願は、２０２３年６月２２日に出願された日本特許出願番号２０２３－１０２１９９号に基づいており、その開示内容は、参照され、全体として組み入れられている。

# 請求の範囲

[請求項1] 下記（Ａ）～（Ｄ）成分を含む、エポキシ樹脂組成物：

（Ａ）エポキシ樹脂（但し、下記（Ｂ）成分を除く）

（Ｂ）綿実油由来エポキシ樹脂

（Ｃ）ゴム粒子

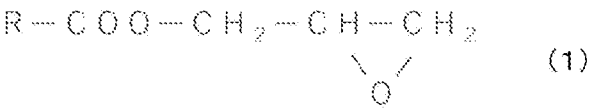
（Ｄ）潜在性硬化剤。

[請求項2] 前記（Ａ）成分が、ビスフェノール型エポキシ樹脂である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項3] 前記（Ｂ）成分が、綿実油に含まれる成分由来のエステル化合物であって、エステル部分において１以上のエポキシ基を有する化合物である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項4] 前記（Ｂ）成分が、下記式（１）で表される構造を有する、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物：

[化1]



(1)

上記式（１）中、Ｒは、炭素数が１３以上の炭化水素基である。

[請求項5] 前記（Ｂ）成分が、リノール酸グリシジルエステルおよび／またはオレイン酸グリシジルエステルである、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項6] 前記（Ｃ）成分が、コアシェル粒子である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項7] 前記（Ｃ）成分の含有量が、前記（Ａ）成分１００質量部に対して１～１００質量部である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項8] 前記（Ｂ）成分の含有量が、前記（Ａ）成分１００質量部に対して０．１～５０質量部である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項9] 更に（Ｅ）成分として無機充填材を含む、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項10] 前記（Ｃ）成分が、アクリルゴム粒子である、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項11] 前記（Ｅ）成分が、炭酸カルシウム粉、シリカ粉、およびタルク粉からなる群から選択される少なくとも一種を含む、請求項９に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項12] 前記（Ｅ）成分が、ホタテ貝殻由来の炭酸カルシウム粉を含む、請求項９に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項13] ポリチオール化合物を実質的に含まない、請求項１に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項14] 請求項１～１３のいずれか１項に記載のエポキシ樹脂組成物を硬化させてなる、硬化物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
**PCT/JP2024/019520**

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

***C08L 63/00***(2006.01)i; ***C08G 59/40***(2006.01)i; ***C08K 5/1515***(2006.01)i; ***C08L 21/00***(2006.01)i
FI: C08L63/00 A; C08G59/40; C08K5/1515; C08L21/00

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; C08G59/00-59/72; C08K3/00-13/08; C09D1/00-201/10; C09J1/00-201/10

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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. |
|---|---|---|
| Y | JP 2010-523800 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.) 15 July 2010 (2010-07-15)<br>claims, examples column (for example, tables 3, 5, 7), etc. | 1-14 |
| Y | JP 2016-199739 A (KANEKA CORP.) 01 December 2016 (2016-12-01)<br>claims, examples column (for example, table 1), etc. | 1-14 |
| Y | WO 2015/053289 A1 (KANEKA CORP.) 16 April 2015 (2015-04-16)<br>claims, examples column (for example, paragraph [0160]), etc. | 1-14 |
| Y | WO 2016/130455 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC) 18 August 2016 (2016-08-18)<br>claims, examples column (for example, tables 1-3), etc. | 1-14 |
| Y | WO 2008/127925 A2 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.) 23 October 2008 (2008-10-23)<br>claims, examples column (for example, tables 1-5), etc. | 1-14 |

☑ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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 |
|---|---|
| **01 August 2024** | **13 August 2024** |

| Name and mailing address of the ISA/JP | Authorized officer |
|---|---|
| **Japan Patent Office (ISA/JP)**<br>**3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915**<br>**Japan** | Telephone No. |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
**PCT/JP2024/019520**

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| Y | JP 58-49720 A (OKAMURA SEIYU KK) 24 March 1983 (1983-03-24)<br>claims, p. 1, lower right column, line 15, p. 2, upper left column, lines 8-9, p. 2, lower left column, lines 15-16, examples column, etc. | 1-14 |
| A | JP 5-117499 A (LION CORPORATION) 14 May 1993 (1993-05-14) | 1-14 |
| A | WO 2018/030184 A1 (THREE BOND CO., LTD.) 15 February 2018 (2018-02-15) | 1-14 |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**
**Information on patent family members**

International application No.
**PCT/JP2024/019520**

| Patent document cited in search report | Publication date (day/month/year) | Patent family member(s) | Publication date (day/month/year) |
|---|---|---|---|
| JP 2010-523800 A | 15 July 2010 | US 2008/0251202 A1<br>claims, examples column (for example, tables 3, 5, 7), etc.<br>WO 2008/127923 A2<br>CN 101679828 A<br>KR 10-2010-0016407 A | |
| JP 2016-199739 A | 01 December 2016 | (Family: none) | |
| WO 2015/053289 A1 | 16 April 2015 | US 2016/0251510 A1<br>claims, examples column (for example, paragraph [0189]), etc.<br>EP 3056540 A1<br>CN 105612215 A<br>TW 201529699 A | |
| WO 2016/130455 A1 | 18 August 2016 | US 2017/0349795 A1 | |
| WO 2008/127925 A2 | 23 October 2008 | US 2008/0251203 A1<br>US 2012/0071584 A1 | |
| JP 58-49720 A | 24 March 1983 | (Family: none) | |
| JP 5-117499 A | 14 May 1993 | (Family: none) | |
| WO 2018/030184 A1 | 15 February 2018 | US 2019/0177582 A1<br>CN 109563238 A<br>KR 10-2019-0035699 A | |

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/019520

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 63/00(2006.01)i; C08G 59/40(2006.01)i; C08K 5/1515(2006.01)i; C08L 21/00(2006.01)i
FI: C08L63/00 A; C08G59/40; C08K5/1515; C08L21/00

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））

C08L1/00-101/16; C08G59/00-59/72; C08K3/00-13/08; C09D1/00-201/10; C09J1/00-201/10

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

| | |
|---|---|
| 日本国実用新案公報 | １９２２－１９９６年 |
| 日本国公開実用新案公報 | １９７１－２０２４年 |
| 日本国実用新案登録公報 | １９９６－２０２４年 |
| 日本国登録実用新案公報 | １９９４－２０２４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 |
|---|---|---|
| Y | JP 2010-523800 A (ダウ グローバル テクノロジーズ インコーポレイティド) 15.07.2010 (2010-07-15)<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[表3],[表5],[表7])等 | 1-14 |
| Y | JP 2016-199739 A (株式会社カネカ) 01.12.2016 (2016-12-01)<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[表1])等 | 1-14 |
| Y | WO 2015/053289 A1 (株式会社カネカ) 16.04.2015 (2015-04-16)<br>請求の範囲,実施例欄(例えば[0160])等 | 1-14 |
| Y | WO 2016/130455 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC) 18.08.2016 (2016-08-18)<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[Table 1]～[Table 3])等 | 1-14 |
| Y | WO 2008/127925 A2 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES, INC.) 23.10.2008 (2008-10-23)<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[Table 1]～[Table 5])等 | 1-14 |
| Y | JP 58-49720 A (岡村製油株式会社) 24.03.1983 (1983-03-24)<br>特許請求の範囲,第1頁右下欄第15行,第2頁左上欄第8～9行,第2頁左下欄第15～16行,実施例欄等 | 1-14 |

☑ 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
"D" 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
"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抵触するものではなく、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 |
|---|---|
| 01.08.2024 | 13.08.2024 |

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）

前田　孝泰 4J 9456

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

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 | JP 5-117499 A (ライオン株式会社) 14.05.1993 (1993-05-14) | 1-14 |
| A | WO 2018/030184 A1 (株式会社スリーボンド) 15.02.2018 (2018-02-15) | 1-14 |

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/019520

| 引用文献 | 公表日 | パテントファミリー文献 | 公表日 |
|---|---|---|---|
| JP 2010-523800 A | 15.07.2010 | US 2008/0251202 A1<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[TABLE 3],[TABLE 5],[TABLE 7])等<br>WO 2008/127923 A2<br>CN 101679828 A<br>KR 10-2010-0016407 A | |
| JP 2016-199739 A | 01.12.2016 | (ファミリーなし) | |
| WO 2015/053289 A1 | 16.04.2015 | US 2016/0251510 A1<br>特許請求の範囲,実施例欄(例えば[0189])等<br>EP 3056540 A1<br>CN 105612215 A<br>TW 201529699 A | |
| WO 2016/130455 A1 | 18.08.2016 | US 2017/0349795 A1 | |
| WO 2008/127925 A2 | 23.10.2008 | US 2008/0251203 A1<br>US 2012/0071584 A1 | |
| JP 58-49720 A | 24.03.1983 | (ファミリーなし) | |
| JP 5-117499 A | 14.05.1993 | (ファミリーなし) | |
| WO 2018/030184 A1 | 15.02.2018 | US 2019/0177582 A1<br>CN 109563238 A<br>KR 10-2019-0035699 A | |