(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
2014 年 5 月 8 日(08.05.2014)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2014/069488 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 83/07 (2006.01) *C08L 83/05* (2006.01)
C08G 77/20 (2006.01) *H01L 23/29* (2006.01)
C08G 77/58 (2006.01) *H01L 23/31* (2006.01)
C08K 5/56 (2006.01) *H01L 33/56* (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2013/079323

(22) 国際出願日: 2013 年 10 月 29 日(29.10.2013)

(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 2012-238577 2012 年 10 月 30 日(30.10.2012) JP
特願 2013-075022 2013 年 3 月 29 日(29.03.2013) JP
特願 2013-099651 2013 年 5 月 9 日(09.05.2013) JP

(71) 出願人: 東ソー株式会社(TOSOH CORPORATION) [JP/JP]; 〒7468501 山口県周南市開成町４５６０番地 Yamaguchi (JP).

(72) 発明者: 原　大治(HARA, Daiji); 〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１　東ソー株式会社東京研究センター内 Kanagawa (JP). 摩庭　篤(MANIWA, Atsushi); 〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１　東ソー株式会社　東京研究センター内 Kanagawa (JP). 木下　智之(KINOSHITA, Tomoyuki); 〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１　東ソー株式会社　東京研究センター内 Kanagawa (JP). 清水　真郷(SHIMIZU, Masato); 〒2521123 神奈川県綾瀬市早川２７４３番地１　東ソー株式会社　東京研究センター内 Kanagawa (JP).

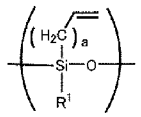
(74) 代理人: 泉名　謙治, 外(SENMYO, Kenji et al.); 〒1010035 東京都千代田区神田紺屋町１７番地ＳＩＡ神田スクエア４階 Tokyo (JP).

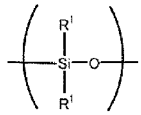
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,

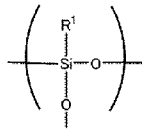
[続葉有]

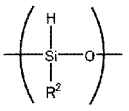
(54) **Title**: POLYMETALLOXANE COMPOUND, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND APPLICATION THEREOF

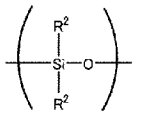
(54) 発明の名称 : ポリメタロキサン組成物、その製造方法、及びその用途

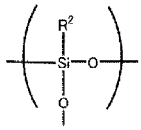

(1)


(2)


(3)


(4)


(5)


(6)

(57) **Abstract**: The present invention provides: a material favorable for a gas barrier layer of a resin member and the sealing of an LED element; an LED device; an FPD device; a semiconductor device; and the like. A polymer composition contains component (I), component (II), and component (III). Component (I) is a polymer obtained by reacting an unsaturated-group-containing siloxane compound (component (A)), which includes the repeating units of formula (1) and formula (2), formula (1) and formula (3), or formula (1), formula (2), and formula (3), and at least one compound (component (C)) selected from the group consisting of an organometallic compound and a metalloxane compound of a group 1 metal, a group 2 metal, a group 12 metal, a group 13 metal, or a group 14 metal of the periodic table. Here, R^1 represents a hydrogen atom or a hydrocarbon group having 1-20 carbon atoms, and the instances of R^1 may be the same or different from each other; a represents an integer from 1 to 10. Component (II) is a siloxane compound (component (B)) having a structure of hydrogen directly bonded to silicon and containing the repeating units of formula (4) and formula (5), formula (4) and formula (6), or formula (4), formula (5), and formula (6). Here, R^2 represents a hydrogen atom or a hydrocarbon group having 1-20 carbon atoms, and the instances of R^2 may be the same or different from each other. Component (III) is a metal catalyst (component (D)) of a group 8 metal, a group 9 metal, or a group 10 metal of the periodic table.

(57) 要約:　ＬＥＤ素子の封止や樹脂部材のガスバリア層に好適な材料、ＬＥＤデバイス、ＦＰＤデバイス及び半導体デバイス等を提供する。　成分（Ｉ）、成分（ＩＩ）及び成分（ＩＩＩ）を含む重合体組成物。　成分（Ｉ）；式（１）及び式（２）、式（１）及び式（３）、又は式（１）、式（２）及び式（３）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））とを反応させて得られる重合体。但し、Ｒ

[続葉有]

WO 2014/069488 A1

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, 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:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

[1]は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、Ｒ[1]同志は、同一でも異なっても良い。ａは１～１０の整数を表す。成分（ＩＩ）；下記式（４）及び式（５）、式（４）及び式（６）、又は式（４）、式（５）及び式（６）の繰り返し単位を含み、水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物（成分（Ｂ））。但し、Ｒ[2]は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、Ｒ[2]同志は、同一でも異なっても良い。成分（ＩＩＩ）；周期表の第８族金属、第９族金属、又は第１０族金属の金属触媒（成分（Ｄ））。

明　細　書

発明の名称 ：

ポリメタロキサン組成物、その製造方法、及びその用途

技術分野

[0001] 本発明は、典型金属を含有したポリメタロキサン組成物、その製造方法及び用途に関する。殊に、該ポリメタロキサン組成物を用いた封止材及びガスバリア材に関する。

背景技術

[0002] 現在、ＬＥＤ（Light Emitting Diode）素子の封止材としてエポキシ樹脂、ポリシロキサンが使用されている。ビスフェノールＡを主骨格に有する芳香族系エポキシ樹脂は安価であり、従来から長波長の光出力の低い赤色及び緑色ＬＥＤ素子の封止材として長く使用されてきた。

しかし、１９９３年以降、ＬＥＤ素子が高出力化し、更に青色化、白色化が進み、短波長で、かつ高出力な照明が求められている。このような短波長で、かつ高出力なＬＥＤ素子を、特許文献１や特許文献２で開示されているような芳香族基を有するエポキシ樹脂で封止した場合、芳香環が短波長の光を吸収し、劣化するため、黄変や輝度低下の問題が生じる。

[0003] また、特許文献３や特許文献４においては、ハイドロシリレーション（Hydrosilylation）反応を用いた熱硬化型のポリシロキサン系封止材が開示されている。

これらのポリシロキンサン系封止材では、光取出し効率を向上させるためにフェニル基等の芳香族基を置換させ、高屈折率化を図っている。しかしながら、紫外線光源ＬＥＤ（以下ＵＶ－ＬＥＤと略記する。）等の高出力なＬＥＤ素子の封止に用いた場合、紫外線による芳香族基の酸素酸化による劣化の為、黄変したり、光度が低下する。また、ＵＶ－ＬＥＤ等の高出力ＬＥＤ素子は、発熱が著しく、熱による劣化がある。

上記のエポキシ樹脂、ポリシロキサン系封止材は、ガスバリア性が十分で

ない為、空気中の水蒸気や酸素を透過し、ＬＥＤ素子がダメージを受けたり、銀リフレクター(Reflector)が硫化され、黒変する場合がある。

[0004] 更にポリシロキサン系封止材は、線膨張係数が大きい為、配線の断線や、電極と封止材との剥離が問題となる場合があった。また、硬度が不十分であることから、トランスファー（Transfer）成形もしくは、コンプレッション（Compression）成形後のダイシング（Dicing）による切断が困難となる場合があった。

すなわち、現在提案されているエポキシ樹脂系封止材やポリシロキサン系封止材では、耐熱性、放熱性、耐クラック性、耐光性、特に耐ＵＶ性、水及び酸素や硫化水素に対するガスバリア性が不十分であり、改善が望まれている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：日本特開平０５－６９４６号公報

特許文献2：日本特許第２７８１２７９号公報

特許文献3：日本特開２００４－１８６１６８号公報

特許文献4：日本特開２００６－９３３５４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、ＬＥＤ素子の封止やＬＥＤデバイス配線の保護、パワー半導体の絶縁封止、透明プラスチック基板や透明プラスチックフィルム用ガスバリア層等に好適な材料を提供し、それを用いたＬＥＤデバイス、ガスバリア部材、ＦＰＤデバイス及び半導体デバイスを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、特定の有機金属化合物成分の共存下に、不飽和基含有シロキサン化合物と、水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物と

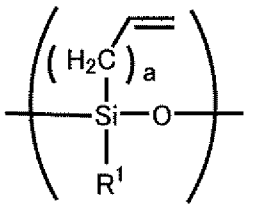
をハイドロシリレーション重合させた重合体組成物が、耐ＵＶ性、ガスバリア性、及び機械的特性が高く、ＬＥＤ素子の封止やＬＥＤデバイス配線の保護、パワー半導体の絶縁封止、透明プラスチック基板や透明プラスチックフィルム用のガスバリア層等として有用であることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0008] すなわち本発明は、以下の要旨を有するものである。

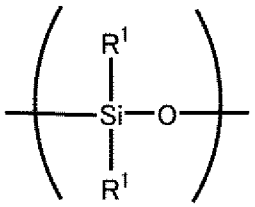
（１）成分（Ｉ）、成分（ＩＩ）及び成分（ＩＩＩ）を含む重合体組成物。

成分（Ｉ）；式（１）及び式（２）、式（１）及び式（３）、又は式（１）、式（２）及び式（３）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））とを反応させて得られる重合体。

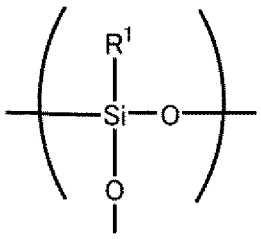
[0009] [化1]



(1)



(2)

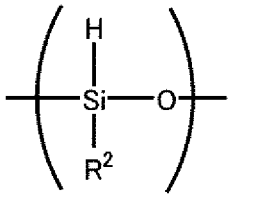


(3)

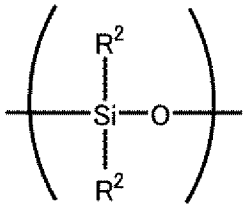
（Ｒ[1]は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、Ｒ[1]同志は、同一でも異なっても良い。ａは１～１０の整数を表す。）

[0010] 成分（ＩＩ）；式（４）及び式（５）、式（４）及び式（６）、又は式（４）、式（５）及び式（６）の繰り返し単位を含み、水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物（成分（Ｂ））。

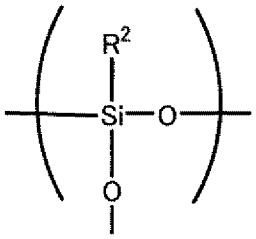
[0011] [化2]



(4)



(5)



(6)

（R^2は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、R^2同志は、同一でも異なっても良い。）

成分（ＩＩＩ）；周期表の第８族金属、第９族金属、又は第１０族金属の金属触媒（成分（Ｄ））。

[0012] （２）成分（Ｉ）中、成分（Ａ）のＳｉ含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｃ）のＡｌ含有量が、０．００１～１００ｍｏｌである上記（１）に記載の重合体組成物。

（３）成分（Ａ）中のＳｉに結合したビニル基等の不飽和炭素結合の含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｂ）のＳｉに結合した水素原子含有量が、０．０１～１０００ｍｏｌであり、成分（Ｄ）の金属含有量が、０．００００１～１０００ｍｍｏｌである、上記（１）又は（２）に記載の重合体組成物。

（４）成分（Ｉ）が、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させる際、若しくは

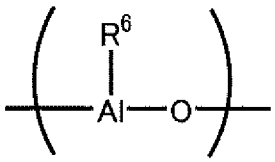
反応させた後に、水、有機ヒドロキシ化合物及び有機ヒドロキシカルボン酸化合物からなる群より選ばれる１種以上を反応させた反応物である、上記（１）～（３）のいずれかに記載の重合体組成物。

（５）成分（Ｉ）が、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応して得られる重合体に、アルケニル基置換環状シロキサンを添加した反応物である、上記（１）～（４）のいずれかに記載の重合体組成物。

（６）成分（Ｃ）が、有機アルミニウム化合物、有機亜鉛化合物、及びアルミノキサンからなる群より選ばれる１種以上である、上記（１）～（５）のいずれかに記載の重合体組成物。

[0013] （７）成分（Ａ）が、式（１）、式（２）及び式（７）、式（１）、式（３）及び式（７）、又は式（１）、式（２）、式（３）及び式（７）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物である、上記（１）～（６）のいずれかに記載の重合体組成物。

[化3]



（7）

（R^6は、炭素数１～２０の炭化水素基、炭素数１～２０のアルコキシ基、又は炭素数１～２０のシラノキシ基を表す。）

[0014] （８）成分（Ｄ）が、白金触媒又はルテニウム触媒である、上記（１）～（７）のいずれかに記載の重合体組成物。

（９）予め成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を添加する、上記（１）～（８）のいずれかに記載の重合体組成物の製造方法。

（１０）上記（１）～（８）のいずれかに記載の重合体組成物を加熱、若しくは光を照射し、反応させて得られる硬化物。

[0015] （１１）Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づ

く１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、

成分（Ａ）と成分（Ｂ）の硬化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応物と成分（Ｂ）の硬化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、

^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する、上記（１０）に記載の硬化物。

[0016] （１２）上記（１０）又は（１１）に記載の硬化物からなる封止材。

（１３）上記（１０）又は（１１）に記載の硬化物からなるガスバリア材。

（１４）上記（１０）又は（１１）に記載の硬化物からなる半導体用絶縁封止材。

（１５）上記（１２）に記載の封止材を用いるＬＥＤデバイス。

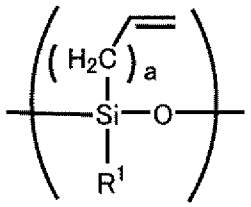
（１６）上記（１３）に記載のガスバリア材を用いる樹脂部材。

（１７）上記（１４）に記載に記載の半導体用絶縁封止材を用いる半導体デバイス。

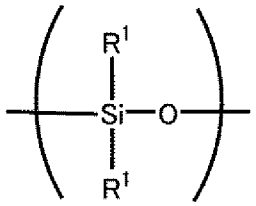
[0017] （１８）式（１）及び（２）、（１）及び（３）、又は（１）、（２）及び（３）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））とを反応させて得られる重合体。

[0018]

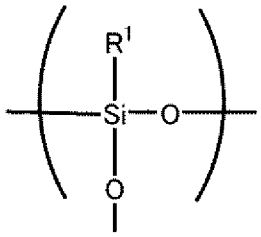
[化4]



(1)



(2)

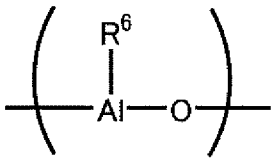


(3)

（R^1は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、R^1同志は、同一でも異なっても良い。ａは１～１０の整数を表す。）

[0019] （１９）式（１）、式（２）及び式（７）、式（１）、式（３）及び式（７）、又は式（１）、式（２）、式（３）及び式（７）の繰り返し単位を含む、上記（１８）に記載の重合体。

[化5]



(7)

（R^6は、炭素数１～２０の炭化水素基、炭素数１～２０のアルコキシ基、又は炭素数１～２０のシラノキシ基を表す。）

[0020] （２０）Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づく１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、

成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（Ａ）と成

分（Ｃ）との反応物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、

^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する、上記（１８）又は（１９）に記載の重合体。

発明の効果

[0021] 本発明の重合体組成物を硬化して得られる硬化物は、封止材、保護膜、ガスバリア材等として用いることができ、ガスバリア性、機械的強度、耐ＵＶ性、及び耐熱性等の良好な、ガスバリア性樹脂部材、ＬＥＤデバイス、半導体デバイス等を提供できる。さらに、これらはＦＰＤデバイスに用いることができる。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明の詳細について説明する。

本発明の重合体組成物は、成分（Ｉ）として、特定の不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））を反応して得られる重合体、成分（ＩＩ）として、特定の水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物（成分（Ｂ））、及び成分（ＩＩＩ）として、周期表の第８族金属、第９族金属、又は第１０族金属の金属触媒（成分（Ｄ））を含む。

[0023] 成分（Ａ）の不飽和基含有シロキサン化合物は、直鎖状、分岐鎖状若しくは環状の、シロキサン化合物、シロキサンオリゴマー、又はポリシロキサンである。

成分（Ａ）において、Ｒ^{1}は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基であり、該炭化水素基は飽和又は不飽和のいずれでもよく、直鎖状、分岐鎖状、又は環状のいずれの構造を有してよい。

Ｒ^{1}としては、炭素数１～２０の炭化水素基、好ましくは炭素数１～１０の、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基、アルキルアリール基、ビ

ニル基等のアルケニル基、アセチニル基等のアルキニル基等を挙げることができる。

R^1の具体的な例としては、水素原子、メチル、エチル、ｎ－プロピル、イソプロピル、ｎ－ブチル、ｉ－ブチル、ｓｅｃ－ブチル、ｔｅｒｔ．－ブチル、ｎ－ペンチル、ｔｅｒｔ．－アミル、ｎ－ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、トルイル、ナフチル、シクロブチル、シクロブテニル、シクロペンチル、シクロペンタジエニル、シクロヘキシル、シクロヘキセニル、シクロオクテニル、シクロオクタジエニル、１－アダマンチルなどの基を挙げることができる。

[0024] R^1は、経済的には炭素数３以下の直鎖状アルキル基が好ましく、重合体組成物の屈折率を低くする場合は、イソプロピル、ｓｅｃ－ブチル、シクロヘキシル、ｔｅｒｔ．－ブチル、ｔｅｒｔ．－アミル、１－アダマンチルなどの２級、若しくは３級の炭化水素基が好ましい。また、重合体組成物の屈折率を高くする場合は、フェニル、トルイル、ナフチルなどの芳香族基が好ましい。

混合、計量、及び供給のしやすさの観点からは、成分（Ａ）の粘度は０．００１～１０００Ｐａ・ｓの範囲が好ましく、特に好ましくは、０．０１～１００Ｐａ・ｓの範囲である。更に好ましくは、０．１～２０Ｐａ・ｓの範囲である。

[0025] 成分（Ａ）の直鎖状、又は分岐鎖状のシロキサン化合物の例としては、ビニルメチルシロキサン－ジメチルシロキサン－メチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサン－ジエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサン－ジフェニルシロキサン－フェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサン－メチルエチルシロキサン－メチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサン－ジメチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサン－メチルエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサン－ジエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチル

シロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージエチルシロキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、

ビニルメチルシロキサンージエチルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロ

キサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルエチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、ビニルフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、等が挙げられる。

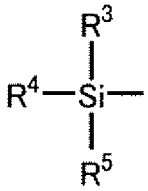
なかでも、ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、ビニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体等が好ましい。

[0026] これらのシロキサン化合物は、特に重量平均分子量の制限は無いが、通常

、重量平均分子量５００～５，０００，０００が好ましく、特に好ましくは、１，０００～１，０００，０００である。この範囲の重量平均分子量であると、ハイドロシリレーション反応が効率的に進み、ガスバリア性と機械的物性が良好な重合体組成物が得られ易い。また、重量平均分子量が５００以下の同様の構造を有するオリゴマーも、本発明の範囲に入る。

[0027] また、上記の直鎖状、又は分岐鎖状のシロキサン化合物において、末端のシラノール基を下記一般式（８）のシリル基で封止することも本発明の範囲に入る。

[化6]



(8)

（R^3、R^4、及びR^5は，それぞれ独立に、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表す。）

R^3、R^4、及びR^5は、成分（Ａ）のR^1と同様に、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基である。

[0028] 成分（Ａ）の環状のシロキサン化合物の例としては、

［ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、［ビニルメチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキ

サンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、［ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルエチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、

［ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサン

ージエチルシロキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージエチルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルエチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体等の環状の共重合体、

［0029］ ２，４，６－トリイソプロピル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトライソプロピル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタイソプロピル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｓｅｃ－ブチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｓｅｃ－ブチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｓｅｃ－ブチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－

トリｔｅｒｔ－ブチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｔｅｒｔ－ブチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｔｅｒｔ－ブチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリメチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラメチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタメチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリエチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラエチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタエチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｎ－プロピル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｎ－プロピル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｎ－プロピル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｎ－ブチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｎ－ブチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｎ－ブチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリイソブチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトライソブチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタイソブチル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリフェニル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラフェニル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタフェニル－２，４，６，８，１０－ペンタビニルシクロペンタシロキサン、ヘキサビニルシクロトリシロキサン、オクタビニルシクロテトラシロキサン、デカビニルシクロペンタシロキサン等の環状のシロキサンなどを挙

げることができる。

なかでもビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［ビニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、共重合体等の環状の共重合体、

２，４，６ートリイソプロピルー２，４，６ートリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８ーテトライソプロピルー２，４，６，８ーテトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０ーペンタイソプロピルー２，４，６，８，１０ーペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６ートリｓｅｃーブチルー２，４，６ートリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８ーテトラｓｅｃーブチルー２，４，６，８ーテトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０ーペンタｓｅｃーブチルー２，４，６，８，１０ーペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６ートリｔｅｒｔーブチルー２，４，６ートリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８ーテトラｔｅｒｔーブチルー２，４，６，８ーテトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０ーペンタｔｅｒｔーブチルー２，４，６，８，１０ーペンタビニルシクロペンタシロキサン、２，４，６ートリメチルー２，４，６ートリビニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８ーテトラメチルー２，４，６，８ーテトラビニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０ーペンタメチルー２，４，６，８，１０ーペンタビニルシクロペンタシロキサン等が好ましい。

[0030] 環状シロキサン化合物である不飽和基含有シロキサン化合物を用いた場合、生成する重合体組成物の耐熱性、耐クラック性、及び引張強度等機械的特性が向上する場合がある。

上記の直鎖状、分岐鎖状及び環状の構造であるシロキサン化合物が混合したものを使用することも本発明の範囲に入る。

[0031] 成分（Ｃ）としての周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属又は第１４族金属の有機金属化合物としては、リチウム、マグネシウム、亜鉛、スズ又はアルミニウムの金属と有機基とからなる有機金属化合物、すなわち、炭素と金属が直接結合した化合物が挙げられる。

有機基としては、アルキル基を挙げることができる。アルキル基としては、直鎖又は分岐鎖の炭素数１～２０のアルキル基、好ましくは炭素数１～１０のアルキル基が用いられる。

なかでも、直鎖又は分岐鎖の炭素数１～２０の、アルキルアルミニウム及びアルキル亜鉛が好ましい。

[0032] 具体例としては、例えばｎ－ブチルリチウム、ジエチルマグネシウム、ジエチル亜鉛、トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリ－ｉ－ブチルアルミニウム、トリ－ｎ－ブチルアルミニウム、トリ－ｎ－デシルアルミニウム、テトラエチルスズ、テトラブチルスズ、トリメチルアルミニウム，トリエチルアルミニウム，トリｎ－プロピルアルミニウム，トリｎ－ブチルアルミニウム，トリイソブチルアルミニウム，トリイソプレニルアルミニウム，トリｎ－ヘキシルアルミニウム，トリｎ－オクチルアルミニウム，トリ（２－メチルペンチル）アルミニウム、ジメチルアルミニウムクロライド，メチルアルミニウムセスキクロライド，メチルアルミニウムジクロライド，ジエチルアルミニウムクロライド，エチルアルミニウムセスキクロライド，エチルアルミニウムジクロライド，ジｎ－プロピルアルミニウムクロライド，ジｎ－ブチルアルミニウムクロライド，ジイソブチルアルミニウムクロライド，イソブチルアルミニウムジクロライド，ヨウ化ジエチルアルミニウム，フッ化ジエチルアルミニウム，ジエチルアルミニウムブロミド，ジ

イソブチルアルミニウムヒドリド，ジエチルアルミニウムヒドリド，ジエチルアルミニウムメトキシド，ジエチルアルミニウムエトキシド，ジイソブチルアルミニウムメトキシド，ジイソブチルアルミニウムエトキシド，ジイソブチルアルミニウムイソプロポキシド、ジメチル亜鉛、塩化メチル亜鉛、臭化メチル亜鉛、ヨウ化メチル亜鉛、弗化メチル亜鉛、ジエチル亜鉛、塩化エチル亜鉛、臭化エチル亜鉛、ヨウ化エチル亜鉛、弗化エチル亜鉛等が挙げられ、その中でもトリメチルアルミニウム，トリエチルアルミニウム，トリｎ－プロピルアルミニウム，トリｎ－ブチルアルミニウム，トリイソブチルアルミニウム，トリイソプレニルアルミニウム，トリｎ－ヘキシルアルミニウム，トリｎ－オクチルアルミニウム，トリ（２－メチルペンチル）アルミニウム、ジメチルアルミニウムクロライド，メチルアルミニウムセスキクロライド，メチルアルミニウムジクロライド，ジエチルアルミニウムクロライド，エチルアルミニウムセスキクロライド，エチルアルミニウムジクロライド，ジｎ－プロピルアルミニウムクロライド，ジｎ－ブチルアルミニウムクロライド，ジイソブチルアルミニウムクロライド，イソブチルアルミニウムジクロライド，ヨウ化ジエチルアルミニウム，フッ化ジエチルアルミニウム，ジエチルアルミニウムブロミド，ジイソブチルアルミニウムヒドリド，ジエチルアルミニウムヒドリド，ジエチルアルミニウムメトキシド，ジエチルアルミニウムエトキシド，ジイソブチルアルミニウムメトキシド，ジイソブチルアルミニウムエトキシド，ジイソブチルアルミニウムイソプロポキシド、ジメチル亜鉛、塩化メチル亜鉛、臭化メチル亜鉛、ヨウ化メチル亜鉛、弗化メチル亜鉛、ジエチル亜鉛、塩化エチル亜鉛、臭化エチル亜鉛、ヨウ化エチル亜鉛、弗化エチル亜鉛等が好ましい。

とりわけ、ハロゲンを含まないトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、ジメチル亜鉛、ジエチル亜鉛等が好ましい。

[0033] また、これらの周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属又は第１４族金属の有機金属化合物を水と反応させたメタロキサン化

合物も本発明の範囲に入る。該メタロキサン化合物としては、好ましくは、有機アルミニウムと水との反応物であるポリメチルアルミノキサン、ポリエチルアルミノキサン、ポリイソブチルアルミノキサン、［メチルアルミノキサンーエチルアルミノキサン］共重合体、［メチルアルミノキサンーイソブチルアルミノキサン］共重合体、［エチルアルミノキサンーイソブチルアルミノキサン］共重合体、［メチルアルミノキサンーエチルアルミノキサンーイソブチルアルミノキサン］共重合体等が挙げられる。

これらの有機金属化合物は、単独又は２種以上の混合物として使用される。

[0034] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）を反応させる際若しくは、反応させた後に、水、有機ヒドロキシ化合物及び有機ヒドロキシカルボン酸化合物からなる群より選ばれる１種以上を反応させることが好ましい。これらを反応させることで、引張強度や破断伸び等の機械的特性が向上する場合がある。

有機ヒドロキシ化合物、有機ヒドロキシカルボン酸化合物としては、少なくとも２つの水酸基及び／又はガルボキシル基を有する化合物であれば特に限定されない。

例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，４ーブタンジオール、ヒドロキシ酢酸、乳酸、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシシクロヘキシルカルボン酸、ヒドロキシ安息香酸、３ーヒドロキシフタル酸、４ーヒドロキシフタル酸、リンゴ酸等を挙げることができる。

[0035] 本発明の重合体組成物は、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応して得られる重合体を含むものである。該重合体を含むことにより、得られる重合体組成物は、耐熱性、耐ＵＶ性、ガスバリア性等の性能が向上する。

成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応に使用する反応器は、当該技術分野で通常用いられるものであれば、適宜使用することができる。例えば、攪拌槽型反応器、流動床型反応器、又は循環式反応器を用いて、重合操作を連続方式、半回分方式及び回分方式のいずれかの方式で行うことができる。更に異なる重合の反応条件で、２段階以上に分けて行うことも可能である。

[0036] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応条件については、特に限定はされるものではないが、以下に示す反応条件を選択することができる。

成分（Ａ）を反応溶媒としてもよいが、不活性溶媒を反応溶媒として用いることもできる。使用できる反応溶媒としては、当該技術分野で使用されるものであれば特に限定されるものでない。

[0037] 例えば、ｎ－ペンタン、ｉ－ペンタン、ｎ－ヘキサン、シクロヘキサン、ｎ－ヘプタン、ｎ－デカン等の飽和炭化水素類；トルエン、キシレン、デセン－１等の不飽和炭化水素類；ジエチルエーテル、ジプロピルエーテル、ｔｅｒｔ．－ブチルメチルエーテル、ジブチルエーテル、シクロペンチルメチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類；メタノール、エタノール、イソプロパノール、ｎ－ブタノール、ｓｅｃ－ブタノール、ｔｅｒｔ．－ブタノール、２－エチルヘキサノール等のアルコール；等を使用することができる。また、これらの混合溶媒も使用することができる。

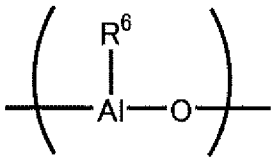
[0038] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させる際の反応温度については、通常、工業的に使用されている温度である、－１００～２００℃の範囲が好ましく、特に好ましくは－８５～１５０℃の範囲である。

反応の圧力条件は、加圧下、常圧下、減圧下のいずれであっても可能である。

また、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させる際、成分（Ａ）中のＳｉ含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｃ）のＡｌ含有量は、０．００１～１００ｍｏｌが好ましく、特に好ましくは０．０１～１０ｍｏｌの範囲である。この範囲を外れると、硬化速度が低下したり、生成する重合体組成物膜の機械的強度の低下や重合体組成物膜の白化が生じたり、クラックや剥離が発生する場合がある。

[0039] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応で得られる重合体としては、式（１）、式（２）及び下記式（７）、式（１）、式（３）及び下記式（７）、又は式（１）、式（２）、式（３）及び下記式（７）の繰り返し単位を含む重合体が好ましい。

[化7]



(7)

（R^6は、炭素数１～２０の炭化水素基、炭素数１～２０のアルコキシ基、又は炭素数１～２０のシラノキシ基を表す。）

[0040] R^6の例としては、メチル、エチル、イソブチル、メトキシ、エトキシ、ｎ－プロポキシ、イソプロポキシ、ｎ－ブトキシ、ｓｅｃ．－ブトキシ、ｔｅｒｔ．－ブトキシ、トリメチルシラノキシ、ｔｅｒｔ．－ブチルジメチルシラノキシを挙げることができる。R^6は、同一でも異なっても良い。

[0041] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応して得られ得る重合体は、Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づく１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する重合体であることが好ましい。

[0042] 水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物である成分（Ｂ）は、鎖状又は環状のシロキサン化合物、シロキサンオリゴマー、及びポリシロキサンである。

成分（Ｂ）において、R^2は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基であり、炭化水素基は飽和又は不飽和のいずれでもよく、また直鎖状、分岐鎖状、環状のいずれの構造を有してもよい。

[0043] R^2の炭化水素基は、炭素数１～２０の炭化水素基、好ましくは炭素数１～１０の、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基、アルキルアリール基、ビニル基等のアルケニル基、アセチニル基等のアルキニル基などを挙げることができる。

R^2の具体的な例としては、水素原子、メチル、エチル、ｎ－プロピル、イ

ソプロピル、ｎ－ブチル、ｉ－ブチル、ｓｅｃ－ブチル、ｔｅｒｔ．－ブチル、ｎ－ペンチル、ｔｅｒｔ．－アミル、ｎ－ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、トルイル、ナフチル、シクロブチル、シクロブテニル、シクロペンチル、シクロペンタジエニル、シクロヘキシル、シクロヘキセニル、シクロオクテニル、シクロオクタジエニル、１－アダマンチルなどの基を挙げることができる。

[0044] Ｒ^{2}は、経済的には、炭素数３以下の直鎖状アルキル基が好ましく、重合体組成物の屈折率を低くする場合は、イソプロピル、ｓｅｃ－ブチル、シクロヘキシル、ｔｅｒｔ．－ブチル、ｔｅｒｔ．－アミル、１－アダマンチルなどの２級、もしくは３級の炭化水素基が好ましい。また、重合体組成物の屈折率を高くする場合は、フェニル、トルイル、ナフチルなどの芳香族基が好ましい。

混合、計量、及び供給のしやすさの観点からは、成分（Ｂ）の粘度は０．００１～１０００Ｐａ・ｓの範囲が好ましく、特に好ましくは、０．０１～１００Ｐａ・ｓの範囲である。更に好ましくは、０．１～２０Ｐａ・ｓの範囲である。

[0045] 成分（Ｂ）の鎖状のシロキサン化合物の例としては、

メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン－メチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサン－ジエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサン－ジフェニルシロキサン－フェニルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－メチルエチルシロキサン－メチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－メチルエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－ジエチルシロキサン－エチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－フェニルメチルシロキサン－メチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン－フェニルセスキオキ

サン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体

、

エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジ

エンシロキサンージエチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン共重合体、

エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン共重合体、フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、

等が挙げられる。

なかでも、成分（Ｂ）の鎖状のシロキサン化合物の例としては、

メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニル

セスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン共重合体、メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン共重合体等が好ましい。

[0046] これらのシロキサン化合物は、特に重量平均分子量の制限は無いが、通常、重量平均分子量５００～５，０００，０００が好ましく、特に好ましくは１，０００～１，０００，０００である。この範囲の重量平均分子量であると、ハイドロシリレーション反応が効率的に進み、ガスバリア性と機械的物性が良好な重合体組成物が得られ易い。また、重量平均分子量が５００以下の同様の構造を有するオリゴマーも本発明の範囲に入る。

また、上記の鎖状のシロキサン化合物においては、末端のシラノール基を上記一般式（８）のシリル基で封止することも本発明の範囲に入る。

[0047] 成分（Ｂ）の環状のシロキサン化合物の例としては、

［メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエ

ンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージエチルシロキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキ

サンージエチルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルエチルシロキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージメチルシロキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルメチルシロキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンージフェニルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［エチルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーメチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーエチルセスキオキサン］共重合体、［フェニルハイドロジエンシロキサンーフェニルセスキオキサン］共重合体等の環状の共重体、

［0048］ ２，４，６－トリイソプロピルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトライソプロピルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタイソプロピルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｓｅｃ－ブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｓｅｃ－ブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｓｅｃ－ブチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｔｅｒｔ－ブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｔｅｒｔ－ブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｔｅｒｔ－ブチルシクロペンタシロキサン、２，４，

６－トリメチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラメチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタメチル－シクロペンタシロキサン、２，４，６－トリエチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラエチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタエチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｎ－プロピルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｎ－プロピルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｎ－プロピルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｎ－ブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｎ－ブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｎ－ブチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリイソブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトライソブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタイソブチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリフェニルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラフェニルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタフェニルシクロペンタシロキサン等を挙げることができる。

なかでも、［メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン－メチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－フェニルメチルシロキサン－メチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン－フェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－フェニルメチルシロキサン－フェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－ジフェニルシロキサン－フェニルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－ジメチルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－フェニルメチルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－ジフェニルシロキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－メチルセスキオキサン］共重合体、［メチルハイドロジエンシロキサン－フェニルセスキオキサン］共重合体等の環状の共重体、

２，４，６－トリイソプロピルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－

テトライソプロピルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタイソプロピルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｓｅｃ－ブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｓｅｃ－ブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｓｅｃ－ブチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリｔｅｒｔ－ブチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラｔｅｒｔ－ブチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタｔｅｒｔ－ブチルシクロペンタシロキサン、２，４，６－トリメチルシクロトリシロキサン、２，４，６，８－テトラメチルシクロテトラシロキサン、２，４，６，８，１０－ペンタメチルーシクロペンタシロキサン等が好ましい。

[0049] 環状のシロキサン化合物として、水素化シロキサン化合物を用いた場合、生成する重合体組成物の硬化速度が向上する場合や、耐熱性、耐クラック性、及び引張強度等機械的特性が向上する場合がある。

上記の鎖状及び環状のシロキサン化合物が混合したものを使用することも本発明の範囲に入る。

[0050] 成分（Ｄ）である周期表の第８族金属、第９族金属、又は第１０族金属の触媒としては、鉄、ルテニウム、オスミウム、コバルト、ロジウム、イリジウム、ニッケル、パラジウム、及び白金の金属触媒からなる群から選ばれる少なくとも１種を用いることができる。触媒活性の点から、好ましくは、ルテニウム触媒又は白金触媒であり、特に好ましくは白金触媒である。

具体的な白金触媒としては、四塩化白金、二塩化白金、四臭化白金、二臭化白金、四ヨウ化白金、二ヨウ化白金、六塩化白金酸、六臭化白金酸、六ヨウ化白金酸、六塩化白金酸六水和物、六臭化白金酸六水和物、六ヨウ化白金酸六水和物、トリメチルシクロペンタジエニル白金（ＩＶ）等が挙げられる。特に白金触媒としては、これらを還元剤によって還元した白金化合物、または、ビニル基を有するシラン化合物とシロキサン化合物と上記白金化合物から合成された白金の金属錯体が好ましい。

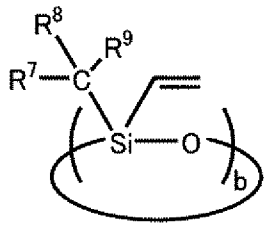
[0051] ビニル基を有するシラン化合物としては、一分子中に２個以上のビニル基

を有する化合物が触媒活性の点で好ましい。

具体的には、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジビニルジシロキサン、１，１，３，３－テトラビニル－１，３－ジメチルジシロキサン、上記の成分（Ａ）等のビニル基を有する環状のシロキサンを挙げることができる。

特に、２級若しくは３級の炭素原子が直結し、かつアルケニル基を有するケイ素原子を有する下記一般式（９）の環状シロキサンと、上記白金化合物とを混合し、還元した白金触媒が好ましい。

[0052] [化8]



(9)

（R^7、及びR^8は、それぞれ独立に、炭素数１～２０の炭化水素基を表す。なお、R^7、及びR^8は、互いに結合し、環状構造を形成してもよい。
R^9は、炭素数１～２０の炭化水素基又は水素原子を表す。ｂは、３以上の整数を表す。）

R^7、R^8及びR^9の炭素数１～２０の炭化水素基としては、一般式（１）のR^1における炭素数１～２０の炭化水素基と同じものを挙げることができる。

このような白金触媒を使用することにより、硬化速度が向上し、重合体組成物の耐クラック性及び機械的物性を向上させることができる。

[0053] ルテニウム触媒として、具体的には、ルテニウムカルボニル、トリルテニウムドデカカルボニル、三塩化ルテニウム、三臭化ルテニウム、三沃化ルテニウム、ルテニウムアセチルアセトナート、二塩化ルテニウムトリカルボニル、二塩化（１，５－シクロオクタジエニル）ルテニウム、二塩化ビス（トリフェニルホスフィン）ルテニウムジカルボニル、二水素化ビス（トリフェニルホスフィン）ルテニウムカルボニル、ビス（トリフェニルホスフィン）

ルテニウムトリカルボニル、二塩化ビス（トリフェニルホスフィン）ルテニウム、二塩化トリス（トリフェニルホスフィン）ルテニウム、二水素化ビス（トルフェニルホスフィン）ルテニウムカルボニル、塩化水素化トリス（トルフェニルホスフィン）ルテニウム、二水素化テトラキス（トリフェニルホスフィン）ルテニウム、（ビスエチレン）トリス（トルフェニルホスフィン）ルテニウム、ビス（トリフェニルホスフィン）ルテニウムトリカルボニル、二塩化トリス（トリフェニルホスフィン）ルテニウム、エチレントリス（トルフェニルホスフィン）ルテニウム、三水素化トリス（トリフェニルホスフィン）（トリメトキシシリル）ルテニウム、三水素化トリス（トリフェニルホスフィン）（ジメトキシフェニルシリル）ルテニウム、ビス（エチルシクロペンタジエニル）ルテニウム、（２，４－ジメチルペンタジエニル）（エチルシクロペンタジエニル）ルテニウム、（２，４－ジメチルペンタジエニル）（メチルシクロペンタジエニル）ルテニウムカルボニルビス（２－メチル－１，３－ペンタジエン）ルテニウム、（η４－１，３－シクロヘキサジエン）（η６－エチルベンゼン）ルテニウム、（η６－エチルベンゼン）（η４－５－エチル－１，３－シクロヘキサジエン）ルテニウム等が挙げられる。

なかでも、（２，４－ジメチルペンタジエニル）（エチルシクロペンタジエニル）ルテニウム、（２，４－ジメチルペンタジエニル）（メチルシクロペンタジエニル）ルテニウムカルボニルビス（２－メチル－１，３－ペンタジエン）ルテニウム、（η４－１，３－シクロヘキサジエン）（η６－エチルベンゼン）ルテニウム、（η６－エチルベンゼン）（η４－５－エチル－１，３－シクロヘキサジエン）ルテニウム等が好ましい。

[0054] 本発明の重合体組成物は、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を添加し、混合することにより製造することができる。

成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を添加し、混合する際に使用する装置は、当該技術分野で通常用いられるものであれば、適宜使用することができる。例え

ば、攪拌槽型反応器、自転公転回転式脱泡混合装置等を用いることができる。

本発明の重合体組成物を製造する方法は、特に限定されるものでは無いが、以下に示す製造方法を使用することができる。

成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を混合する方法は、あらゆる混合方法を使用することができる。例えば、（１）成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を順に添加し、混合する方法、（２）成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、これに成分（Ｄ）、及び成分（Ｂ）を順に添加し、混合する方法、（３）成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させ得られる重合体、成分（Ｂ）、及び成分（Ｄ）を同時に混合する方法等が挙げられる。

成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を添加、混合する際の条件については、特に限定されるものではないが、以下に示す条件を使用することができる。

[0055] 成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応物と、成分（Ｂ）のそれ自身を反応溶媒とする、すなわち、無溶媒下で行ってよい。また、不活性溶媒を添加することもできる。

使用できる反応溶媒としては、当該技術分野で使用されるものであれば特に限定されるものでなく、例えば、ｎ－ペンタン、ｉ－ペンタン、ｎ－ヘキサン、シクロヘキサン、ｎ－ヘプタン、ｎ－デカン等の飽和炭化水素類；トルエン、キシレン、デセン－１等の不飽和炭化水素類；ジエチルエーテル、ジプロピルエーテル、ｔｅｒｔ．－ブチルメチルエーテル、ジブチルエーテル、シクロペンチルメチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類；メタノール、エタノール、イソプロパノール、ｎ－ブタノール、ｓｅｃ－ブタノール、ｔｅｒｔ．－ブタノール、２－エチルヘキサノール等のアルコール；等を使用することができる。また、これらの混合溶媒も使用することができる。

混合の際の反応温度については、通常、工業的に使用されている温度である、－１００～２００℃の範囲が好ましく、特に好ましくは－８５～１５０

℃の範囲である。

混合の圧力条件は、加圧下、常圧下、減圧下のいずれであってもよい。

[0056] 成分（Ａ）に対する成分（Ｂ）、及び成分（Ｄ）の量論比には特に制限は無いが、通常、成分（Ａ）中のＳｉに結合したビニル基等の不飽和炭素結合の含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｂ）のＳｉに結合した水素原子含有量は、０．０１～１０００ｍｏｌが好ましく、特に好ましくは０．１～１００ｍｏｌの範囲である。この範囲を外れると、硬化速度が低下したり、生成する重合体組成物膜の機械的強度の低下や、重合体組成物にクラックや剥離が発生する場合がある。

成分（Ａ）中のＳｉに結合したビニル基等の不飽和炭素結合の含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｄ）の金属含有量は、０．００００１～１０００ｍｍｏｌが好ましく、特に好ましくは０．０００１～１０ｍｍｏｌの範囲である。この範囲を外れると、硬化速度が低下し、生成する重合体組成物の生成が困難となり、膜が形成されなかったり、重合体組成物が着色する場合がある。

[0057] 製造した重合体組成物は、そのまま用いてもよいが、ガラスフィルター、焼結多孔体等を用いた濾過、常圧若しくは減圧蒸留、又はシリカ、アルミナ、高分子ゲルを用いたカラム分離等の精製手段を用いて精製することもできる。この際、必要に応じて、これらの手段を組み合わせて使用してもよい。

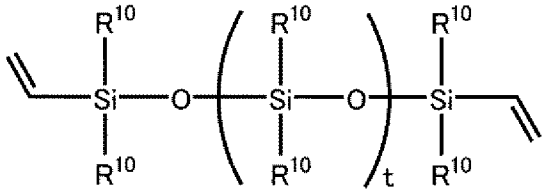
本発明の重合体組成物は、熱もしくは、光を照射することにより硬化し、硬化物とすることができる。

硬化する場合の条件は、特に限定されるものでは無いが、硬化温度については、通常、工業的に使用されている温度である、－１００～２００℃の範囲が好ましく、特に好ましくは－８５～１５０℃の範囲である。

硬化の圧力条件は、加圧下、常圧下、減圧下のいずれであっても可能である。

[0058] 硬化の際に機械特性、特に剛性、ヤング率、引張強度等を向上させるために、下記一般式（１０）の末端ビニルを有するシロキサンを添加したり、ゼオライトやシリカ粒子を添加することも本発明の範囲に入る。

[化9]



(10)

（R^{10}は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表す。R^{10}同志は、同一でも異なっても良い。ｔは１以上の整数を表す。）

R^{10}の例としては、メチル、エチル、イソブチル、メトキシ、エトキシ、ｎ－プロポキシ、イソプロポキシ、ｎ－ブトキシ、ｓｅｃ．－ブトキシ、ｔｅｒｔ．－ブトキシ、トリメチルシラノキシ、ｔｅｒｔ．－ブチルジメチルシラノキシ等を挙げることができる。

硬化の際、もしくは硬化後に、屈折率を高める為に、第４族金属の酸素原子含有の有機化合物を添加することも本発明の範囲に入る。

[0059] 第４族金属の酸素原子含有の有機化合物としては、下記一般式（１１）で表される化合物であることが好ましい。

[化10]

$$[O_qM_u(OR^{11})_rX_s]_y \qquad (11)$$

（M_Uは、Ｔｉ、Ｚｒ、又はＨｆであり、R^{11}は、炭素数１～２０の炭化水素基を表す。Ｘは、フッ素、塩素、臭素、又は沃素を表す。ｑ、ｕ、ｒ及びｓ、それぞれｑ≧０、ｒ＞０、ｕ≧１、及びｓ≧０であり、Ｔｉ、Ｚｒ、及びＨｆの原子価と相容れる数を表す。ｙは整数を表す。）

一般式（１１）の化合物としては、０≦ｑ≦１、１≦ｕ≦２、及び１≦ｒ≦６であるような、Ｔｉ、Ｚｒ、又はＨｆの酸素原子含有の有機化合物であることが望ましい。

R^{11}は炭素数１～２０の炭化水素基であり、好ましくは炭素数１～１０の炭化水素基である。該炭化水素基としては、直鎖又は分岐鎖のアルキル基、シクロアルキル基、アリールアルキル基、アリール基、アルキルアリール基

などを挙げることができる。

[0060] 一般式（１１）の具体例としては、チタンテトラメトキシド、チタンテトラエトキシド、チタンテトラーｎープロポキシド、チタンテトラーｉープロポキシド、チタンテトラーｎーブトキシド、チタンテトラーｉーブトキシド、テトラ（ｎーノニル）チタネート、テトラ（２ーエチルヘキシル）チタネート、テトラクレジルチタネート、ヘキサーｉープロポキシジチタネートなどのアルコシキチタン化合物；テトラクロロチタン等のハロゲン化チタン化合物；テトラクロロジルコニウム、酸化ジクロロジルコニウム等のハロゲン化ジルコニウム化合物；テトラエトキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム等のアルコシキジルコニウム化合物；テトラクロロハフニウム等のハロゲン化ハフニウム化合物；テトラエトキシハフニウム、テトラブトキシハフニウム等のアルコシキハフニウム化合物；等が挙げられる。

いくつかの異なる炭化水素基を有する第４族金属の酸素原子含有の有機化合物の使用も本発明の範囲に入る。

[0061] これら第４族金属の酸素原子含有の有機化合物は、単独で用いてもよく、また２種以上を混合あるいは反応させてから使用することもできる。

また、成分（Ｃ）の周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属又は第１４族の有機金属化合物やメタロキサン化合物と反応したり、錯体化したりすることが可能な、水、アルコール類、有機シラノール類、有機ケイ素化合物等の化合物を添加することも本発明の範囲に入る。

[0062] 添加できるアルコール類としては、１～１８個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖の脂肪族アルコール、脂環式アルコール又は芳香族アルコールである。

アルコール類の例としては、メタノール、エタノール、ｎープロパノール、ｉープロパノール、ｎーブタノール、ｉｓｏーブタノール、ｓｅｃーブタノール、ｔーブタノール、ｎーヘキサノール、２ーエチルヘキサノール、ｎーオクタノール、ｉーオクタノール、ｎーステアリルアルコール、シクロペンタノール、シクロヘキサノール、エチレングリコールなどが挙げられる。

更に、ベンジルアルコール、フェノール類として、フェノール、クレゾール、キシレノール、ハイドロキノンなどを例示することができる。

[0063] また、添加できる有機シラノール類としては、少なくとも１個の水酸基を有し、かつ有機基は１～１２個の炭素原子、好ましくは１～６個の炭素原子を有する、アルキル基、シクロアルキル基、アリールアルキル基、アリール基、アルキルアリール基を有する化合物等から選ばれる。

例えば、トリメチルシラノール、トリエチルシラノール、トリフェニルシラノール、ｔｅｒｔ．－ブチルジメチルシラノール、ビニルジメチルシラノールなどを挙げることができる。

[0064] 添加できる有機ケイ素化合物としては、下記一般式（１２）で表される化合物が好ましい。

[化11]

$$[O_kSi_v(OR^{12})_wR^{13}_z]_x \qquad (12)$$

（R^{12}、及びR^{13}は、それぞれ独立に、炭素数１～２０の炭化水素基を表す。ｋ、ｖ、ｗ、及びｚは、ｋ≧０、ｖ＞０、ｗ≧１、及びｚ≧０であり、Ｓｉの原子価と相容れる数を表す。ｘは整数を表す。）

R^{12}、及びR^{13}は、炭素数１～２０の炭化水素基であり、好ましくは炭素数１～１０の炭化水素基である。該炭化水素基としては、直鎖又は分岐鎖の、アルキル基、シクロアルキル基、アリールアルキル基、アリール基、アルキルアリール基などを挙げることができる。

[0065] 一般式（１２）の具体例としては、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラ－ｎ－プロポキシシラン、テトラ－ｉ－プロポキシシラン、テトラ－ｎ－ブトキシシラン、テトラ－ｉ－ペントキシシラン、テトラ－ｎ－ヘキソキシシラン、テトラフェノキシシラン、テトラキス（２－エチルヘキソキシ）シラン、テトラキス（２－エチルブトキシ）シラン、テトラキス（２－メトキシエトキシ）シラン、メチルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、ｎ－ブチルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシ

シラン、ビニルトリメトキシシラン、クロロメチ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、４－クロロフェニルトリメトキシシラン、トリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、ｎ－プロピルトリエトキシシラン、ｎ－ブチルトリエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン等が挙げられる。

[0066] また、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシシラン、エチルトリーｉ－プロポキシシラン、ビニルトリーｉ－プロポキシシラン、ｉ－ペンチルトリーｎ－ブトキシシラン、メチルトリーｉ－ペントキシシラン、エチルトリーｉ－ペントキシシラン，メチルトリーｎ－ヘキソキシシラン、フェニルトリーｉ－ペントキシシラン、ｎ－プロピルトリメトキシシラン、ｉ－プロピルトリメトキシシラン、ｉ－ブチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、メチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、メチルドデシルジエトキシシラン、メチルオクタデシルジエトキシシラン、メチルフェニルジエトキシシラン、メチルジエトキシシラン、ジベンジルジエトキシシシラン、ジエトキシシラン、ジメチルジーｎ－ブトキシシラン等が挙げられる。

[0067] また、ジメチルジーｉ－ペントキシシラン、ジエチルジーｉ－ペントキシシラン、ジ－ｉ－ブチルジーｉ－ペントキシシラン、ジフェニルジーｉ－ペントキシシラン、ジフェニルジーｎ－オクトキシシラン、ジイソブチルジメトキシシラン、トリメチルメトキシシラン、トリメチルエトキシシラン、ジメチルエトキシシラン、トリメチルーｉ－プロポキシシラン、トリメチルーｎ－プロポキシシラン、トリメチルーｔ－ブトキシシラン、トリメチルーｉ－ブトキシシラン、トリメチルーｎ－ブトキシシラン、トリメチルーｎ－ペントキシシラン、トリメチルフェノキシシランなどのアルコキシシランもしくはアリーロキシシラン；ジクロロジエトキシシラン、ジクロロジフェノキシシラン、トリブロモエトキシシランなどのハロアルコキシシラン；ハロア

リーロキシシラン；などが挙げられる。

[0068] また、イソプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、トリイソプロピルメトキシシラン、イソプロピルメチルジメトキシシラン、イソプロピルエチルジメトキシシラン、イソプロピルフェニルジメトキシシラン、イソプロピルジメチルメトキシシラン、イソプロピルジエチルメトキシシラン、イソプロピルジフェニルメトキシシラン、イソプロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジエトキシシラン、トリイソプロピルエトキシシラン、イソプロピルメチルジエトキシシラン、イソプロピルエチルジエトキシシラン、イソプロピルフェニルジエトキシシラン、イソプロピルジメチルエトキシシラン、イソプロピルジエチルエトキシシラン、イソプロピルジフェニルエトキシシラン、

ｓｅｃ－ブチルトリメトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルジメトキシシラン、トリｓｅｃ－ブチルメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルメチルジメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルエチルジメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルフェニルジメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジメチルメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジエチルメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジフェニルメトキシシランなどが挙げられる。

[0069] また、ｓｅｃ－ブチルトリエトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルジエトキシシラン、トリｓｅｃ－ブチルエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルメチルジエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルエチルジエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルフェニルジエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジメチルエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジエチルエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジフェニルエトキシシラン、シクロペンチルトリメトキシシラン、ジシクロペンチルジメトキシシラン、トリシクロペンチルメトキシシラン、シクロペンチルメチルジメトキシシラン、シクロペンチルエチルジメトキシシラン、シクロペンチルフェニルジメトキシシラン、シクロペンチルジメチルメトキシシラン、シクロペンチルジエチルメトキシシラン、シクロペンチルジフェニルメトキシシランなどが挙げられる。

[0070] また、シクロペンチルトリエトキシシラン、ジシクロペンチルジエトキシシラン、トリシクロペンチルエトキシシラン、シクロペンチルメチルジエトキシシラン、シクロペンチルエチルジエトキシシラン、シクロペンチルフェニルジエトキシシラン、シクロペンチルジメチルエトキシシラン、シクロペンチルジエチルエトキシシラン、シクロペンチルジフェニルエトキシシラン、シクロペンタジエニルトリメトキシシラン、ジシクロペンタジエニルジメトキシシラン、トリシクロペンタジエニルメトキシシラン、シクロペンタジエニルメチルジメトキシシラン、シクロペンタジエニルエチルジメトキシシラン、シクロペンタジエニルフェニルジメトキシシラン、シクロペンタジエニルジメチルメトキシシラン、シクロペンタジエニルジエチルメトキシシラン、シクロペンタジエニルジフェニルメトキシシランなどが挙げられる。

[0071] また、シクロペンタジエニルトリエトキシシラン、ジシクロペンタジエニルジエトキシシラン、トリシクロペンタジエニルエトキシシラン、シクロペンタジエニルメチルジエトキシシラン、シクロペンタジエニルエチルジエトキシシラン、シクロペンタジエニルフェニルジエトキシシラン、シクロペンタジエニルジメチルエトキシシラン、シクロペンタジエニルジエチルエトキシシラン、シクロペンタジエニルジフェニルエトキシシラン、シクロヘキシルトリメトキシシラン、ジシクロヘキシルジメトキシシラン、トリシクロヘキシルメトキシシラン、シクロヘキシルメチルジメトキシシラン、シクロヘキシルエチルジメトキシシラン、シクロヘキシルフェニルジメトキシシラン、シクロヘキシルジメチルメトキシシラン、シクロヘキシルジエチルメトキシシラン、シクロヘキシルジフェニルメトキシシラン等が挙げられる。

[0072] また、シクロヘキシルトリエトキシシラン、ジシクロヘキシルジエトキシシラン、トリシクロヘキシルエトキシシラン、シクロヘキシルメチルジエトキシシラン、シクロヘキシルエチルジエトキシシラン、シクロヘキシルフェニルジエトキシシラン、シクロヘキシルジメチルエトキシシラン、シクロヘキシルジエチルエトキシシラン、シクロヘキシルジフェニルエトキシシラン、シクロヘキセニルトリメトキシシラン、ジシクロヘキセニルジメトキシシ

ラン、トリシクロヘキセニルメトキシシラン、シクロヘキセニルメチルジメトキシシラン、シクロヘキセニルエチルジメトキシシラン、シクロヘキセニルフェニルジメトキシシラン、シクロヘキセニルジメチルメトキシシラン、シクロヘキセニルジエチルメトキシシラン、シクロヘキセニルジフェニルメトキシシラン等が挙げられる。

[0073] また、シクロヘキセニルトリエトキシシラン、ジシクロヘキセニルジエトキシシラン、トリシクロヘキセニルエトキシシラン、シクロヘキセニルメチルジエトキシシラン、シクロヘキセニルエチルジエトキシシラン、シクロヘキセニルフェニルジエトキシシラン、シクロヘキセニルジメチルエトキシシラン、シクロヘキセニルジエチルエトキシシラン、シクロヘキセニルジフェニルエトキシシラン等が挙げられる。

[0074] また、イソプロピルビニルジメトキシシラン、イソプロピルビニルジエトキシシラン、イソプロピルビニルジｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ジイソプロピルビニルメトキシシラン、ジイソプロピルビニルエトキシシラン、ジイソプロピルビニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルジビニルメトキシシラン、イソプロピルジビニルエトキシシラン、イソプロピルジビニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルビニルメチルメトキシシラン、イソプロピルビニルメチルエトキシシラン、イソプロピルビニルメチルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルビニルエチルメトキシシラン、イソプロピルビニルエチルエトキシシラン、イソプロピルビニルエチルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルフェニルジメトキシシラン、イソプロピルフェニルジエトキシシラン、イソプロピルフェニルジｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ジイソプロピルフェニルメトキシシラン、ジイソプロピルフェニルエトキシシラン、ジイソプロピルフェニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルジフェニルメトキシシラン、イソプロピルジフェニルエトキシシラン、イソプロピルジフェニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプロピルフェニルメチルメトキシシラン、イソプロピルフェニルメチルジエトキシシラン、イソプロピルフェニルメチルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、イソプ

ロピルフェニルエチルメトキシシラン、イソプロピルフェニルエチルジエトキシシラン、イソプロピルフェニルエチルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルビニルジメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルビニルジエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルビニルジｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルビニルメトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルビニルエトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルビニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジビニルメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジビニルエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジビニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルフェニルジメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルフェニルジエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルフェニルジｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルフェニルメトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルフェニルエトキシシラン、ジｓｅｃ－ブチルフェニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジフェニルメトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジフェニルエトキシシラン、ｓｅｃ－ブチルジフェニルｔｅｒｔ．－ブトキシシラン等のアルコキシシラン；アリーロキシシランジクロロジエトキシシラン、ジクロロジフェノキシシラン、トリブロモエトキシシランなどのハロアルコキシシラン；ハロアリーロキシシラン；等の有機シラン化合物が挙げられる。

[0075] また、ヘキサメトキシジシロキサン、オクタメトキシトリシロキサン、デカメトキシテトラシロキサン、ヘキサエトキシジシロキサン、オクタエトキシトリシロキサン、デカエトキシテトラシロキサン等のポリアルコキシポリシロキサン；１，３－ジメチル－１，１，３，３－テトラメトキシジシロキサン、１，３，５－トリメチル－１，１，３，５，５－ペンタメトキシジシロキサン、１，３，５，７－テトラメチル－１，１，３，５，７，７－ヘキサメトキシジシロキサン等のポリアルキルポリアルコキシポリシロキサン；等が例示できる。

これらのアルコール類、有機シラノール類、及び有機ケイ素化合物は、単独又は２種以上の混合物として使用できる。

[0076] 本発明の重合体組成物を硬化して得られる硬化物は、屈折率、ガスバリア

性、機械的強度、耐ＵＶ性、耐熱性、及び熱伝導性が良好で、これら全ての特性を有する材料となり得る。これらの特性は、従来から提案されているメチル基置換シロキサン系やフェニル基置換シロキサン系では、十分には達成できない水準のものである。

本発明の硬化物の内、殊にＳｉ－Ｏ－Ａｌ、又はＳｉ－Ｏ－Ｚｎで示される構造を有する硬化物では、上記のガスバリア性、機械的特性、耐ＵＶ性、耐熱性、及び熱伝導性が、良好である。

[0077] Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づく１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、成分（Ａ）と成分（Ｂ）の硬化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応物と成分（Ｂ）の硬化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させて得られた重合体を用いて得られた硬化物や、これと同様の赤外吸収、^{29}Ｓｉ－ＮＭＲ、及び^{27}Ａｌ－ＮＭＲスペクトルを有する硬化物は、ガスバリア性、機械的特性、耐ＵＶ性、耐熱性、及び熱伝導性に優れることから、殊に好ましい。

[0078] 上記硬化物は封止材として使用することができる。

例えば、ＬＥＤチップ、ＬＥＤデバイス、半導体、パワー半導体等を保護及び封止するのに好適に使用できる。

また、樹脂部材に本発明の重合体組成物を塗布することにより、樹脂部材のガスバリア性を向上させることができる。該樹脂部材とは、樹脂基板や樹脂フィルム等が挙げられる。

本発明により得られた封止材、及び保護膜は、ＦＰＤ（Flat Panel Display）デバイスや半導体デバイスとして用いることができる。ガスバリア性の向上した樹脂部材は、ＦＰＤデバイスとして用いることができる。

ＬＥＤや半導体を封止する際の成形方法については、特に限定されないが、ポッティング（Potting）成形、トランスファー成形、コンプレッション成形等を用いることができる。

実施例

[0079] 以下に実施例を示すが、本発明はこれらの実施例に限定して解釈されるものではない。

各種の評価、測定は、以下のように行った。

膜厚測定は、アルバック社製の触針式表面形状測定器（デックタック（Ｄｅｋｔａｋ）６Ｍ）を用いて、５箇所で、各３回測定を行い、その平均値とした。

粘度測定は、芝浦システム社製のＢ型回転粘度計（ビスメトロン粘度計）を用いて行った。

[0080] 屈折率は、ＪＡＳＣＯ社製のＭＥＬ－３０Ｓ（自動波長スキャンエリプソメータ）又は、アタゴ社製の多波長アッベ屈折計（ＤＲ－Ｍ４（波長５８９ｎｍ））により測定した。

全光線透過率は、ＪＩＳ　Ｋ　７３６１－１法に準拠して測定した。光線透過率の波長依存性については、日本分光社製の紫外・可視分光光度計（Ｖ－５３０（測定波長領域２５０～８５０ｎｍ））により測定した。

[0081] ＵＶ照射試験は、岩崎電気社製のアイスーパーＵＶテスターＳＵＶ－Ｆ１を用い、６８ｍＷ／ｃｍ２（波長３００～４００ｎｍ）、１２０時間の条件で行った。

ＵＶ照射加速試験は、ハリソン東芝ライティング社製の、光化学用水銀ランプ（Ｈ４００－Ｐ（４００Ｗ））を１時間照射することで行った。

ＵＶ－ＬＥＤチップ試験は、２．１Ｗ、ピーク波長３７５ｎｍのＵＶ－ＬＥＤチップ光源を用いて、１０００時間照射することで行った。

[0082] デュロメータ硬度は、デュロメータ硬度計タイプＡ又はタイプＤを用い、ＪＩＳ７２１５に基いて測定した。

熱伝導率については、密度を水中置換法により測定し、比熱をパーキンエルマー社製のＰｙｒｉｓ　Ｄｉａｍｏｎｄ　ＤＳＣにより測定し、熱拡散率を京都電子工業社製のレーザーフラッシュ法測定装置（ＬＦＡ－５０２）により測定し、算出した。

酸素透過性は、ＪＩＳ　Ｋ　７１２６－１法に準拠して測定し、水透過性は、ＪＩＳ　Ｋ　７１２９Ａ法に準拠して測定した。

[0083] ^{29}Ｓｉ－ＮＭＲ、^{27}Ａｌ－ＮＭＲ、^{29}ＳｉのＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲ（Ｃｒｏｓｓ　Ｐｏｌａｒｉｚａｔｉｏｎ／Ｍａｇｉｃ　Ａｎｇｌｅ　Ｓｐｉｎｎｉｎｇ　Ｎｕｃｌｅａｒ　Ｍａｇｎｅｔｉｃ　Ｒｅｓｏｎａｎｃｅ）、^{29}ＳｉのＭＡＳ　ＮＭＲ（Ｍａｇｉｃ　Ａｎｇｌｅ　Ｓｐｉｎｎｉｎｇ　Ｎｕｃｌｅａｒ　Ｍａｇｎｅｔｉｃ　Ｒｅｓｏｎａｎｃｅ）、及び^{27}ＡｌのＭＡＳ　ＮＭＲは、Ｖａｒｉａｎ社製のＶＮＭＲＳ－４００で測定した。

[0084] ポッティング成形は、武蔵エンジニアリング社製、容積計量式デジタル制御ディスペンサー（ＭＥＡＳＵＲＩＮＧ　ＭＡＳＴＥＲ　ＭＰＰ－１）と次世代標準卓上型ロボット（ＳＨＯＴＭＡＳＴＥＲ　２００ＤＳ）を用いて行った。

引張強度及び破断伸びは、島津製作所社製の引張試験機（ＡＧ２０００Ｂ）を用いて、縦１２０ｍｍ、横２５ｍｍ、及び厚さ２．０ｍｍの短冊状試験片を、ロードセル１０００Ｎ、チャック距離１０ｍｍ、引張速度５ｍｍ／ｍｉｎ．、２３℃の条件で測定した。

[0085] 実施例１

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

攪拌装置と還流管を備えた２Ｌ（リットル）の四つ口フラスコに、水７５６ｇ（４２．０ｍｏｌ）とトルエン３０２ｇ（３．２８ｍｏｌ）を仕込み、７５℃とした後、滴下濾斗より、ビニルメチルジクロロシラン２９６．２ｇ（２．１０ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン１３５．５ｇ（１．０５ｍｏｌ）とメチルトリクロロシラン５２．３ｇ（０．３５ｍｏｌ）の混合物を６０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、１時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、重合体２６９ｇを得た。

[0086] 得られた重合体７０．８ｇを窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた１

Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン１３７．５ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液にトリエチルアルミニウムの５０重量％のヘキサン溶液９２．４ｇ（Ａｌ含有量０．４０５ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で３時間攪拌した。室温に冷却した後、水１４．６ｇ（０．８１０ｍｏｌ）と２－ブタノール３０．０ｇ（０．４０５ｍｏｌ）を滴下濾斗より３０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体１０３ｇを得た。

[0087] ［成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成］

攪拌装置と還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに、水６４８ｇ（３６．０ｍｏｌ）とトルエン２５９ｇ（２．８１ｍｏｌ）を仕込み、水冷して内温を４０℃以下としつつ、滴下濾斗より、メチルジクロシラン１７２．６ｇ（１．５０ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン１９３．６ｇ（１．５０ｍｏｌ）の混合物を滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、重合体１９０ｇを得て、これを成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンとした。

[0088] ［ビニル基と２級の炭素原子が直結したケイ素原子を有する環状のシロキサンと白金とからなる金属触媒の合成］

窒素気流下、攪拌装置を備えた５０ｍｌのシュレンク管反応器に、日本特開２００５－５１１９２号公報に記載の方法に従って合成した２，４，６－トリビニル－２，４，６－トリイソプロピルシクロトリシロキサン１７．１ｇ（５０ｍｍｏｌ）、エタノール１６．４ｍｌ、及び塩化白金酸六水和物２．５９ｇ（５．０ｍｍｏｌ）を仕込み、室温で攪拌し、均一溶液とした。この均一溶液に炭酸水素ナトリウム４．２０ｇ（５０ｍｍｏｌ）を１０分間で加えた後、７０℃で６時間攪拌した。得られた懸濁液をガラスフィルターで

濾過することにより、灰色の残渣を濾別し、透明黄色の白金触媒溶液を得た。得られた透明黄色の白金触媒溶液の白金の濃度は、５７．９ｍｇ／ｇ（０．２９７ｍｍｏｌ／ｇ）であった。

[0089] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇ（Ｓｉ含有量３８．５ｍｍｏｌ、ビニル含有量２３．１ｍｍｏｌ）に、上記で得られた成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン３．０９ｇ（Ｓｉ含有量４６．１ｍｍｏｌ、Ｈ含有量２３．１ｍｍｏｌ）を加え、上記で合成した白金触媒溶液の０．００２８ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で、内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0090] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

縦５０ｍｍ、横５０ｍｍ、及び厚さ２．０ｍｍのガラス製鋳型に、上記の重合体組成物を流し込み、１５０℃で、２分間の条件で加熱硬化させ、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７０であった。また、その全光線透過率は、９１．５％であり、ＵＶ照射試験後の全光線透過率も９１．５％を維持した。光線透過率の波長依存性は、測定波長範囲内で９７．０％以上の光線透過率であり、ＵＶ照射試験後も９７．０％以上を維持した。すなわち、耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0091] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ｄは、７０．５であり、１

５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も７０．５を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１０．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－１１０ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌにＡｌに帰属されるピークが観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0092] 実施例２

実施例１の重合体組成物の調製におけるビニルメチルジクロロシラン２９６．２ｇ（２．１０ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン１３５．５ｇ（１．０５ｍｏｌ）とメチルトリクロロシラン５２．３ｇ（０．３５ｍｏｌ）の混合物に変えて、ビニルメチルジクロロシラン１４８．１ｇ（１．０５ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン２６４．６ｇ（２．０５ｍｏｌ）とメチルトリクロロシラン５２．３ｇ（０．３５ｍｏｌ）としたこと以外は、実施例１と同様に、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成を行い、重合体組成物の調製を行った。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ３分間であった。

[0093] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、３分間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７１であっ

た。また、その全光線透過率は、９１．７％であり、ＵＶ照射試験後の全光線透過率も９１．７％を維持した。光線透過率の波長依存性は、測定波長範囲内で９７．０％以上の光線透過率であり、ＵＶ照射試験後も９７．０％以上を維持した。すなわち、耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0094] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ｄは、３０．３であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後は、３０．４であった。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１２．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－１１０ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌＩに帰属されるピークが観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0095] 比較例１

実施例１の重合体組成物の調製において使用したトリエチルアルミニウムの２０重量％のヘキサン溶液を加えなかったこと以外は、実施例１と同様に成分（Ｃ）を含まないポリシロキサン重合体の合成を行い、重合体組成物の調製を行った。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

[0096] 得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．４３１であった。また、その全光線透過率は、９０．７％であり、ＵＶ照射試験後の全光線透過率は、７６．８％に低下した。更に光線透過率の波長依存性は、測定波長範囲内で９７．０％以上の光線透過率であったが、ＵＶ照射試験後は８９．２％以下に低下した。すなわち、ＵＶ照射により著しく重合体組成物が劣化した。すなわち、耐ＵＶ性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ｄは、６０．８であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後には５５．９に低下した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックと割れが発生し、黄色に変色した。すなわち、耐熱性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過性は、１５８．３ｇ／ｍ^2・ｄａｙであり、実施例１及び実施例２に比べて高く、ガスバリア性が低いことが判明した。

[0097] 比較例２

実施例１の重合体組成物の合成において使用したトリエチルアルミニウムの５０重量％のヘキサン溶液９２．４ｇ（ＡＩ含有量０．４０５ｍｏｌ）に変えて、アルミニウムイソプロポキシド８２．７ｇ（ＡＩ含有量０．４０５ｍｏｌ）とヘキサン８２．７ｇとしたこと以外は、実施例１と同様にＡＩ含有重合体の合成を行い、重合体組成物の調製を行った。　また、重合体組成物の硬化板状サンプルを作製した。

重合体組成物は、白濁した粘稠スラリー状であり、不均一であった。重合体組成物の硬化板状サンプルは、白濁不透明で、その表面は凹凸があり、平坦ではなかった。

[0098] 比較例３

実施例１の重合体組成物の合成において使用したトリエチルアルミニウムの５０重量％のヘキサン溶液９２．４ｇ（ＡＩ含有量０．４０５ｍｏｌ）に変えて、アルミニウムｓｅｃ．－ブロキシド９９．８ｇ（ＡＩ含有量０．４０５ｍｏｌ）とヘキサン９９．８ｇとしたこと以外は、実施例１と同様にＡＩ含有重合体の合成を行い、重合体組成物の調製を行った。また、重合体組成物の硬化板状サンプルを作製した。

実施例１と同様に、上記の重合体組成物の硬化板状サンプルを作製したところ、その表面は平坦かつ平滑であったが、表面が白濁し、不透明であった。

[0099] 実施例３

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例１の重合体組成物の合成におけるビニルメチルジクロロシラン２９６．２ｇ（２．１０ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン１３５．５ｇ（１．０５ｍｏｌ）とメチルトリクロロシラン５２．３ｇ（０．３５ｍｏｌ）の混合物に変えて、ビニルメチルジクロロシラン２８２．２ｇ（２．００ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン２０６．４ｇ（１．６０ｍｏｌ）とメチルトリクロロシラン５９．８ｇ（０．４０ｍｏｌ）としたこと以外は、実施例１と同様に成分（Ａ）（粘度４５．６ｍＰａ・ｓ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体（粘度１８．９Ｐａ・ｓ）の合成を行った。

[0100] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン３．０５ｇを加え、実施例１で合成した成分（Ｄ）の、白金触媒溶液の０．００２８ｇを添加し、実施例１と同様にして真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0101] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、３分間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５３０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．３％、波長５６５ｎｍで９７．３％、波長７５０ｎｍで９７．３％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で９７．３％を維持した。

また、同様に、ＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．３％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0102] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ｄは、３７．０あり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後は、３７．０であった。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１２．９ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

更にポッティング成形テストを、重合体組成物の吐出速度０．００５ｍｌ／ｓｅｃ．、成形温度１５０℃、硬化時間５分間の条件で行い、無色透明な半径１．３ｍｍの高さ／半径比＝０．８７のレンズの成形が可能であること確認した。

[0103] 実施例４

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

攪拌装置と還流管を備えた３Ｌの四つ口フラスコに、水１０８０．０ｇ（６０．０ｍｏｌ）とトルエン４３２．０ｇ（４．６９ｍｏｌ）を仕込み、７５℃とした後、滴下濾斗より、ビニルメチルジクロロシラン３５２．７ｇ（２．５０ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン３２２．７ｇ（２．５０ｍｏｌ）の混合物を１２０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエ

ン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、粘度５．４ｍＰａ・ｓの重合体３７０．３ｇを得た。

[0104] 得られた重合体２０１．２ｇを窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３５８．４ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液にトリエチルアルミニウムの４５．１重量％のヘキサン溶液２９０．７ｇ（ＡＩ含有量１．１４８ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。室温に冷却した後、水３３．１ｇ（１．８３７ｍｏｌ）を２時間で添加した。その後、２－ブタノール８５．１ｇ（１．１４８ｍｏｌ）を滴下濾斗より３０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度１９．１Ｐａ・ｓのＡＩ含有重合体２４４．４ｇを得た。

[0105] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン３．００ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の０．００２８ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ，公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0106] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状

サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５５０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．１％、波長５６５ｎｍで９７．１％、波長７５０ｎｍで９７．１％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で９７．１％を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．１％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ｄは、２０．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も２０．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

[0107] 得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１０．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

更にポッティング成形テストを重合体組成物の吐出速度０．００５ｍｌ／ｓｅｃ．、成形温度１５０℃、硬化時間５分間の条件で行い、無色透明な半径１．３ｍｍの高さ／半径比＝０．８６のレンズの成形が可能であること確認した。

[0108] 実施例５

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例４の重合体組成物の合成におけるビニルメチルジクロロシラン２８２．１ｇ（２．００ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン３８７．２ｇ（３．００ｍｏｌ）の混合物に変えて、ビニルメチルジクロロシラン２８２．１ｇ（２．００ｍｏｌ）とジメチルジクロロシラン３８７．２ｇ（３．００ｍｏｌ）の混合物としたこと以外は、実施例４と同様に成分（Ａ）（粘度１５．４ｍＰａ・ｓ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体（粘度１８．０Ｐａ・ｓ）の合成を行った。

[0109] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．１５ｇを加え、実施例１で得られた成分（Ｄ）の、白金触媒溶液の０．００２５ｇを添加し、実施例４と同様にして真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ３分間であった。

[0110] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、３分間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５４０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９６．８％、波長５６５ｎｍで９６．８％、波長７５０ｎｍで９６．８％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で９６．８％を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で光線透過率９６．８％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、２５．０あり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後は、２５．０であった。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

[0111] 得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１３．７ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0112] 実施例６

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

攪拌装置と還流管を備えた３Ｌの四つ口フラスコに、水１０９０．０ｇ（６６．１ｍｏｌ）とトルエン４７６．０ｇ（５．１７ｍｏｌ）を仕込み、７５℃とした後、滴下濾斗より、ジメチルジクロロシラン４６２．０ｇ（３．５８ｍｏｌ）を６０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

その後、滴下濾斗より、ビニルメチルジクロロシラン２７２．３ｇ（１．９３ｍｏｌ）６０分間で滴下し、更に８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、成分（Ａ）の粘度が７．２ｍＰａ・ｓの重合体３５２．３ｇを得た。

[0113] 得られた重合体２０３．５ｇを窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３８０．１ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液にトリエチルアルミニウムの４５．１重量％のヘキサン溶液３００．１ｇ（Ａｌ含有量１．１８５ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。室温に冷却した後、水３４．１ｇ（１．８９６ｍｏｌ）を２時間で添加した。その後、２－ブタノール８７．８ｇ（１．１８５ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度１９．７Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体２７２．９ｇを得た。

[0114] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．９０ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ，公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0115] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．５％、波長５６５ｎｍで９７．５％、波長７５０ｎｍで９７．５％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で９７．５％を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．５％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0116] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、５１．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も５１．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１１．２ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0117] 実施例７

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の重合体２０３．５ｇを窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３８０．１ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液にトリエチルアルミニウムの４５．１重量％のヘキサン溶液３００．１ｇ（Ａｌ含有量１．１８５ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。水冷し

、冷却した後、２－ブタノール２６８．３ｇ（３．６２０ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が８７Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体２６８．１ｇを得た。

[0118] 得られたＡｌ重合体を^{29}Ｓｉ－ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．７ｐｐｍと－３５．４ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲのＳｉの－２０．３ｐｐｍと－３４．３ｐｐｍのピーク位置から各々１．４ｐｐｍと１．１ｐｐｍシフトしている。更に、本Ａｌ重合体を^{27}Ａｌ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１５ｃｍ$^{-1}$付近にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0119] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．９０ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0120] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．６％、波長５６５ｎｍで９７．６％、波長７５０ｎｍで９７．６％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で９７．６％を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．６％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0121] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、４５．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も４５．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１０．５ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0122] 実施例８

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例７で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体１５０．０ｇを窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた１Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３００．０ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液に、水冷しつつ、水１２．０ｇ（０．６７ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、室温で５時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が１００Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体１４７．１ｇを得た。

[0123] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．７５ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0124] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５５０であった。また、その全光線透過率は、９５．３％であり、ＵＶ照射試験後の全光線透過率も９５．３％を維持した。光線透過率の波長依存性は、測定波長範囲内で９７．０％以上の光線透過率であり、ＵＶ照射試験後も９５．３％以

上を維持した。すなわち、耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、６０．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も６０．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１０．３ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0125] 実施例９

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による、粘度１９．７Ｐａ・ｓのＡＩ含有重合体を合成した。

［成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成］

攪拌装置と還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに、水６４８ｇ（３６．０ｍｏｌ）とトルエン２５９ｇ（２．８１ｍｏｌ）を仕込み、内温を７５℃とし、滴下濾斗より、ジメチルジクロロシラン１９３．６ｇ（１．５０ｍｏｌ）を６０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

[0126] その後、冷却し、内温を４０℃に保ちつつ、メチルジクロシラン１７２．６ｇ（１．５０ｍｏｌ）を滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、粘度１２３ｍＰａ・ｓの重合体１６６．９ｇを得た。これを成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンとした。

[0127] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体５

．００ｇに、上記で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．９０ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0128] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７１であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．６％、波長５６５ｎｍで９７．６％、波長７５０ｎｍで９７．６％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９７．６％を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後においても光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．６％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0129] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、４９．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も４９．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１２．４ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0130] 比較例４

［成分（Ａ）の重合体の合成］

攪拌装置と還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに、水４３２．０ｇ（２４．０ｍｏｌ）とトルエン１７３．０ｇ（１．８８ｍｏｌ）を仕込み、７５℃とした後、滴下濾斗より、ビニルメチルジクロロシラン８４．６ｇ（０．６００ｍｏｌ）とジフェニルジクロロシラン３５４．５ｇ（１．４００ｍｏｌ）の混合物を１２０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、重合体２６６．７ｇを得た。

[0131] ［成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成］

攪拌装置と還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに、水５６２ｇ（３１．２ｍｏｌ）とトルエン２２５ｇ（２．４４ｍｏｌ）を仕込み、水冷して内温を４０℃以下としつつ、滴下濾斗より、ジフェニルジクロロシラン３２９．２ｇ（１．３００ｍｏｌ）とメチルジクロシラン１４９．６ｇ（１．３００ｍｏｌ）の混合物を６０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエ

ン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、重合体１９８．９ｇを得て、これを成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンとした。

[0132] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）５．００ｇに、上記で得られた成分（Ｂ）、の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．５０ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２６ｇ（成分（Ａ）と成分（Ｂ）との混合物の合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ５分間であった。

[0133] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、５分間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５６０であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで８６．６％、波長５６５ｎｍで８８．４％、波長７５０ｎｍで８８．７％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後は、波長３８０ｎｍで７５．４％、波長５６５ｎｍで８０．２％、波長７５０ｎｍで８０．９％の光線透過率となり、光線透過率が著しく低下した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、８８．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後は、８５．２であった。また

、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後に黄色に変色した。すなわち、耐熱性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、５０．６　ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0134] 比較例５

［成分（Ａ）の重合体の合成］

比較例４と同様にして成分（Ａ）の重合体を合成した。

［成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成］

比較例４の成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成においてジフェニルジクロロシラン３２９．２ｇ（１．３００ｍｏｌ）とメチルジクロシラン１４９．６ｇ（１．３００ｍｏｌ）の混合物に変えて、フェニルメチルジクロロシランｇ（１．３００ｍｏｌ）とメチルジクロシラン１４９．６ｇ（１．３００ｍｏｌ）の混合物としたこと以外は、比較例４と同様に、成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合成を行った。

[0135] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）の重合体５．００ｇに、上記で得られた成分（Ｂ）の水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．１５ｇを加え、実施例１で合成した成分（Ｄ）の、白金触媒溶液の０．００２０ｇを添加し、比較例４と同様にして真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ３分間であった。

[0136] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、３分間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平

坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５６５であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで８５．３％、波長５６５ｎｍで８７．１％、波長７５０ｎｍで８７．７％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後は、波長３８０ｎｍで７０．４％、波長５６５ｎｍで７８．５％、波長７５０ｎｍで７９．９％の光線透過率となり、光線透過率が著しく低下した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、５２．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後は、４９．８であった。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後に黄色に変色した。すなわち、耐熱性が低いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、４２．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0137] 実施例１０

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の重合体１６３．１ｇを、窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、トリメチルアルミニウムの１．０７ｍｏｌ／Ｌのヘキサン溶液８４１．６ｇ（Ａｌ含有量０．９０１ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。水冷し、冷却した後、２－ブタノール２０５．６ｇ（２．７７４ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が５．５Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体２６８．１ｇを得た。

[0138] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構

造を有するポリシロキサン３．３９ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２９ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し、白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0139] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５８９であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９２．３％、波長５６５ｎｍで９７．６％、波長７５０ｎｍで９８．２％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９２．３％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９２．３％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0140] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、５２．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も５２．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１２．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであっ

た。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0141] 実施例１１

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の重合体２０１．２ｇを、窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、トルエン２０１．２ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のトルエン溶液に、東ソー・ファインケム社製のアルミノキサントルエン溶液（ＴＭＡＯ－２１２トルエン溶液、Ａｌ濃度＝９．１重量％）７６．３ｇ（Ａｌ含有量０．２５７ｍｏｌ）を加え、内温９０．０℃で４時間攪拌した。水冷し、冷却した後、２－ブタノール５２．４ｇ（０．７０７ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、９０．０℃で、２時間攪拌した。

得られたトルエン溶液を減圧加熱し、トルエンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が１．１Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体１９０．２ｇを得た。

[0142] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン３．１６ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２８ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し、白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合

を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0143] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５４８であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９０．２％、波長５６５ｎｍで９６．９％、波長７５０ｎｍで９８．２％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９０．２％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９０．２％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0144] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、２３．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も２３．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１１．５ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－

Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0145] 実施例１２

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６において、添加する水３４．１ｇ（１．８９６ｍｏｌ）に変えて水１０．７ｇ（０．５９３ｍｏｌ）としたこと以外は、実施例６と同様にして、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が１９．５Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体を合成した。

[0146] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン１．６８ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２３ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し、白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0147] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５６９であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで８９．６％、波長５６５ｎｍで９６．９％、波長７５０ｎｍで９８．６％の光線透過率であり

、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で８９．６％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０ｎｍ～７５０ｎｍの領域で光線透過率８９．６％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0148] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、２１．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も２１．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１３．５ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－Ａｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0149] 実施例１３

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６において、添加する水３４．１ｇ（１．８９６ｍｏｌ）に変えて水５．３ｇ（０．２９７ｍｏｌ）としたこと以外は、実施例６と同様にして、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が１．２Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体を合成した。

[0150] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン１．６８ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒

溶液の、０．００２３ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0151] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５７１であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９０．４％、波長５６５ｎｍで９７．０％、波長７５０ｎｍで９７．９％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９０．４％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９０．４％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0152] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、３１．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も３１．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１０．３ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌにＡｌに帰属されるピークが観測された。また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0153] 実施例１４

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＺｎ含有重合体の合成］

実施例４と同様にして得た成分（Ａ）の重合体２０６．２ｇを、窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン２００．４ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液に、ジエチル亜鉛の１．０９ｍｏｌ／Ｌのヘキサン溶液６０１．５ｍｌ（Ｚｎ含有量０．６５６ｍｏｌ）を加え、室温で４時間攪拌した。水冷し、冷却した後、水１１．８ｇ（０．６５６ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、室温で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が０．５２Ｐａ・ｓのＺｎ含有重合体２８９．５ｇを得た。

[0154] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＺｎ含有重合体５．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン２．９０ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液の、０．００２７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２分間であった。

[0155] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５４４であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９７．６％、波長５６５ｎｍで９７．６％、波長７５０ｎｍで９７．６％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９７．６％を維持した。

[0156] また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９７．６％を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、８３．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も８３．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１３．８ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0157] 実施例１５

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の重合体３０１．０を、窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３２２．０ｇを加え、攪拌し溶解させた。この重合体のヘキサン溶液に、トリエチルアルミニウムの４９．０重量％のヘキサン溶液２２４．０ｇ（Ａｌ含

有量０．９６１ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。室温に冷却した後、２－ブタノール２１７．２ｇ（２．９３１ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が２．１９Ｐａ・ｓのＡＩ含有重合体２８７．４ｇを得た。

[0158] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体１０．０ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン６．２２ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（Ｐｔ＝５７．９ｍｇ／ｇ溶液）の、０．００５６ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し、白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２２秒であった。

[0159] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

縦１２０ｍｍ、横２５ｍｍ、及び厚さ２．０ｍｍのテフロン製鋳型に、上記の重合体組成物を流し込み、１５０℃で、１時間の条件で加熱硬化させ、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は１．７５ＭＰａ、破断伸びは、１０．９％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５００であった。また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９２．７％、波長

５６５ｎｍで９６．７％、波長７５０ｎｍで９７．４％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９２．７％以上を維持した。

[0160] また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９２．７％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、７８．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も７８．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、２４．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１３．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0161] 得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍと－３６．９ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、実施例６で得た成分（Ａ）のみと実施例１で得られた成分（Ｂ）を白金触媒下に硬化させたＡｌ成分を含まない（成分（Ｃ）を含まない）硬化物の^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲのＳｉの－２０．５ｐｐｍと－３５．９ｐｐｍのピーク位置から各々１．１ｐｐｍと１．０ｐｐｍシフトしている。

更に本硬化板状サンプルを^{27}Ａｌ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0162] 実施例１６

［成分（Ａ）の合成］

攪拌装置と還流管を備えた５Ｌの四つ口フラスコに、水１６２０．０ｇ（９０．０ｍｏｌ）とトルエン３９１．０ｇ（４．２０ｍｏｌ）を仕込み、７５℃とした後、滴下濾斗より、ジメチルジクロロシラン１７４２．３ｇ（１３．５０ｍｏｌ）を６０分間で滴下した。滴下終了後、８０℃で、２時間攪拌した。

その後、滴下濾斗より、ビニルメチルジクロロシランの２１１．６ｇ（１．５０ｍｏｌ）を６０分間で滴下し、更に８０℃で、２時間攪拌した。

得られた反応液を分液濾斗に入れ、分層して水層を除去した。更にトルエン層を水により、中性になるまで洗浄した。得られたトルエン層を減圧加熱し、トルエンと含有水を留去し、成分（Ａ）の粘度が０．２６４Ｐａ・ｓの重合体８３９．０ｇを得た。

[0163] ［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

得られた成分（Ａ）の１１０．３ｇを、窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、トリエチルアルミニウムの４９．０重量％のヘキサン溶液８６．３９ｇ（Ａｌ含有量０．３７１ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。室温に冷却した後、２．００ｇ（０．１１１ｍｏｌ）を１０分間で添加した。その後、２－ブタノール７５．６ｇ（１．０２０ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、次いで、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

[0164] 得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度が０．７５Ｐａ・ｓのＡｌ含有重合体１５３．７ｇを得た。

得られたＡｌ重合体を^{29}Ｓｉ－ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．５ｐｐｍと－３５．３ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲのＳｉの－２０．３ｐｐｍと－３４．３ｐｐｍのピーク位置から各々１．２ｐｐｍと１．０ｐｐｍシフトしている。更に本Ａｌ重合体を^{27}Ａｌ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみら

れた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１５ｃｍ－１付近にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ－１付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0165] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体１２．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン１．５４ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（５７．９ｍｇ／ｇ）の、０．００４７ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ１１秒であった。

[0166] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１５と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は１．５５ＭＰａ、破断伸びは、２０．９％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５００であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９３．１％、波長５６５ｎｍで９７．１％、波長７５０ｎｍで９７．８％の光線透過率であり、

ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９３．１％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９３．１％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、９１．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も９１．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、２５．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１１．７ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0167] 得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ ＣＰ／ＭＡＳ ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍと－３７．０ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、上記の成分（Ａ）のみと実施例１で得られた成分（Ｂ）を白金触媒下に硬化させたＡｌ成分を含まない（成分（Ｃ）を含まない）硬化物の^{29}Ｓｉ ＣＰ／ＭＡＳ ＮＭＲのＳｉの－２０．５ｐｐｍと－３５．９ｐｐｍのピーク位置から各々１．１ｐｐｍと１．１ｐｐｍシフトしている。更に本硬化板状サンプルを^{27}Ａｌ ＭＡＳ ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0168] 実施例１７

［重合体組成物の調製］

実施例１６で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重

合体６．００ｇと、実施例１６で得られた成分（Ａ）６．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン１．９９ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（５７．９ｍｇ／ｇ）の、０．００４８ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ８秒であった。

[0169] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１５と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は３．６８ＭＰａ、破断伸びは、６８．６％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．４８０であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９４．０％、波長５６５ｎｍで９８．２％、波長７５０ｎｍで９８．８％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９４．０％以上を維持した。

[0170] また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９４．０％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、６７．０であり、１

５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も６７．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、１９．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１７．７ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0171] 実施例１８

［重合体組成物の調製］

実施例１６で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体１２．００ｇと、２，４，６，８－テトライソプロピル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン３．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン９．７８ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（５７．９ｍｇ／ｇ）の、０．００８６ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ１３秒であった。

[0172] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１５と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は７．６８ＭＰａ、破断伸びは、１２．８％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５１０であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９３．５％、波長５６５ｎｍで９７．９％、波長７５０ｎｍで９８．２％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９３．５％以上を維持した。

[0173] また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９３．５％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、９５．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も９５．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、６６．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１５．７ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0174] 実施例１９

実施例１６における、ジメチルジクロロシランを１８３９．１ｇ（１４．２５ｍｏｌ）に、ビニルメチルジクロロシランを１０５．８ｇ（０．７５ｍｏｌ）としたこと以外は、実施例１６と同様にして成分（Ａ）を合成し、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体の合成を行った。成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応により粘度が０．２７Ｐａ・ｓのＡＩ含有重合体１５０．３ｇを得た。

[0175] 得られたＡＩ重合体を^{29}Ｓｉ－ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍと－３５．３ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡＩのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、実施例１９で得られた上記成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲのＳｉの－２０．３ｐｐｍと－３４．３ｐｐｍのピーク位置から各々１．３ｐｐｍと１．０ｐｐｍシフトしている。

更に本ＡＩ重合体を^{27}ＡＩ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１５ｃｍ$^{-1}$付近にＳｉ－Ｏ－ＡＩの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡＩ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0176] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体１２．００ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン０．８０４ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（５７．９ｍｇ／ｇ）の、０．００４４ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ２４秒であった。

[0177] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１５と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は１．３２ＭＰａ、破断伸びは、４５．３％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５１０であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９３．６％、波長５

６５ｎｍで９７．６％、波長７５０ｎｍで９８．０％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９３．６１％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９３．６％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

[0178] 得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、５４．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も５４．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、１５．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１２．３ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0179] 得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．６ｐｐｍと－３７．０ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、上記の成分（Ａ）のみと実施例１で得られた成分（Ｂ）を白金触媒下に硬化させたＡｌ成分を含まない（成分（Ｃ）を含まない）硬化物の^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲのＳｉの－２０．５ｐｐｍと－３５．９ｐｐｍのピーク位置から各々１．１ｐｐｍと１．１ｐｐｍシフトしている。更に本硬化板状サンプルを^{27}Ａｌ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δが－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

[0180] 実施例２０

［成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡｌ含有重合体の合成］

実施例６と同様にして得た成分（Ａ）の重合体３０１．６を窒素気流下、攪拌装置及び還流管を備えた２Ｌの四つ口フラスコに仕込み、ヘキサン３２２．０ｇを加え、攪拌し、溶解させた。この重合体のヘキサン溶液に、トリエチルアルミニウムの４９．０重量％のヘキサン溶液４０７．６ｇ（ＡＩ含有量１．７４９ｍｏｌ）を加え、ヘキサン還流条件で４時間攪拌した。室温に冷却した後、４－ヒドロキシシクロヘキサンカルボン酸１２６．１ｇ（０．８７５ｍｏｌ）を添加し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。更に室温に冷却した後、２－ブタノール２６５．８ｇ（３．５８５ｍｏｌ）を滴下濾斗より６０分間で滴下し、ヘキサン還流条件で２時間攪拌した。

得られたヘキサン溶液を減圧加熱し、ヘキサンと低沸点成分を留去して、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応による粘度４．２１Ｐａ・ｓのＡＩ含有重合体３３６．９ｇを得た。

[0181] ［重合体組成物の調製］

上記で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体１０．０ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン４．０７ｇを加え、実施例１で得られた白金触媒溶液（Ｐｔ＝５７．９ｍｇ／ｇ溶液）の、０．００４９ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し白金２０ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ１５秒であった。

[0182] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件などは、実施例１５と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平

坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は３．６１ＭＰａ、破断伸びは、７８．２％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５６０であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９２．４％、波長５６５ｎｍで９６．３％、波長７５０ｎｍで９７．１％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９２．４％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９２．４％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、７２．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も７２．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、２６．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１５．５ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0183] 実施例２１

［ルテニウム触媒の調製］

（２，４－ジメチルペンタジエニル）（エチルシクロペンタジエニル）ルテニウム　０．１００ｇを、実施例６で合成した成分（Ａ）１０ｇにより溶解し、１０．０ｍｇ／ｇの溶液とした。

[0184] ［重合体組成物の調製］

実施例１５で得られた成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応によるＡＩ含有重合体１０．０ｇに、実施例１で得られた成分（Ｂ）の、水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサン６．２２ｇを加え、上記の（２，４－ジメ

チルペンタジエニル）（エチルシクロペンタジエニル）ルテニウム触媒溶液を、１．４６ｇ（Ａ１含有重合体と水素がケイ素に直結した構造を有するポリシロキサンの合計量に対し９００ｐｐｍ）を添加し、シンキー社製の自転・公転真空ミキサー（ＡＲＶ－３１０）で内圧＝０．６ｋＰａ、公転／自転比＝２０００ｒｐｍ／１０００ｒｐｍで３分間、真空脱泡混合を行い、重合体組成物とした。

［重合体組成物の硬化時間の測定］

得られた重合体組成物を１５０℃の焼成炉で加温し、硬化時間を測定したところ１２５秒であった。

[0185] ［重合体組成物の成形（硬化物の合成）］

加熱硬化の条件を１５０℃で、４時間とした以外は実施例１と同様にして、重合体組成物の硬化板状サンプル（硬化物）を得た。

得られた重合体組成物の硬化板状サンプルは、無色透明で、その表面は平坦かつ平滑であった。

本硬化板状サンプルの機械的強度を測定したところ、引張強度は１．２５ＭＰａ、破断伸びは、９．８％であった。

得られた硬化板状サンプルの屈折率を測定したところ、１．５１０であった。

また、光線透過率の波長依存性は、波長３８０ｎｍで９１．０％、波長５６５ｎｍで９５．８％、波長７５０ｎｍで９６．５％の光線透過率であり、ＵＶ照射加速試験後も波長３８０～７５０ｎｍの領域で９１．０％以上を維持した。

また、同様にＵＶ－ＬＥＤチップ試験の前後でも光線透過率の変化は無く、波長３８０～７５０ｎｍの領域で光線透過率９１．０％以上を維持した。すなわち、本重合体組成物の耐ＵＶ性が高いことが判明した。

得られた硬化板状サンプルのデュロメータ硬度Ａは、６８．０であり、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後も７８．０を維持した。また、１５０℃から２６０℃の昇降温３回の耐熱試験後にクラックの発生や割れ

、黄変等の変色はみられなかった。すなわち、耐熱性が高いことが判明した。また、デュロメータ硬度Ｄは、２１．０であった。

得られた硬化板状サンプルの水透過率は、１７．６ｇ／ｍ^2・ｄａｙであった。

[0186] 得られた硬化板状サンプルを^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－２１．５ｐｐｍと－３６．９ｐｐｍにＳｉ－Ｏ－ＡｌのＳｉに帰属されるピークが観測された。この２つのピークは、実施例６で得た成分（Ａ）のみと実施例１で得られた成分（Ｂ）を、白金触媒下に硬化させたＡｌ成分を含まない（成分（Ｃ）を含まない）硬化物の^{29}Ｓｉ　ＣＰ／ＭＡＳ　ＮＭＲのＳｉの－２０．５ｐｐｍと－３５．９ｐｐｍのピーク位置から、各々１．０ｐｐｍと１．０ｐｐｍシフトしている。更に本硬化板状サンプルを^{27}Ａｌ　ＭＡＳ　ＮＭＲにより分析したところ、δ－１００～－２０ｐｐｍにブロードピークがみられた。

また、赤外吸収スペクトルにより分析したところ、１０１４ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－Ｏ－Ａｌの伸縮に帰属される伸縮振動、７５０ｃｍ$^{-1}$付近にＡｌ－Ｏの伸縮振動が観測された。すなわち、ケイ素、酸素、及びアルミニウムからなる一次構造鎖が形成されていることが判明した。

産業上の利用可能性

[0187] 本発明の本発明の重合体組成物を硬化して得られる硬化物は、ガスバリア性、機械的強度、耐ＵＶ性、及び耐熱性等の優れた特性を有し、ガスバリア性樹脂部材、ＬＥＤデバイス、半導体デバイス等として利用できる。さらに、これらはＦＰＤデバイスとして用いることも可能である。

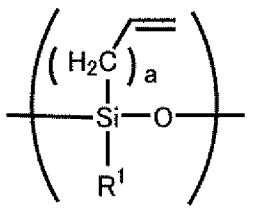
なお、２０１２年１０月３０日に出願された日本特許出願２０１２－２３８５７７号、２０１３年３月２９日に出願された日本特許出願２０１３－０７５０２２号、及び２０１３年５月９日に出願された日本特許出願２０１３－０９９６５１号の明細書、特許請求の範囲、及び要約書の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

請求の範囲

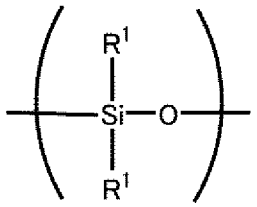
［請求項1］ 下記成分（Ｉ）、成分（ＩＩ）及び成分（ＩＩＩ）を含むことを特徴とする重合体組成物。

成分（Ｉ）；下記式（１）及び式（２）、式（１）及び式（３）、又は式（１）、式（２）及び式（３）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））とを反応させて得られる重合体。

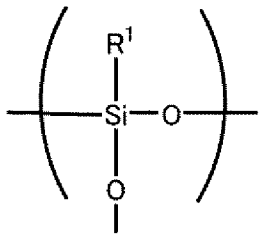
［化1］



（1）



（2）

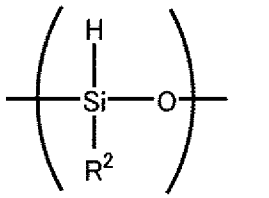


（3）

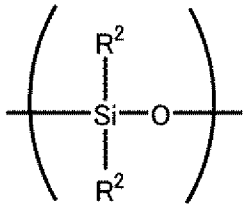
（R^1は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、R^1同志は、同一でも異なっても良い。ａは１～１０の整数を表す。）

成分（ＩＩ）；下記式（４）及び式（５）、式（４）及び式（６）、又は式（４）、式（５）及び式（６）の繰り返し単位を含み、水素がケイ素に直結した構造を有するシロキサン化合物（成分（Ｂ））。

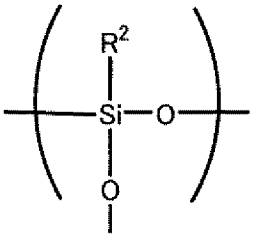
[化2]



(4)



(5)



(6)

（R^2は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、R^2同志は、同一でも異なっても良い。）

成分（ＩＩＩ）；周期表の第８族金属、第９族金属、又は第１０族金属の金属触媒（成分（Ｄ））。

[請求項2] 成分（Ｉ）中、成分（Ａ）のＳｉ含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｃ）のＡｌ含有量が、０．００１～１００ｍｏｌである請求項１に記載の重合体組成物。

[請求項3] 成分（Ａ）中のＳｉに結合したビニル基等の不飽和炭素結合の含有量１ｍｏｌに対し、成分（Ｂ）のＳｉに結合した水素原子含有量が、０．０１～１０００ｍｏｌであり、成分（Ｄ）の金属含有量が、０．００００１～１０００ｍｍｏｌである、請求項１又は２に記載の重合体組成物。

[請求項4] 成分（Ｉ）が、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させる際、若しくは反応させた後に、水、有機ヒドロキシ化合物及び有機ヒドロキシカルボン酸化合物からなる群より選ばれる１種以上を反応させた反応物

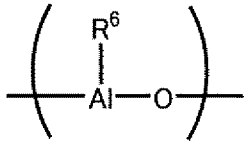
である、請求項１～３のいずれかに記載の重合体組成物。

[請求項5] 成分（Ｉ）が、成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応して得られる重合体に、アルケニル基置換環状シロキサンを添加した反応物である、請求項１～４のいずれかに記載の重合体組成物。

[請求項6] 成分（Ｃ）が、有機アルミニウム化合物、有機亜鉛化合物、及びアルミノキサンからなる群より選ばれる１種以上である、請求項１～５のいずれかに記載の重合体組成物。

[請求項7] 成分（Ａ）が、式（１）、式（２）及び式（７）、式（１）、式（３）及び式（７）、又は式（１）、式（２）、式（３）及び式（７）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物である、請求項１～６のいずれかに記載の重合体組成物。

[化3]



(7)

（R^6は、炭素数１～２０の炭化水素基、炭素数１～２０のアルコキシ基、又は炭素数１～２０のシラノキシ基を表す。）

[請求項8] 成分（Ｄ）が、白金触媒又はルテニウム触媒である、請求項１～７のいずれかに記載の重合体組成物。

[請求項9] 予め成分（Ａ）と成分（Ｃ）とを反応させた後、成分（Ｂ）及び成分（Ｄ）を添加することを特徴とする請求項１～８のいずれかに記載の重合体組成物の製造方法。

[請求項10] 請求項１～８のいずれかに記載の重合体組成物を加熱、若しくは光を照射し、反応させて得られることを特徴とする硬化物。

[請求項11] Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づく１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、

成分（Ａ）と成分（Ｂ）の硬化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（Ａ）と成分（Ｃ）との反応物と成分（Ｂ）の硬

化物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、

^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する、請求項１０に記載の硬化物。

[請求項12] 請求項１０又は１１に記載の硬化物からなることを特徴とする封止材。

[請求項13] 請求項１０又は１１に記載の硬化物からなることを特徴とするガスバリア材。

[請求項14] 請求項１０又は１１に記載の硬化物からなることを特徴とする半導体用絶縁封止材。

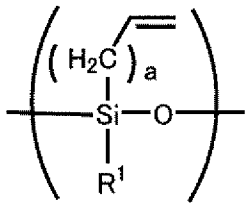
[請求項15] 請求項１２に記載の封止材を用いることを特徴とするＬＥＤデバイス。

[請求項16] 請求項１３に記載のガスバリア材を用いることを特徴とする樹脂部材。

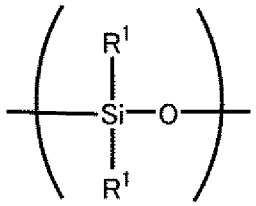
[請求項17] 請求項１４に記載に記載の半導体用絶縁封止材を用いることを特徴とする半導体デバイス。

[請求項18] 下記式（１）及び式（２）、式（１）及び式（３）、又は式（１）、式（２）及び式（３）の繰り返し単位を含む不飽和基含有シロキサン化合物（成分（Ａ））と、周期表の第１族金属、第２族金属、第１２族金属、第１３族金属、又は第１４族金属の、有機金属化合物及びメタロキサン化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種（成分（Ｃ））とを反応させて得られる重合体。

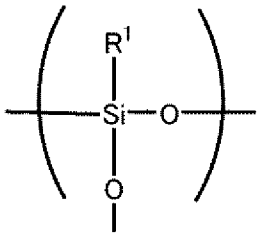
[化4]



(1)



(2)

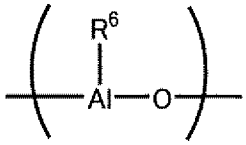


(3)

（R^1は、水素原子又は炭素数１～２０の炭化水素基を表し、R^1同志は、同一でも異なっても良い。ａは１～１０の整数を表す。）

[請求項19] 式（１）、式（２）及び式（７）、式（１）、式（３）及び式（７）、又は式（１）、式（２）、式（３）及び式（７）の繰り返し単位を含む、請求項１８に記載の重合体。

[化5]



(7)

（R^6は、炭素数１～２０の炭化水素基、炭素数１～２０のアルコキシ基、又は炭素数１～２０のシラノキシ基を表す。）

[請求項20] Ａｌ－Ｏに基づく７００～８００ｃｍ$^{-1}$と、Ｓｉ－Ｏ－Ａｌに基づく１０１０～１０２０ｃｍ$^{-1}$の赤外吸収を有し、

成分（Ａ）の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）と、成分（

Ａ）と成分（Ｃ）との反応物の^{29}Ｓｉ－ＮＭＲの化学シフト（ｐｐｍ）との差が１．０ｐｐｍ以上であり、

^{27}Ａｌ－ＮＭＲで－５０～１００ｐｐｍにブロードピークを有する、請求項１８又は１９に記載の重合体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/079323

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L83/07(2006.01)i, *C08G77/20*(2006.01)i, *C08G77/58*(2006.01)i, *C08K5/56*(2006.01)i, *C08L83/05*(2006.01)i, *H01L23/29*(2006.01)i, *H01L23/31*(2006.01)i, *H01L33/56*(2010.01)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, C08G77/20, C08G77/58, C08K5/56, C08L83/05, H01L23/29, H01L23/31, H01L33/56

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 1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014

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 A	JP 2012-021139 A (Tosoh Corp.), 02 February 2012 (02.02.2012), claims 1 to 10; paragraphs [0007], [0078], [0079], [0088] to [0090], [0109]; examples & US 2013/0090447 A1 & EP 2584005 A1 & TW 201204767 A & CN 102947393 A & SG 186368 A	1-4,6-20 5
Y A	JP 2012-197409 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 18 October 2012 (18.10.2012), claims 1, 3, 4, 6, 7; paragraphs [0053], [0121], [0142], [0153], [0183], [0189]; examples (Family: none)	1-4,6-20 5

☒ 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
27 January, 2014 (27.01.14)	04 February, 2014 (04.02.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/079323

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-002093 A (Dow Corning Toray Co., Ltd.), 05 January 2006 (05.01.2006), entire text & US 2008/0262157 A1 & EP 1776420 A1 & WO 2005/123839 A1 & DE 602005019574 D & KR 10-2007-0020075 A & CN 1969015 A & AT 458790 T & KR 10-1187594 B	1-20
A	JP 2006-131889 A (Toray Industries, Inc.), 25 May 2006 (25.05.2006), entire text (Family: none)	1-20
A	JP 56-157430 A (Seishi YAJIMA), 04 December 1981 (04.12.1981), entire text (Family: none)	1-20
A	WO 2011/065144 A1 (JSR Corp.), 03 June 2011 (03.06.2011), entire text & EP 2505613 A1 & CN 102639642 A & TW 201132681 A & KR 10-2012-0101635 A	1-20

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１３／０７９３２３

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, C08G77/20(2006.01)i, C08G77/58(2006.01)i, C08K5/56(2006.01)i, C08L83/05(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i, H01L33/56(2010.01)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, C08G77/20, C08G77/58, C08K5/56, C08L83/05, H01L23/29, H01L23/31, H01L33/56

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	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４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 A	JP 2012-021139 A（東ソー株式会社）2012.02.02, 【請求項１】－【請求項１０】、【０００７】、【００７８】、【００７９】、【００８８】－【００９０】、【０１０９】、実施例 & US 2013/0090447 A1 & EP 2584005 A1 & TW 201204767 A & CN 102947393 A & SG 186368 A	1-4,6-20 5
Y A	JP 2012-197409 A（積水化学工業株式会社）2012.10.18, 【請求項１】、【請求項３】、【請求項４】、【請求項６】、【請求項７】、【００５３】、【０１２１】、【０１４２】、【０１５３】、【０１８３】、【０１８９】、実施例（ファミリーなし）	1-4,6-20 5

☑　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 ２７．０１．２０１４	国際調査報告の発送日 ０４．０２．２０１４
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　５２８２ 藤井　勲 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2006-002093 A (東レ・ダウコーニング株式会社) 2006.01.05, 全文 & US 2008/0262157 A1 & EP 1776420 A1 & WO 2005/123839 A1 & DE 602005019574 D & KR 10-2007-0020075 A & CN 1969015 A & AT 458790 T & KR 10-1187594 B	1-20
A	JP 2006-131889 A (東レ株式会社) 2006.05.25, 全文 (ファミリーなし)	1-20
A	JP 56-157430 A (矢島聖使) 1981.12.04, 全文 (ファミリーなし)	1-20
A	WO 2011/065144 A1 (ＪＳＲ株式会社) 2011.06.03, 全文 & EP 2505613 A1 & CN 102639642 A & TW 201132681 A & KR 10-2012-0101635 A	1-20