

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6803842号
(P6803842)

(45) 発行日 令和2年12月23日 (2020. 12. 23)

(24) 登録日 令和2年12月3日 (2020. 12. 3)

(51) Int. Cl.	F I
CO8L 83/04 (2006.01)	CO8L 83/04
CO8K 5/19 (2006.01)	CO8K 5/19
CO8J 5/18 (2006.01)	CO8J 5/18 C F H
CO9D 183/04 (2006.01)	CO9D 183/04

請求項の数 3 (全 34 頁)

(21) 出願番号	特願2017-536545 (P2017-536545)	(73) 特許権者	500575824
(86) (22) 出願日	平成28年3月2日 (2016. 3. 2)		ハネウェル・インターナショナル・インコーポレーテッド
(65) 公表番号	特表2018-516998 (P2018-516998A)		Honeywell International Inc.
(43) 公表日	平成30年6月28日 (2018. 6. 28)		アメリカ合衆国 ノースカロライナ州 28202 シャルロッテ, 300サウス・テイロンストリート, スイート600
(86) 国際出願番号	PCT/US2016/020373		ハネウェル・インターナショナル・インコーポレーテッド インテレクチュアルプロパティサービスグループ
(87) 国際公開番号	W02016/167892	(74) 代理人	100140109
(87) 国際公開日	平成28年10月20日 (2016. 10. 20)		弁理士 小野 新次郎
審査請求日	平成31年2月1日 (2019. 2. 1)	(74) 代理人	100118902
(31) 優先権主張番号	62/146, 593		弁理士 山本 修
(32) 優先日	平成27年4月13日 (2015. 4. 13)		
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 オプトエレクトロニクス用途のためのポリシロキサン製剤及びコーティング

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

触媒の存在下、溶媒中で、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、及びこれらの組み合わせから成る群より選択される第一のオルガノアルコキシシランを反応させて得られる、1000 AMU から 10000 AMU の重量平均分子量を有する、アルキル基及びアリール基を含む第一のケイ素含有樹脂、

触媒の存在下、溶媒中で、フェニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、及びこれらの組み合わせから成る群より選択される第二のオルガノアルコキシシランを反応させて得られる、900 AMU から 5000 AMU の重量平均分子量を有する、アリール基を含む第二のケイ素含有樹脂、

少なくとも1つの溶媒、及び

少なくとも1つの熱活性化縮合触媒、を含み、

前記第二のケイ素含有樹脂は、前記第一のケイ素含有樹脂と前記第二のケイ素含有樹脂の合計の50重量%以下で存在する、架橋性組成物。

【請求項 2】

前記第一のオルガノアルコキシシランが、ジメチルジエトキシシランまたはジメチルジメトキシシランを含む、請求項1に記載の架橋性組成物。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の架橋性組成物を基材上に堆積させること、及び
前記架橋性組成物を、350 以上の温度で硬化して、1.5 μm 以上の厚さを有する
架橋された膜を形成すること、
を含む、膜を形成する方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

関連出願の相互参照

本出願は、米国特許法第 119 条 (e) の下、その全開示内容が参照により本明細書に
明確に援用される 2015 年 4 月 13 日に提出された「POLYSILOXANE FORMULATIONS AND
COATINGS FOR OPTOELECTRONIC APPLICATIONS」と題する米国仮特許出願第 62,146,
593 号の利益を主張するものである。

10

【0002】

技術分野

本開示は、ポリシロキサン製剤及びこれらの組成物から作製されたコーティング全般に
関し、より詳細には、オプトエレクトロニクスデバイス及び用途に用いるためのポリシロ
キサン製剤及びコーティングに関する。

【背景技術】

【0003】

エレクトロニクス、オプトエレクトロニクス、及びディスプレイデバイスのためのポリ
シロキサンコーティングは、例えば、その開示内容全体が参照により本明細書に援用され
る「COMPOSITIONS, LAYERS AND FILMS FOR OPTOELECTRONIC DEVICES, METHODS OF PRODUCTI
ON AND USES THEREOF」と題する米国特許第 8,901,268 号に開示されている。

20

【0004】

典型的なポリシロキサンコーティングでは、コーティングは、シロキサンモノマー又は
オリゴマーなどのケイ素系化合物の加水分解及び縮合反応から、多くの場合は縮合触媒を
用いて形成される。そのようなコーティング製剤は、限定的な保存期間、低い pH、製剤
中の水の存在、及び限定的な膜厚のうちの 1 つ以上を含む特定の制限を伴い得る。

【0005】

いくつかの典型的なコーティングでは、膜厚は、製剤の固形分の制限によって限定され
る。固形分が高過ぎると、重合反応は、製剤がゲル化するまで反応する傾向を有し、エレ
クトロニクス又はオプトエレクトロニクスコーティングの形成にとって適さないものとな
ってしまう。いくつかの典型的なデバイスでは、ポリシロキサンコーティングは、水分に
対する感受性を有する基材又はコーティングに適用される。水を含有する製剤をその基材
又はコーティングに適用することは、水分に対する感受性を有する Si-H 部分を含有す
るシロキサン物質などの水分感受性物質を損傷する恐れがある。いくつかの典型的なデバ
イスでは、ポリシロキサンコーティングは、pH に対する感受性を有する基材又はコーテ
ィングに適用される。製剤をその基材又はコーティングに適用することは、酸性又は塩基
性媒体に対する感受性を有し得るインターコネクットの金属パターンなどの pH 感受性物質
を損傷する恐れがある。

30

40

【0006】

加えて、バッテリー寿命を向上し、視聴の楽しさを高めたタッチ式高ピクセル密度 (1
インチあたりのピクセル又は ppi) ディスプレイでは、薄膜トランジスタ (TFT) レ
ベルでの電力消費を最小限に抑えて個々のピクセルの動作を向上させる必要がある。解像
度が高められたタッチ式高性能ディスプレイの場合、個々のピクセルは、複数の薄膜トラ
ンジスタ (TFT) と接続されて、最大の解像度及び消費者にとっての最大の視聴の楽し
さが達成される。ガラスが好ましい固体基材上に熱安定性の平坦化層を適用することによ
って平滑基材上に熱安定性酸化物 TFT を構築することは、TFT 動作時のリークを減少
し、デバイスのスイッチオン及びオフ時の電力消費を低下させる。酸化インジウムガリウ
ム亜鉛 (IGZO) などの酸化物 TFT は、オフ電流が低く、アモルファス及び低温ポリ

50

シリコン T F T と比較して長いディスプレイデバイスのバッテリー寿命が得られる。銅、アルミニウム、又はモリブデンのインターコネクトでは、酸化物 T F T に対して、低ガス放出性の熱安定性 (3 5 0 ~ 4 0 0 、好ましくは、3 8 0) 平坦化誘電性物質が必要である。加えて、銅、アルミニウム、又はモリブデンのインターコネクトでは、拡散を防止するために、窒化ケイ素などの比較的厚いバリア物質が必要であり、このことは、一般的に、製造コストを増加させる。しかし、典型的な平坦化物質は、有効な拡散バリア又は補助的な拡散バリアとしての要件を満たしていない。

【発明の概要】

【 0 0 0 7 】

上述事項における改善が求められている。

10

本開示は、1つ以上の溶媒及び1つ以上のケイ素系化合物を含むポリシロキサン製剤を提供する。本開示はさらに、そのような製剤から形成されたコーティングも提供する。

【 0 0 0 8 】

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、ケイ素系物質中の炭素原子の総数に基づいたアルキル基中に含有される炭素原子の割合が20%超から100%である少なくとも1つのケイ素系物質、及び少なくとも1つの溶媒を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、少なくとも1つのケイ素系物質は、アルキル基及びアリール基を含む第一のケイ素含有樹脂、並びにアリール基を含む第二のケイ素含有樹脂を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂は、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含む。

20

【 0 0 0 9 】

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、アルキル基及びアリール基のうちの少なくとも1つを含む第一のシロキサン樹脂並びにアリール基を含む第二のシロキサン樹脂を含む少なくとも1つのケイ素系物質、及び少なくとも1つの溶媒を含む。1つのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂は、1000AMUから10000AMUの重量平均分子量を有し、第二のケイ素含有樹脂は、900AMUから5000AMUの重量平均分子量を有する。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂のアルキル基は、メチル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂は、ジメチルシロキサンを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂のアリール基は、フェニル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第二のシロキサン樹脂のアリール基は、フェニル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂は、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含む。

30

【 0 0 1 0 】

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、二官能性シロキサンを含む少なくとも1つのケイ素系物質、及び少なくとも1つの溶媒を含む。より特定の実施形態では、二官能性シロキサンは、ジメチルシロキサンである。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、ケイ素系物質は、ケイ素系物質中のシロキサンの総モル数の割合として、少なくとも0.1mol%の二官能性シロキサンを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、少なくとも1つのケイ素系物質は、アルキル基及びアリール基を含む第一のケイ素含有樹脂、並びにアリール基を含む第二のケイ素含有樹脂を含み、ここで、第一のケイ素含有樹脂は、二官能性シロキサンを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂は、メチルシロキサン、ジメチルシロキサン、及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含む。

40

【 0 0 1 1 】

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、アルキル基及びアリー

50

ル基を含む第一のケイ素含有樹脂並びにアリール基を含む第二のケイ素含有樹脂、少なくとも1つの溶媒、並びに少なくとも1つの熱活性化触媒を含む架橋性組成物である。より特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの界面活性剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、接着促進剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂は、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のケイ素含有樹脂はさらに、ジメチルシロキサンなどの二官能性シロキサンを含む。さらにより特定の実施形態では、二官能性シロキサンは、第一のケイ素含有樹脂中のシロキサンの総モル数の割合として、少なくとも0.1mol%を成す。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一及び第二のケイ素含有樹脂中の炭素原子の総数に基づいたアルキル基中に含有される炭素原子の割合は、10%超から100%であり、又はさらにより特には、20%超から100%である。

10

【0012】

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、1000AMUから10000AMUの重量平均分子量を有し、ケイ素系物質中の炭素原子の総数に基づいたアルキル基中に含有される炭素原子の割合が20%超から100%である少なくとも1つのケイ素系物質、少なくとも1つの溶媒、及び少なくとも1つの熱活性化触媒を含む架橋性組成物である。より特定の実施形態では、組成物はさらに、1つ以上の界面活性剤を含む。より特定の実施形態では、組成物はさらに、1つ以上の接着促進剤を含む。

20

【0013】

上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、酢酸テトラメチルアンモニウム(TMAA)、水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)、水酸化テトラブチルアンモニウム(TBAH)、酢酸テトラブチルアンモニウム(TBAA)、酢酸セチルトリメチルアンモニウム(CTAA)、硝酸テトラメチルアンモニウム(TMAN)から選択される四級アンモニウム塩などの少なくとも1つの熱活性化触媒を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの界面活性剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの接着促進剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの可塑剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの有機酸を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、少なくとも1つの一官能性シランを含む。

30

【0014】

上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物は、水を含まない。

1つの代表的な実施形態では、組成物が提供される。組成物は、アルキル基及びアリール基のうちの少なくとも1つを含む少なくとも1つのケイ素系物質、少なくとも1つの溶媒、少なくとも1つの熱活性化触媒、並びに少なくとも1つの界面活性剤を含み、ここで、組成物は、水を含まない。より特定の実施形態では、少なくとも1つの溶媒は、水を含まない無水溶媒から成る。別のより特定の実施形態では、組成物は、0.2重量%未満の水を有する。別のより特定の実施形態では、組成物は、0重量%の水を有する。別のより特定の実施形態では、組成物は、外的な水を含まない。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、接着促進剤、末端封止剤、及び有機酸から成る群より選択される1つ以上の添加剤を含む。

40

【0015】

上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物は、架橋性組成物である。

1つの代表的な実施形態では、架橋された膜が提供される。架橋された膜は、上記の実施形態のいずれかに従う組成物から形成される。より特定の実施形態では、架橋された膜

50

は、 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の厚さを有する。別のより特定の実施形態では、架橋された膜は、 $3.0\text{ }\mu\text{m}$ 以上の厚さを有する。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋された膜は、 350 以上の温度で硬化される。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋された膜は、 390 以上の温度で硬化される。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋された膜は、 400 から 1000 nm の可視光波長範囲内の光に対して、 95% 以上の透過率を有する。

【0016】

1つの代表的な実施形態では、表面を有するデバイスが提供される。表面は、上記の実施形態のいずれかに従う架橋された膜を含むか、又は上記の実施形態のいずれかから形成された架橋された膜を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、デバイスは、トランジスタ、発光ダイオード、カラーフィルター、光起電力セル、フラットパネルディスプレイ、湾曲ディスプレイ、タッチスクリーンディスプレイ、 x 線検出器、アクティブ又はパッシブマトリックスOLEDディスプレイ、アクティブマトリックス薄膜液晶ディスプレイ、電気泳動ディスプレイ、CMOSイメージセンサー、及びこれらの組み合わせから成る群より選択される。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋された膜は、不動態化層、平坦化層、バリア層、又はこれらの組み合わせを形成する。

【0017】

1つの実施形態では、組成物を形成する方法が提供される。この方法は、第一のシロキサン樹脂、第二のシロキサン樹脂、及び少なくとも1つの溶媒を混合して架橋性組成物を形成することを含み、ここで、第一のシロキサン樹脂は、アルキル基及びアリール基のうちの少なくとも1つを含み、第二のシロキサン樹脂は、アリール基を含む。より特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂のアルキル基は、メチル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂は、ジメチルシロキサンを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂のアリール基は、フェニル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、第二のシロキサン樹脂のアリール基は、フェニル基を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物はさらに、アルキル及びアリール基中の炭素原子の総数に基づいて、 20% 超から 100% のアルキル基中に含有される炭素原子の合計割合を有する。

【0018】

1つの代表的な実施形態では、組成物を形成する方法が提供される。この方法は、触媒の存在下、第一の溶媒中で第一のオルガノアルコキシシランを反応させて、アルキル基及びアリール基のうちの少なくとも1つを含む第一のケイ素系物質を生成すること、触媒の存在下、第二の溶媒中で第二のオルガノアルコキシシランを反応させて、アリール基を含む第二のケイ素系物質を生成すること、並びに第一及び第二のケイ素系物質を混合して組成物を形成することを含み、ここで、組成物は、第一及び第二のケイ素系物質中の炭素原子の総数に基づいて、 20% 超から 100% のアルキル基中に含有される炭素原子の割合を有する。より特定の実施形態では、第一及び第二のオルガノアルコキシシランは、独立して、メチルトリメトキシシラン(MTMOS)、メチルトリエトキシシラン(MTEOS)、ジメチルジエトキシシラン(DMDEOS)、フェニルトリエトキシシラン(PTEOS)、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、及びこれらの組み合わせから成る群より選択される。

【0019】

1つの代表的な実施形態では、組成物を形成する方法が提供される。この方法は、アルキル基及びアリール基を含む第一のシロキサン樹脂、アリール基を含む第二のシロキサン樹脂、溶媒、及び熱活性化触媒を混合して、架橋性組成物を形成すること、該組成物を基材上に堆積すること、並びに架橋性組成物を 350 以上の温度で硬化して、架橋された膜を形成することを含み、ここで、架橋された膜は、 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上の厚さを有する。よ

10

20

30

40

50

り特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂は、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含む。別のより特定の実施形態では、第一のシロキサン樹脂はさらに、ジメチルシロキサンを含む。

【0020】

より特定の実施形態では、上記の実施形態のいずれかに従う方法、組成物はさらに、少なくとも1つの熱活性化触媒、及び少なくとも1つの界面活性剤を含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋性組成物は、水を含まない。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、少なくとも1つの溶媒は、PGMEA及びPGPEから成る。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、組成物は、架橋性組成物である。

10

【0021】

より特定の実施形態では、上記の実施形態のいずれかに従う方法はさらに、組成物を表面上に堆積させること、及び組成物を硬化して膜を形成することを含む。より特定の実施形態では、膜は、 $1.5\mu\text{m}$ 以上の厚さを有する。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋された膜は、 $3.0\mu\text{m}$ 以上の厚さを有する。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋性組成物を硬化することは、 350

以上の温度で硬化することを含む。上記の実施形態のいずれかのうちのより特定の実施形態では、架橋性組成物を硬化することは、 390 以上の温度で硬化することを含む。

【0022】

より特定の実施形態では、上記の実施形態のいずれかに従って、第一のケイ素含有樹脂は、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、第二のケイ素含有樹脂は、フェニルシロキサンを含み、並びに方法はさらに、少なくとも 1000AMU の分子量を有するフェニルTEOS系ポリマーを、溶媒中、触媒の存在下で反応させて、第二のケイ素含有樹脂を形成することを含む。さらにより特定の実施形態では、触媒は、テトラオルガノアンモニウム化合物などの塩基性触媒である。

20

【0023】

複数の実施形態が開示されるが、当業者であれば、本発明の実例としての実施形態を示し、記載する以下の詳細な記述から、本発明のさらに他の実施形態が明らかとなるであろう。従って、図面及び詳細な記述は、限定するものではなく、本質的に実例として見なされるべきである。

30

【図面の簡単な説明】

【0024】

【図1】図1は、例4に関連し、コーティングの絶対透過率($350\sim800\text{nm}$)を示す。

【図2A】図2Aは、例4に関連し、 400nm から 1050nm におけるコントロールコーティングの反射性を示す。

【図2B】図2Bは、例4に関連し、 400nm から 1050nm における代表的コーティングの反射性を示す。

【図3A】図3Aは、例6に関連し、加熱及び冷却サイクル時のコントロールコーティングにおける残留応力をMPaで示す。

40

【図3B】図3Bは、例6に関連し、加熱及び冷却サイクル時の代表的コーティングにおける残留応力をMPaで示す。

【図4A】図4Aは、例6に関連し、コーティングに対する温度の関数としての熱膨張係数を示す。

【図4B】図4Bは、例6に関連し、コーティングに対する温度の関数としての熱膨張係数の差を示す。

【図5】図5は、例7に関連し、コーティングに対する熱重量分析の結果を示す。

【図6A】図6Aは、例9に関連し、コーティングに対するナノ硬度をMPaで示す。

【図6B】図6Bは、例9に関連し、コーティングに対する換算弾性率をGPaで示す。

【図7A】図7Aは、例9に関連し、コントロールコーティングに対する深さ対荷重プロ

50

ファイルを示す。

【図 7 B】図 7 B は、例 9 に関連し、コントロールコーティングに対するインデンテーションの走査型プローブ顕微鏡画像を示す。

【図 8 A】図 8 A は、例 9 に関連し、代表的コーティングに対する深さ対荷重プロファイルを示す。

【図 8 B】図 8 B は、例 9 に関連し、代表的コーティングに対するインデンテーションの走査型プローブ顕微鏡画像を示す。

【発明を実施するための形態】

【0025】

複数の図全体にわたって、対応する符号は、対応する部分を示す。本明細書で示される実例は、特定の代表的な実施形態を実証するために提供されるものであり、そのような実例は、いかなる形であっても、範囲を限定するものとして解釈されてはならない。

【0026】

I. ポリシロキサン製剤

1 つの代表的な実施形態では、ポリシロキサン製剤は、1 つ以上の溶媒、及び 1 つ以上のケイ素系化合物を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、1 つ以上の触媒を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、1 つ以上の界面活性剤を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、接着促進剤、可塑剤、有機酸、及び一官能性シランなどの 1 つ以上のさらなる添加剤を含む。

【0027】

a. 溶媒

製剤は、1 つ以上の溶媒を含む。代表的な溶媒としては、所望される温度で蒸発する、及び/又は本明細書で考察される成分を容易に溶媒和させる適切な純粋有機分子又はその混合物が挙げられる。溶媒はまた、適切な純粋極性及び非極性化合物、又はその混合物を含んでもよい。本明細書で用いられる場合、「純粋」の用語は、一定の組成を有する成分を意味する。例えば、純粋な水は、 H_2O のみから成る。本明細書で用いられる場合、「混合物」の用語は、塩水を含む純粋ではない成分を意味する。本明細書で用いられる場合、「極性」の用語は、分子若しくは化合物の一か所又は全体にわたって不均等な電荷、部分的な電荷、又は自発的な電荷の分布を作り出す分子又は化合物の特性を意味する。本明細書で用いられる場合、「非極性」の用語は、分子若しくは化合物の一か所又は全体にわたって均等な電荷、部分的な電荷、又は自発的な電荷の分布を作り出す分子又は化合物の特性を意味する。

【0028】

代表的な溶媒としては、ある場合では、組成物のギャップ充填性及び平坦化性を改善する目的で、単独で又は組み合わせて、溶液の粘度、分子間力、及び表面エネルギーを修飾することができる溶媒が挙げられる。しかし、適切な溶媒はまた、架橋効率に影響を与えること、熱安定性に影響を与えること、粘度に影響を与えること、及び/又は得られる層若しくは膜の他の層、基材、若しくは表面に対する接着性に影響を与えることによるなど、他の方法で組成物のプロファイルに影響を与える溶媒も含んでよいことは理解されるべきである。

【0029】

代表的な溶媒としては、また、炭化水素溶媒ファミリーの化合物の一部ではない溶媒も挙げられ、アセトン、ジエチルケトン、メチルエチルケトンなどを含むケトン、アルコール、エステル、エーテル、及びアミンなどである。さらなる代表的な溶媒としては、乳酸エチル、プロピレングリコールプロピルエーテル (PGPE)、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート (PGMEA)、又はこれらの組み合わせが挙げられる。1 つの代表的な実施形態では、溶媒は、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートを含む。

【0030】

1 つの代表的な実施形態では、製剤は、少なくは、50 重量%、55 重量%、60 重量

10

20

30

40

50

%、多くは、80重量%、85重量%、90重量%の、又は50重量%から90重量%、55重量%から85重量%、若しくは65重量%から85重量%など、上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい1つ以上の溶媒を含む。組成物に添加する溶媒の適切な量の決定は、いくつかの因子に依存し、a) 所望される層若しくは膜の厚さ、b) 組成物中の固体の所望される濃度及び分子量、c) 組成物の適用技術、並びに/又はd) スピンコーティング技術が用いられる場合は、スピン速度が挙げられる。加えて、製剤中の固体濃度(又は樹脂若しくはポリマー)が高い程、粘度が高くなる。従って、特定のコーティング適用技術において所望される場合、粘度を高めるために、固形分が増加(又は、溶媒の量が減少)されてもよい。加えて、粘稠製剤又は固形分がより高い製剤は、典型的には、2 µm超などのより厚い膜厚を提供することになる。

10

【0031】

本明細書で用いられる溶媒は、適切ないかなる不純物レベルを有していてもよい。ある実施形態では、用いられる溶媒は、約1 ppm未満、約100 ppb未満、約10 ppb未満、約1 ppb未満、約100 ppt未満、約10 ppt未満、及び場合によっては、約1 ppt未満など、比較的低いレベルの不純物を有する。これらの溶媒は、これらの考慮される用途での使用に適する不純物レベルを有するものが購入されてよく、又はさらに不純物を除去し、約10 ppb未満、約1 ppb未満、約100 ppt未満、若しくは適切な及び/若しくは所望されるこれらよりも低いレベルに到達するために、さらに精製される必要があり得る。

【0032】

20

1つの代表的な実施形態では、製剤は、水を含まない。より特定の実施形態では、溶媒は、無水溶媒であり、ケイ素系化合物、並びにいずれの触媒、界面活性剤、接着促進剤、架橋剤、開始剤、又はその他の添加剤も、水を含まない無水溶媒中のものが提供される。ある代表的な実施形態では、「水を含まない」とは、0.2重量%、0.1重量%、0.05重量%、0.01重量%、又は0重量%未満の水を有する組成物を意味する。ある代表的な実施形態では、「水を含まない」とは、水を有しない組成物を意味する。ある代表的な実施形態では、「水を含まない」とは、ケイ素系化合物の加水分解縮合反応からある程度の水は形成され得るが、外的な水は添加されない組成物を意味する。

【0033】

b. ケイ素系化合物

30

製剤は、架橋してポリシロキサンを形成することができる1つ以上のケイ素系化合物を含む。代表的なケイ素系化合物は、シロキサン、シルセスキオキサン、ポリシロキサン、又はポリシルセスキオキサンを含み、メチルシロキサン、メチルシルセスキオキサン、フェニルシロキサン、フェニルシルセスキオキサン、メチルフェニルシロキサン、メチルフェニルシルセスキオキサン、ジメチルシロキサン、ジフェニルシロキサン、メチルフェニルシロキサン、ポリフェニルシルセスキオキサン、ポリフェニルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリメチルフェニルシルセスキオキサン、ポリメチルシロキサン、ポリメチルシルセスキオキサン、及びこれらの組み合わせなどである。ある実施形態では、少なくとも1つのケイ素系化合物は、ポリフェニルシルセスキオキサン、ポリフェニルシロキサン、フェニルシロキサン、フェニルシルセスキオキサン、メチルフェニルシロキサン、メチルフェニルシルセスキオキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリメチルフェニルシルセスキオキサン、ポリメチルシロキサン、ポリメチルシルセスキオキサン、又はこれらの組み合わせを含む。

40

【0034】

ある実施形態では、ケイ素系化合物において、炭素原子の総数が、メチル及びエチル基などのアルキル基の炭素原子と、フェニル基などのアリアル基の炭素原子とに分割されている。ある実施形態では、アルキル基に含有される炭素原子の数は、アルキル及びアリアル基に含有される炭素原子の総数に基づいて、10%超、12%、15%、20%、21%、25%、又は30%超、31%、40%、50%、60%、70%、75%、80%、85%、90%、95%、99%、及び100%未満、若しくは100%であり、又は

50

10%超から100%未満、12%から100%未満、20%超から100%、若しくは30%超から100%未満などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい。

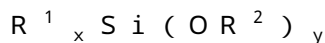
【0035】

いかなる特定の理論にも束縛されるものではないが、アリール炭素の割合の増加は、ポリシロキサン化合物の立体障害を増加させ、架橋がより低く、より可撓性であるポリシロキサンコーティングが得られる結果となると考えられる。加えて、ジアルキルジアルコキシシラン又はジアリールジアルコキシシランなどの二官能性シランを用いることによるアルキル又はアリール炭素の割合の増加は、ポリシロキサン化合物の反応性官能基の数を減少させ、架橋がより低く、より可撓性であるポリシロキサンコーティングが得られる結果となる。しかし、ポリシロキサン化合物の可撓性が増加すると、化学薬品に対する耐性のより低い膜又はコーティングが作製される傾向もある。ある代表的な実施形態では、ケイ素系化合物は、形成されたポリシロキサンの可撓性を増加させるために、可塑剤又はその他の適切な物質を含む。

10

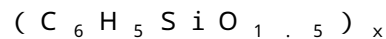
【0036】

いくつかの考慮されるケイ素系化合物は、以下の式を有する少なくとも1つの反応体の加水分解縮合反応から形成された組成物を含み、



式中、 R^1 は、アルキル、アルケニル、アリール、又はアラルキル基であり、 x は、0から2の整数であり、並びに R^2 は、アルキル基又はアシル基であり、 y は、1から4の整数である。さらに考慮される物質としては、以下の一般式のシルセスキオキサンポリマーが挙げられ、

20



式中、 x は、約4を超える整数である。

【0037】

ある代表的な実施形態では、ケイ素系物質は、1つ以上のポリシロキサン樹脂を含み、オハイオ州ペリーズバーグの Techne Glas Technical Products 社から入手可能である Glass Resin ポリシロキサン樹脂などである。1つの代表的な実施形態では、ポリシロキサン樹脂は、1つ以上のケイ素系モノマーの制限された加水分解及び縮合反応から形成されるケイ素系オリゴマーである。代表的な適するケイ素系モノマーとしては、 $Si-C$ 結合を有するオルガノアルコキシシランが挙げられ、メチルトリメトキシシラン (MTMOS)、メチルトリエトキシシラン (MTEOS)、ジメチルジエトキシシラン (DMDEOS)、フェニルトリエトキシシラン (PTEOS)、ジメチルジメトキシシラン、及びフェニルトリメトキシシランなどである。その他の適するケイ素系のモノマーは、テトラエチルオルソシリケート (TEOS) など、 $Si-C$ 結合を有しない。代表的な樹脂物質としては、メチルシロキサン、ジメチルシロキサン、フェニルシロキサン、メチルフェニルシロキサン、テトラエトキシシラン、及びこれらの混合物など、オルガノアルコキシシランから誘導されるガラス樹脂が挙げられる。

30

【0038】

1つの代表的な実施形態では、ポリシロキサン樹脂は、直鎖状構造、環状構造、ケージ状構造、ラダー状構造、及び部分ラダー/部分ケージ状構造から成る群より選択される構造を有する。より特定の実施形態では、ポリシロキサン樹脂は、部分ラダー/部分ケージ状構造を有する。

40

【0039】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサン樹脂は、1つ以上のアルキル基及び/又は1つ以上のアリール基を含む。アルキル基を含有する代表的なポリシロキサン樹脂としては、メチルシロキサン及びジメチルシロキサンが挙げられる。アリール基を含有する代表的なポリシロキサン樹脂としては、フェニルシロキサンが挙げられる。アルキル及びアリール基の両方を含有する代表的なポリシロキサン樹脂としては、メチルフェニルシロキサンが挙げられる。

50

【 0 0 4 0 】

1つの代表的な実施形態では、各ポリシロキサン樹脂は、小さくは、900原子質量単位(AMU)、950AMU、1000AMU、1100AMU、1150AMU、大きくは、2000AMU、3000AMU、4000AMU、5000AMU、10000AMUの、又は900AMUから10000AMU、1000AMUから10000AMU、若しくは900AMUから5000AMUなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい重量平均分子量を有する。より特定の実施形態では、ポリシロキサン樹脂は、メチルシロキサン及び/又はジメチルシロキサンなどのアルキル基を含有する第一のポリシロキサン樹脂、並びにフェニルシロキサンなどのアリール基を含有する第二のポリシロキサン樹脂を含む。1つの実施形態では、第一のポリシロキサン樹脂はさらに、フェニルシロキサンなど、アリール基を含有する。さらにより特定の実施形態では、第一のポリシロキサン樹脂は、小さくは、1000原子質量単位(AMU)、2000AMU、2200AMU、3000AMU、3800AMU、4000AMU、大きくは、4500AMU、4800AMU、5000AMU、7500AMU、10000AMUの、又は1000AMUから10000AMU、2000AMUから5000AMU、若しくは3800AMUから4800AMUなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい重量平均分子量を有し、第二のポリシロキサン樹脂は、小さくは、900原子質量単位(AMU)、950AMU、1000AMU、大きくは、1150AMU、2000AMU、2500AMU、5000AMUの、又は900AMUから5000AMU、900AMUから2000AMU、若しくは950AMUから1150AMUなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい重量平均分子量を有する。

10

20

【 0 0 4 1 】

ある代表的な実施形態では、ケイ素系物質は、1つ以上のオルガノアルコキシシランを含むか、又はそれから形成される。代表的なオルガノアルコキシシランとしては、メチルトリメトキシシラン(MTMOS)、メチルトリエトキシシラン(MTEOS)、ジメチルジエトキシシラン(DMDEOS)、フェニルトリエトキシシラン(PTEOS)、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、及び上述のものの組み合わせが挙げられる。

【 0 0 4 2 】

ある代表的な実施形態では、ケイ素系物質は、2つ以上の予備形成ポリシロキサン樹脂のブレンドを含む。より特定の実施形態では、2つ以上のポリシロキサン樹脂が組み合わされて、アルキル及びアリール基に含有される炭素原子の総数に基づいて、10%超、12%、20%超、21%、25%、30%超、31%、40%、50%、60%、70%、75%、80%、85%、90%、95%、99%、100%未満、100%であるか、又は10%超から100%、12%から100%、20%超から100%、若しくは30%超から100%未満などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよいアルキル基に含有される炭素原子の総数が提供されてもよい。

30

【 0 0 4 3 】

別のより特定の実施形態では、ケイ素系物質は、各々二官能性シランを含む1つ以上のポリシロキサン樹脂を含んでもよい。代表的な二官能性シランは、ジメチルシロキサンである。より特定の実施形態では、ケイ素系物質は、シロキサンの総モル数のモルパーセントとして、少なくは、0%、0.1%、0.5%、1%、2%、多くは、5%、10%、15%、20%の、又は0から20%若しくは0.1%から2%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい二官能性シロキサンを含んでもよい。

40

【 0 0 4 4 】

c. 触媒

ある代表的な実施形態では、製剤は、1つ以上の触媒を含む。ある実施形態では、触媒は、熱活性化触媒である。本明細書で用いられる場合、熱活性化触媒とは、高められた温

50

度など、特定の温度又はそれ以上で活性化される触媒を意味する。例えば、ある温度（室温など）では、組成物は低分子量を維持しており、従って、表面に対する良好な平坦化能が得られる。温度が上昇されると（50 超など）、熱活性化触媒は、2つのSi-OH官能基間の縮合反応を触媒し、その結果、より密な構造となり、場合によっては、全体的な性能が向上される。適切な縮合触媒は、安定なシリケート溶液を維持することを補助することができる触媒を含む。金属イオンを含まない代表的な触媒は、アンモニウム化合物（四級アンモニウム塩など）、アミン、ホスホニウム化合物、又はホスフィン化合物などのオニウム化合物及び求核剤を含み得る。

【0045】

1つの代表的な実施形態では、触媒は、光酸、光酸発生剤、又は金属系触媒ではない。

ある実施形態では、触媒は、比較的分子的に「小さい」か、又は四級アンモニウム塩などの比較的小さいカチオンを生成する触媒である。ある実施形態では、1つ以上の触媒は、酢酸テトラメチルアンモニウム（TMAA）、水酸化テトラメチルアンモニウム（TMAH）、水酸化テトラブチルアンモニウム（TBAH）、酢酸テトラブチルアンモニウム（TBAA）、酢酸セチルトリメチルアンモニウム（CTAA）、硝酸テトラメチルアンモニウム（TMAN）、その他のアンモニウム系触媒、アミン系及び/又はアミン生成触媒、並びにこれらの組み合わせから選択される。その他の代表的な触媒としては、塩化（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、水酸化（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、酢酸（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、ギ酸（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、硝酸（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、安息香酸（2-ヒドロキシエチル）トリメチルアンモニウム、ギ酸テトラメチルアンモニウム、及びこれらの組み合わせが挙げられる。その他の代表的な触媒としては、塩化（カルボキシメチル）トリメチルアンモニウム、水酸化（カルボキシメチル）トリメチルアンモニウム、ギ酸（カルボキシメチル）トリメチルアンモニウム、及び酢酸（カルボキシメチル）トリメチルアンモニウムが挙げられる。

【0046】

1つの代表的な実施形態では、製剤は、少なくとも、0.001重量%、0.004重量%、0.01重量%、0.1重量%、0.3重量%、多くは、0.5重量%、1重量%、2重量%、5重量%、若しくは10重量%の、又は0.1重量%から10重量%若しくは1重量%から2重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であつてもよい1つ以上の触媒を含む。

【0047】

ある代表的な実施形態では、1つ以上の触媒は、TMANを含む。TMANは、TMANを水、若しくはエタノール、プロピレングリコールプロピルエーテル（PGPE）などの有機溶媒に溶解することによって、又はTMAA若しくはTMAHを硝酸を用いることによってTMANに変換することによって提供されてよい。

【0048】

d. 界面活性剤

ある代表的な実施形態では、製剤は、1つ以上の界面活性剤を含む。界面活性剤は、表面張力を低下させるために添加されてよい。本明細書で用いられる場合、「界面活性剤」の用語は、H₂O若しくは他の液体に溶解された場合に表面張力を低下させる、又は2つの液体間若しくは液体と固体との間の界面張力を低下させるいずれの化合物をも意味する。考慮される界面活性剤としては、少なくとも1つのアニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、非イオン性界面活性剤、双性イオン性界面活性剤、又はこれらの組み合わせが挙げられ得る。界面活性剤は、直接組成物中に溶解されてよく、又は最終組成物の形成前に、組成物成分（少なくとも1つのケイ素系化合物、少なくとも1つの触媒、少なくとも1つの溶媒）のうちの1つと共に添加されてよい。考慮される界面活性剤としては、BYK307（ポリエーテル修飾ポリジメチルシロキサン、BYK-Chemie社）などのポリエーテル修飾ポリジメチルシロキサン、ドデシルベンゼンスルホネート、テトラプロピレンベンゼンスルホネート、ドデシルベンゼンスルホネートなどのスルホネート、

Fluorad FC-93及びL-18691(3M社)などのフッ素化アニオン性界面活性剤、FC-4430(3M社)、FC-4432(3M社)、及びL-18242(3M社)などのフッ素化非イオン性界面活性剤、臭化ドデシルトリメチルアンモニウム又は臭化セチルトリメチルアンモニウムなどの四級アミン、アルキルフェノキシポリエチレンオキシドアルコール、アルキルフェノキシポリグリシドール、アセチリン系アルコール(acetylinic alcohols)、Tergitol TMN-6(Dow社)及びTergitol minifoam 2x(Dow社)などのポリグリコールエーテル、Brij-30(Aldrich社)、Brij-35(Aldrich社)、Brij-58(Aldrich社)、Brij-72(Aldrich社)、Brij-76(Aldrich社)、Brij-78(Aldrich社)、Brij-98(Aldrich社)、及びBrij-700(Aldrich社)などのポリオキシエチレン脂肪エーテル、ココアミドプロピルベタインなどのベタイン、スルホベタイン、並びにジオクタノイルホスファチジルコリン及びレシチンなどの合成リン脂質、並びにこれらの組み合わせが挙げられ得る。

10

【0049】

1つの代表的な実施形態では、製剤は、少なくは、0.001重量%、0.005重量%、0.01重量%、0.05重量%、多くは、0.1重量%、0.25重量%、0.5重量%、1重量%の、又は0.001重量%から1重量%若しくは0.001重量%から0.25重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい1つ以上の界面活性剤を含む。組成物に添加される組成物修飾成分の適切な量の決定は、a)膜中の欠陥を最小限に抑えること、及び/又はb)良好な接着性と望ましい膜特性との間のバランスの良い膜とすることを含むいくつかの因子に依存する。

20

【0050】

e. その他の添加剤

ある代表的な実施形態では、製剤は、接着促進剤、末端封止剤、及び有機酸などの1つ以上のさらなる添加剤を含んでよい。

【0051】

1つの代表的な実施形態では、製剤は、層、コーティング、又は膜が周囲の基材、層、コーティング、膜、及び/又は表面に接着する能力に影響を与える目的で、1つ以上の接着促進剤を含む。接着促進剤は、a)焼成などのオプトエレクトロニクスコンポーネントの製造に一般的に用いられる温度での熱処理後に熱安定性を有すること、及び/又はb)物質層間の静電及びクーロン相互作用を促進し、さらに、ある実施形態では、理解されるファンデルワールス相互作用を促進することのうちの少なくとも1つであってよい。代表的な接着促進剤としては、アミノプロピルトリエトキシシラン(APTEOS)及びAPTEOSの塩、ビニルトリエトキシシラン(VTEOS)、グリシドキシプロピルトリエトキシシラン(GLYMO)、並びにメタクリルオキシプロピルトリエトキシシラン(MPTEOS)が挙げられる。その他の代表的な接着促進剤としては、3-(トリエトキシシリル)プロピルコハク酸無水物、ジメチルジヒドロキシシラン、メチルフェニルジヒドロキシシラン、又はこれらの組み合わせが挙げられる。1つの代表的な実施形態では、製剤は、少なくは、0.001重量%、0.01重量%、0.1重量%、0.26重量%、多くは、1重量%、2.6重量%、5重量%、10重量%、20重量%の、又は0.001重量%から20重量%若しくは0.26重量%から2.6重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい1つ以上の接着促進剤を含む。

30

40

【0052】

1つの代表的な実施形態では、製剤は、ポリシロキサン分子上のシラノール基と反応することができる単一の反応性官能基を含む一官能性シランなどの1つ以上の末端封止剤を含む。代表的な末端封止剤としては、トリメチルエトキシシラン、トリエチルメトキシシラン、トリメチルアセトキシシラン、トリメチルシランなどのトリアルキルシランが挙げられる。1つの代表的な実施形態では、製剤は、ポリシロキサンの総モル数のパーセントとして、少なくは、0.1%、0.5%、1%、2%、多くは、5%、10%、15%、

50

20%、若しくは25%の、又は2%から20%若しくは5%から10%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい1つ以上の末端封止剤を含む。

【0053】

1つの代表的な実施形態では、製剤は、1つ以上の有機酸を含む。ある実施形態では、有機酸添加剤は、揮発性であるか、又は高温で分解し、及び製剤の安定化を補助する。代表的な有機酸としては、p-トルエンスルホン酸、クエン酸、ギ酸、酢酸、及びトリフルオロ酢酸が挙げられる。1つの代表的な実施形態では、製剤は、少なくとも、0.1重量%、0.5重量%、1重量%、2重量%、多くは、5重量%、10重量%、15重量%、20重量%、若しくは25重量%の、又は2重量%から20重量%若しくは5重量%から10重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい1つ以上の有機酸を含む。

10

【0054】

II. ポリシロキサンコーティング

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサン製剤は、エレクトロニクス、オプトエレクトロニクス、若しくはディスプレイデバイスの中又は上に位置する表面上にポリシロキサンコーティングを形成する。

【0055】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサン製剤は、光透過性コーティングを形成する。より特定の実施形態では、光透過性コーティングは、400から1000nmの可視光波長範囲内の光に対する透過性を有する。ある実施形態では、光透過率は、80%、85%、90%、95%、97%、98%、99%、若しくはそれ以上という高さであるか、又は上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい。

20

【0056】

ある代表的な実施形態では、1つ若しくはポリマー樹脂は、所望される屈折率を得るように選択される。1つの代表的な実施形態では、比較的低い屈折率を有するポリシロキサンコーティングを作製するために、100%メチルトリエトキシシラン樹脂など、比較的低い屈折率を有する樹脂の相対的モルパーセントが比較的高い。別の代表的な実施形態では、比較的高い屈折率を有するポリシロキサンコーティングを作製するために、100%フェニルトリエトキシシラン樹脂など、比較的高い屈折率を有する樹脂の相対的モルパーセントが比較的高い。別の代表的な実施形態では、比較的高い屈折率を有する第一の樹脂及び比較的低い屈折率を有する第二の樹脂の相対的モル比率は、第一及び第二の樹脂の屈折率の間の所望される屈折率を有するポリシロキサンコーティングが作製されるように選択される。

30

【0057】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサン製剤は、小さくは、1.4未満、1.4、1.45、大きくは、1.5、1.55、1.56、1.6である、又は1.4未満から1.6若しくは1.4から1.56などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい屈折率を有するコーティングを形成する。

【0058】

本開示のコーティングを提供することができる代表的なデバイスとしては、CMOSイメージセンサー、トランジスタ、発光ダイオード、カラーフィルター、光起電力セル、フラットパネルディスプレイ、湾曲ディスプレイ、タッチスクリーンディスプレイ、x線検出器、アクティブ又はパッシブマトリックスOLEDディスプレイ、アクティブマトリックス薄膜液晶ディスプレイ、電気泳動ディスプレイ、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

40

【0059】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、不動態化層、バリア層、平坦化層、又はこれらの組み合わせを形成する。

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、小さくは、0.1µm、

50

0.3 μm、0.5 μm、1 μm、1.5 μm、大きくは、2 μm、2.5 μm、3 μm、3.5 μm、4 μm、若しくはそれ以上、又は上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい厚さを有する。

【0060】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、製剤を基材に適用し、続いて製剤を硬化することによって形成される。製剤を適用する代表的な方法としては、スピンコーティング、スプレーコーティング、スロットダイコーティング技術が挙げられる。硬化とは、ケイ素系オリゴマーなどのケイ素系物質が、触媒の存在下で反応して加水分解及び他のオリゴマーとの縮合を起こし、より高い分子量のポリマー又はマトリックスを形成する重合プロセスを意味する。1つの代表的な実施形態では、焼成工程が提供されて、溶媒の少なくとも一部又はすべてが除去される。ある実施形態では、焼成工程は、短くは、1分間、5分間、10分間、15分間、長くは、20分間、30分間、45分間、60分間、若しくはそれ以上であり、低くは、100、200、220、高くは、250、275、300、320、350、若しくはそれ以上の温度である。1つの代表的な実施形態では、硬化工程が提供されて、熱活性化触媒を活性化することなどにより、少なくとも1つのケイ素系物質が重合される。ある実施形態では、硬化工程は、短くは、10分間、15分間、20分間、長くは、30分間、45分間、60分間、若しくはそれ以上であり、低くは、250、275、300、高くは、320、350、375、380、400、若しくはそれ以上の温度である。

【0061】

ある代表的な実施形態では、製剤の複数の層が、続けて適用され、硬化されて、多層コーティングが形成される。ある代表的な実施形態では、多層コーティングは、2、3、又は4層以上のポリシロキサンコーティング層を含む。

【0062】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、形成されたポリシロキサンコーティング上での追加のコーティング若しくは層の硬化又は堆積など、複数の加熱工程に対して耐性を有する。

【0063】

III. ケイ素系化合物の前処理

ある代表的な実施形態では、ケイ素系化合物は、2つ以上の重合工程から形成されてよい。

【0064】

1つの代表的な実施形態では、オリゴマー樹脂などの第一のケイ素系樹脂は、1つ以上のオルガノアルコキシシランの第一の重合工程から形成される。代表的なオルガノアルコキシシランとしては、メチルトリメトキシシラン(MTMOs)、メチルトリエトキシシラン(MTEOs)、ジメチルジエトキシシラン(DMDEOs)、フェニルトリエトキシシラン(PTEOs)、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、及び上述のものの組み合わせが挙げられる。代表的な第一の重合工程としては、無機酸若しくは有機酸で触媒される重合などの酸性触媒重合、又はアンモニウム化合物、アミン、ホスホニウム化合物、若しくはホスフィン化合物で触媒される重合などの塩基触媒重合が挙げられる。代表的な無機酸としては、硝酸、塩酸、硫酸、及びフッ化水素酸が挙げられる。代表的な有機酸としては、スルホン酸、トリフルオロスルホン酸、及びカルボン酸、さらには高められた温度への暴露によってスルホン酸を発生させることができる熱酸発生剤(TAG)が挙げられる。代表的な塩基性触媒としては、テトラオルガノアンモニウム化合物及びテトラオルガノホスホニウム化合物が挙げられ、酢酸テトラメチルアンモニウム(TMAA)、水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)、水酸化テトラブチルアンモニウム(TBAH)、酢酸テトラブチルアンモニウム(TBAA)、酢酸セチルトリメチルアンモニウム(CTAA)、硝酸テトラメチルアンモニウム(TMAN)、トリフェニルアミン、トリオクチルアミン、トリドデシルアミン、トリエタノールアミン、酢酸テトラメチルホスホニウム、水酸化テトラメチルホスホニウム、トリフェニルホスフィン、

トリメチルホスフィン、トリオクチルホスフィン、及びこれらの組み合わせなどである。1つの代表的な実施形態では、触媒は、硝酸などの無機酸である。

【0065】

1つの代表的な実施形態では、第一のケイ素系樹脂は、小さくは、900原子質量単位(AMU)、950AMU、1000AMU、1100AMU、1150AMU、大きくは、2000AMU、3000AMU、4000AMU、5000AMU、10000AMUの、又は900AMUから10000AMU、1000AMUから10000AMU、若しくは900AMUから5000AMUなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい重量平均分子量を有する。

【0066】

1つの代表的な実施形態では、第二のケイ素系樹脂は、第一のポリマー樹脂の第二の重合から形成される。代表的な第二の重合工程としては、第一の重合工程に関して述べたように、酸性触媒重合及び塩基触媒重合が挙げられ、アンモニウム化合物、アミン、ホスホニウム化合物、又はホスフィン化合物で触媒される重合などである。代表的な無機酸としては、硝酸、塩酸、硫酸、及びフッ化水素酸が挙げられる。代表的な有機酸としては、スルホン酸、トリフルオロスルホン酸、及びカルボン酸、さらには高められた温度への暴露によってスルホン酸を発生させることができる熱酸発生剤(TAG)が挙げられる。代表的な塩基性触媒としては、テトラオルガノアンモニウム化合物及びテトラオルガノホスホニウム化合物が挙げられ、酢酸テトラメチルアンモニウム(TMAA)、水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)、水酸化テトラブチルアンモニウム(TBAH)、酢酸テトラブチルアンモニウム(TBAA)、酢酸セチルトリメチルアンモニウム(CTAA)、硝酸テトラメチルアンモニウム(TMAN)、トリフェニルアミン、トリオクチルアミン、トリドデシルアミン、トリエタノールアミン、酢酸テトラメチルホスホニウム、水酸化テトラメチルホスホニウム、トリフェニルホスフィン、トリメチルホスフィン、トリオクチルホスフィン、及びこれらの組み合わせなどである。1つの代表的な実施形態では、触媒は、TMAH又はTMANなどのテトラオルガノアンモニウム化合物である。

【0067】

第二のケイ素系樹脂は、第一のケイ素系樹脂よりも大きい重量平均分子量を有する。1つの代表的な実施形態では、第二のケイ素系樹脂は、小さくは、1000AMU、1100AMU、1150AMU、大きくは、2000AMU、3000AMU、4000AMU、5000AMU、10000AMUの、又は1000AMUから5000AMU、2000AMUから5000AMU、若しくは2000AMUから4000AMUなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい重量平均分子量を有する。

【0068】

1つの代表的な実施形態では、第二の重合は、乳酸エチル、プロピレングリコールプロピルエーテル(PGPE)、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート(PGMEA)、又はこれらの組み合わせなどの溶媒中で行われる。第一のケイ素系樹脂は、少なくとも、10重量%、20重量%、30重量%、40重量%、多くは、45重量%、50重量%、60重量%の、又は10重量%から60重量%若しくは30重量%から45重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい濃度で添加される。塩基性触媒は、少なくとも、100ppm、200ppm、250ppm、多くは、300ppm、400ppm、500ppm、若しくはそれ以上の、又は100ppmから500ppm若しくは200ppmから300ppmなどの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい濃度で添加される。

【0069】

1つの代表的な実施形態では、第二の重合は、低くは、60、65、70、75、高くは、80、90、100の、又は60から100若しくは70から100などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい温度で行われる。より特定の実施形態では、第二の重合混合物は、短くは、1時間、2時

10

20

30

40

50

間、3時間、長くは、5時間、8時間、10時間、又は1時間から10時間、2時間から10時間、2時間から8時間、若しくは2から3時間などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい時間にわたってその温度に保持される。

【0070】

1つの代表的な実施形態では、上述したようなポリシロキサン製剤は、第二のケイ素系樹脂及び1つ以上の溶媒を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、上述したような1つ以上のさらなるケイ素系物質を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、1つ以上の触媒を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、1つ以上の界面活性剤を含む。ある代表的な実施形態では、製剤はさらに、接着促進剤、可塑剤、有機酸、及び一官能性シランなどの1つ以上のさらなる添加剤を含む。

10

【0071】

1つの代表的な実施形態では、第二のケイ素系樹脂を含むポリシロキサン製剤から形成されるコーティングは、ポリシロキサン製剤を適用することによって形成される。1つの代表的な実施形態では、コーティングは、低くは、350、360、370°、高くは、375、380、385、390、若しくはそれ以上の温度でポリシロキサン製剤を硬化することによって形成される。

【0072】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、ガラス若しくは Si_3N_4 でコーティング又はキャップした基材などの基材に製剤を適用し、その製剤を硬化することによって形成される。1つの代表的な実施形態では、コーティングは、低くは、350、360、370°、高くは、375、380、385、390、若しくはそれ以上の温度でポリシロキサン製剤を硬化することによって形成される。

20

【0073】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、小さくは、0.1 μm 、0.2 μm 、0.5 μm 、0.8 μm 、1 μm 、1.2 μm 、1.5 μm 、2 μm 、大きくは、3 μm 、4 μm 、5 μm 、10 μm 、若しくはそれ以上の、又は0.1 μm から10 μm 、1 μm から5 μm 、1.2 μm から5 μm 、若しくは4 μm 以上などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい厚さを有する。

【0074】

ある代表的な実施形態では、空气中、350で1時間において、僅かに0.5重量%、僅かに0.2重量%、僅かに0.1重量%、僅かに0.09重量%、僅かに0.05重量%、若しくは僅かに0.02重量%の、又は0.5重量%から0.02重量%若しくは0.1重量%から0.05重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよいガス放出量。ある代表的な実施形態では、空气中、390で1時間において、僅かに0.5重量%、僅かに0.2重量%、僅かに0.1重量%、僅かに0.09重量%、僅かに0.05重量%、若しくは僅かに0.02重量%の、又は0.5重量%から0.02重量%若しくは0.1重量%から0.05重量%などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよいガス放出量。

30

【0075】

ある代表的な実施形態では、ポリシロキサンコーティングは、小さくは、約2.8、2.9、3.0、大きくは、約3.1、3.2の、又は2.8から3.2若しくは3.0から3.2などの上述の値のいずれか2つの間で定められるいずれの範囲内であってもよい誘電率を有する。

40

【0076】

実施例

例1 - アルキル炭素の含有量が異なる製剤

ポリマーA：フェニルTEOSを、酸触媒及び水の存在下、イソプロピルアルコール溶媒中、100で24時間反応させた。反応後、溶媒を留去して、固体ポリマーを得た。次に、ポリマーを、適切な溶媒系から溶解及び再析出させ、50で一晩真空乾燥し、粉碎して粉末とした。

50

【 0 0 7 7 】

ポリマー B : 所定量のフェニル T E O S 及びメチル T E O S を、酸触媒及び水及び 0 . 5 % D M D E O S の存在下、イソプロピルアルコール溶媒中、1 0 0 で 2 4 時間反応させた。反応後、溶媒を留去して、固体ポリマーを得た。次に、ポリマーを、適切な溶媒系から溶解及び再析出させ、5 0 で一晩真空乾燥し、粉碎して粉末とした。

【 0 0 7 8 】

製剤 1 : 最終溶液重量に対して、1 ~ 5 重量 % の界面活性剤及び 1 ~ 5 重量 % の触媒の存在下、P G M E A 中、9 0 重量 % のポリマー B 及び 1 0 重量 % のポリマー A 。スリット、ローラー、スプレー、又はスピンコーティングプロセスによって堆積されるべき所望される厚さを得るために、得られた製剤を、P G M E A で希釈する。

10

【 0 0 7 9 】

製剤 2 : 9 5 % のポリマー B 及び 5 % のポリマー A を用いた以外は、製剤 1 と同様にして製剤を作製した。

製剤 3 : 8 5 % のポリマー B 及び 1 5 % のポリマー A を用いた以外は、製剤 1 と同様にして製剤を作製した。

【 0 0 8 0 】

製剤 4 : 5 0 % のポリマー B 及び 5 0 % のポリマー A を用いた以外は、製剤 1 と同様にして製剤を作製した。この製剤は、接着性の問題を有することが見出され、及び化学薬品に対する耐性を有していなかった。

【 0 0 8 1 】

20

比較製剤 C : 等モル比の M T E O S 及び P T E O S 、並びに約 0 . 3 m o l % の D M D E O S を含むポリシロキサン樹脂、オハイオ州ペリーズバーグの T e c h n e g l a s T e c h n i c a l P r o d u c t s 社から入手可能である G R - 1 5 0 F を、所望される樹脂固体充填 % で P G M E A 溶媒中に溶解した。P G M E A 溶媒、少量の希 T M A N 水溶液、及び B Y K 界面活性剤を添加することにより、コーティング製剤を形成した。各コーティングを、1 0 0 0 ~ 2 5 0 0 r p m で基材上にスピンコーティングして所望される厚さの膜を堆積させ、類似の条件下で硬化した。コーティングを、光学顕微鏡下、硬化完了直後にマイクロクラックが存在するかどうかについて、及び数日後に潜在的クラックが存在するかどうかについて検査した。

【 0 0 8 2 】

30

代表的な製剤 5 ~ 7 : P T E O S から誘導されたポリシロキサン樹脂 G R - 9 5 0 F を、等モル比の M T E O S 及び P T E O S 、並びに約 0 . 3 m o l % の D M D E O S を含むポリシロキサン樹脂 G R - 1 5 0 F と混合した。オハイオ州ペリーズバーグの T e c h n e g l a s T e c h n i c a l P r o d u c t s 社から入手可能である両方の樹脂を、所望される重量比及び所望される固体充填 % で P G M E A 溶媒中に溶解した。製剤 5 の場合、G R - 9 5 0 : G R - 1 5 0 F の比は、1 : 9 であり、製剤 6 の場合、比は、1 : 4 であり、製剤 7 の場合、比は、1 : 1 であった。P G M E A 溶媒、少量の希 T M A N 水溶液、及び B Y K 界面活性剤を添加することにより、コーティング製剤を形成した。各コーティングを、1 0 0 0 ~ 2 5 0 0 r p m で基材上にスピンコーティングして所望される厚さの膜を堆積させ、類似の条件下で硬化した。コーティングを、光学顕微鏡下、硬化完了直後にマイクロクラックが存在するかどうかについて、及び数日後に潜在的クラックが存在するかどうかについて検査した。

40

【 0 0 8 3 】

代表的な製剤 8 ~ 1 0 : 等モル比の M T E O S 及び P T E O S 、並びに約 5 m o l % (製剤 8) 、1 0 m o l % (製剤 9) 、又は 1 5 m o l % (製剤 1 0) の D M D E O S を含むオハイオ州ペリーズバーグの T e c h n e g l a s T e c h n i c a l P r o d u c t s 社から入手したポリシロキサン樹脂を、所望される樹脂固体充填 % で P G M E A 溶媒中に溶解した。P G M E A 溶媒、少量の希 T M A N 水溶液、及び B Y K 界面活性剤を添加することにより、各樹脂のコーティング製剤を形成した。各コーティングを、1 0 0 0 ~ 2 5 0 0 r p m で基材上にスピンコーティングして所望される厚さの膜を堆積させ、類似

50

の条件下で硬化した。コーティングを、光学顕微鏡下、硬化完了直後にマイクロクラックが存在するかどうかについて、及び数日後に潜在的クラックが存在するかどうかについて検査した。

【 0 0 8 4 】

代表的な製剤 1 1 及び 1 2 : ポリシロキサン樹脂 GR - 1 5 0 F を、第二のポリシロキサン樹脂 GR - 9 5 0 F、並びに、等モル比の M T E O S 及び P T E O S、並びに約 1 0 m o l % の D M D E O S を含む第三のポリシロキサン樹脂と、9 5 / 2 . 5 / 2 . 5 (製剤 1 1) 及び 9 0 / 5 / 5 (製剤 1 2) の比で混合し、所望される樹脂固体充填%で P G M E A 溶媒中に溶解した。P G M E A 溶媒、少量の希 T M A N 水溶液、及び B Y K 界面活性剤を添加することにより、各樹脂の組み合わせのコーティング製剤を形成した。各コーティングを、1 0 0 0 ~ 2 5 0 0 r p m で基材上にスピンコーティングして所望される厚さの膜を堆積させ、類似の条件下で硬化した。コーティングを、光学顕微鏡下、硬化完了直後にマイクロクラックが存在するかどうかについて、及び数日後に潜在的クラックが存在するかどうかについて検査した。4 0 0 で 3 0 分間の硬化後、製剤 1 1 から形成したコーティングは、2 . 4 μ m までクラックを発生しない状態を維持し、一方製剤 1 2 から形成したコーティングは、2 . 8 μ m までクラックを発生しない状態を維持した。

10

【 0 0 8 5 】

製剤中のアリール及びアルキル炭素の割合を、以下の表 1 に示す。製剤 1 3 及び 1 4 は、以下の例 1 2 及び 1 3 を意味する。

【 0 0 8 6 】

20

【表 1】

表 1：アルキル炭素及びアリール炭素の割合

樹脂／製剤	MTMOS mol.%	MTEOS mol.%	DMDEOS mol.%	PTEOS mol.%	アルキル C%	アリール C%
GR-950F	0%	0%	0%	100%	0%	100%
GR-150F	0.00%	49.85%	0.30%	49.85%	14%	86%
GR-100F	0%	70%	0%	30%	28%	72%
GR-630	0%	30%	40%	30%	38%	62%
GR-650F	0%	100%	0%	0%	100%	0%
GR-654L	100%	0%	0%	0%	100%	0%
GR-908F	0%	25%	0%	75%	5%	95%
GR-950F+GR-150F 10/90 ブレンド	0%	45%	0%	55%	12%	88%
GR-950F+GR-150F 50/50 ブレンド	0%	25%	0%	75%	5%	95%
GR-950F+GR-650F 10/90 ブレンド	0%	90%	0%	10%	60%	40%
GR-950F+GR-650F 50/50 ブレンド	0%	50%	0%	50%	14%	86%
GR-150F+GR-650F 10/90 ブレンド	0%	95%	0%	5%	76%	24%
GR-150F+GR-650F 50/50 ブレンド	0%	75%	0%	25%	33%	67%
ポリマーA	0%	0%	0%	100%	0%	100%
ポリマーB	0.00%	49.75%	0.50%	49.75%	15%	85%
比較製剤 C	0.00%	49.85%	0.30%	49.85%	14%	86%
製剤 1	0.00%	44.78%	0.45%	54.78%	12%	88%
製剤 2	0.00%	47.26%	0.48%	52.26%	13%	87%
製剤 3	0.00%	42.29%	0.43%	57.29%	11%	89%
製剤 4	0.00%	24.88%	0.25%	74.88%	5%	95%
製剤 5	0%	45%	0.27%	55%	12%	88%
製剤 6	0%	40%	0.24%	60%	10%	90%
製剤 7	0%	25%	0.15%	75%	5%	95%
製剤 8	0%	47.5%	5%	47.5%	17%	83%
製剤 9	0%	45%	10%	45%	19%	81%
製剤 10	0%	42.5%	15%	42.5%	22%	78%
製剤 11	0%	48.5%	0.5%	51.0%	14%	86%
製剤 12	0%	47.1%	0.8%	52.1%	13%	87%
製剤 13	0%	100%	0%	0%	100%	0%
製剤 14	0%	100%	0%	0%	100%	0%

【 0 0 8 7 】

表 1 に示されるように、20%超のアルキル炭素を有する組成物を作製した。さらに表 1 に示されるように、様々なレベルの二官能性シロキサン含有量を有する組成物も作製した。

【 0 0 8 8 】

例 2 - クラックを含まない膜厚に対するポリシロキサン樹脂のブレンドの影響

例 1 で作製した比較製剤 C (「比較製剤 C」) 及び製剤 5 (「製剤 5」) のサンプルを、以下の表 2 に示されるように、シリコン基材上に様々な厚さで堆積させた。次に、2つの反復実験サンプルを、窒素雰囲気中、380℃で30分間硬化し、続いて、空气中、380℃で10分間の第二の硬化を行った。各硬化の後に、膜を検査し、膜にクラックが発生したかどうかを判定した。結果を以下の表 2 に示す。

【 0 0 8 9 】

【 表 2 】

表 2 : クラックの結果—シリコン基材

物質	厚さ (μm)	N ₂ 中 380℃で 30 分間硬化	空気中 380℃で 10 分間硬化
比較製剤 C	2.3	クラックなし	クラックなし
比較製剤 C			
比較製剤 C	2.7	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
比較製剤 C	3.1	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
比較製剤 C	3.5	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
製剤 5	2.3	クラックなし	クラックなし
製剤 5			
製剤 5	2.7	クラックなし	クラックなし
製剤 5			
製剤 5	3.1	クラックなし	クラックなし
製剤 5			
製剤 5	3.5	僅かなクラック	クラックあり
製剤 5			

10

20

【 0 0 9 0 】

表 2 に示されるように、比較製剤 C のサンプルは、シリコン上において、約 2 . 3 μm のクラック限界を有していた。対照的に、製剤 5 のサンプルは、約 3 . 1 μm のクラック限界を有していた。

【 0 0 9 1 】

続いて、例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 のサンプルを、以下の表 3 に示されるように、銅 / 窒化ケイ素基材上に様々な厚さで堆積させた。次に、2 つの反復実験サンプルを、窒素雰囲気中、380 で 30 分間硬化し、続いて、空気中、380 で 10 分間の第二の硬化を行った。各硬化の後に、膜を検査し、膜にクラックが発生したかどうかを判定した。結果を以下の表 3 に示す。

30

【 0 0 9 2 】

【表 3】

表 3：クラックの結果－銅／窒化ケイ素基材

物質	厚さ (μm)	N ₂ 中 380℃で 30 分間硬化	空气中 380℃で 10 分間硬化
比較製剤 C	2.3	クラックなし	粒子上にクラック あり
比較製剤 C			
比較製剤 C	2.7	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
比較製剤 C	3.1	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
比較製剤 C	3.5	クラックあり	クラックあり
比較製剤 C			
製剤 5	2.3	クラックなし	クラックなし
製剤 5			
製剤 5	2.7	クラックなし	O k－ガラス欠陥上 に小クラック
製剤 5			
製剤 5	3.1	クラックあり	クラックあり
製剤 5			
製剤 5	3.5	クラックあり	クラックあり
製剤 5			

10

20

【 0 0 9 3 】

表 3 に示されるように、比較製剤 C のサンプルは、Cu / SiN 上において、約 2 . 3 μm のクラック限界を有していた。対照的に、製剤 5 のサンプルは、約 3 . 1 μm のクラック限界を有していた。

【 0 0 9 4 】

次に、低い硬化温度の 3 5 0 について調べた。例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 のサンプルを、続いて、以下の表 4 に示されるように、シリカ又はガラス基材上に様々な厚さで堆積させた。サンプルを、窒素中、3 5 0 で 1 時間、表 4 に示される厚さで硬化し、膜を形成した。硬化後、膜を目視検査し、膜にクラックが発生したかどうかを判定した。結果を以下の表 4 に示す。

30

【 0 0 9 5 】

【表 4】

表 4：クラックの結果－硬化温度 3 5 0℃

サンプル	基材	厚さ (μm)	結果
製剤 5	Si	3.1	クラックなし
製剤 5	Si	3.6	クラックあり
製剤 5	ガラス	2.6	クラックなし
製剤 5	ガラス	3	クラックなし
比較製剤 C	Si	1.3	クラックあり

40

【 0 0 9 6 】

表 4 に示されるように、製剤 5 において硬化温度を 3 5 0 に低下させた結果、シリコン上では 3 . 1 μm 、ガラス上では 3 μm もの厚さまでクラックが見られなかった。対照的に、比較製剤 C のサンプルでは、僅かに 1 . 3 μm でクラックが発生した。

50

【 0 0 9 7 】

3 . 1 μm 及び3 . 4 μm の厚さの製剤5の膜を、上記のようにシリコン又はガラス上で硬化し、硬化の2、7、11、及び21日後に、潜在的クラックが存在するかどうかについて目視検査した。結果を表5に示す。

【 0 0 9 8 】

【表5】

表5：クラックの結果—経時

サンプル	基材	厚さ (μm)	硬化の2日後	硬化の7日後	硬化の 11日後	硬化の 21日後
製剤5	Si	3.1	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	Si	3.1	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	Si	3.4	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	Si	3.4	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	ガラス	3.1	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	ガラス	3.1	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	ガラス	3.4	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤5	ガラス	3.4	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし

10

【 0 0 9 9 】

表5に示されるように、製剤5では、シリコン又はガラス上のいずれにおいても、3 . 4 μm もの厚さで、硬化後21日間にわたってクラックが発生しなかった。

20

次に、約3 . 6 μm での製剤5の類似の例を、空气中、様々な温度で硬化した。結果を表6に示す。

【 0 1 0 0 】

【表6】

表6：クラックの結果—空气中様々な温度

サンプル	硬化温度	厚さ(μm)	結果
製剤5	250°C	3.62	クラックなし
製剤5	275°C	3.61	クラックなし
製剤5	300°C	3.6	クラックあり
製剤5	350°C	3.6	クラックあり
製剤5	380°C	3.6	クラックあり

30

【 0 1 0 1 】

表6に示されるように、温度を低下させることにより、300 未満の温度では、約3 . 6 μm もの厚さであっても、クラックの形成が引き起こされていない。

例1で作製した比較製剤C及び製剤5のサンプルを、以下の表7に示されるように、シリコン又はガラス基材上に様々な厚さで堆積させた。次に、サンプルを、窒素雰囲気中、380 で30分間硬化し、続いて、第二の同一の硬化を行った。各硬化の後に、膜を検査し、膜にクラックが発生したかどうかを判定した。結果を以下の表7に示す。

【 0 1 0 2 】

40

【表 7】

表 7：クラックの結果

物質	RPM	厚さ (Å)	シリコンー第一 の硬化	シリコンー第二 の硬化	ガラスー第二の硬化
製剤 5	1100	35389	クラックあり	ー	クラックあり
製剤 5	1300	32374	クラックあり	ー	エッジ部にのみクラックあり
製剤 5	1500	30081	クラックあり	ー	クラックなし
製剤 5	1500	29715	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤 5	1200	33478	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤 5	1000	37156	クラックなし	クラックなし	クラックなし
製剤 5	800	42216	クラックなし	クラックなし	クラックなし

10

【 0 1 0 3 】

例 1 で作製した比較製剤 C、並びに製剤 5、6、及び 7 を、以下の表 8 に示されるように、シリコン又はガラス基材上に様々な厚さで堆積させた。次に、サンプルを、350 で 60 分間硬化した。硬化後、膜を目視検査し、膜にクラックが発生したかどうかを判定した。結果を以下の表 8 に示す。

【 0 1 0 4 】

【表 8】

表 8：クラックの結果

物質	基材	RPM	厚さ(μm)	結果
製剤 7	シリコン	1500	3.08	クラックなし
製剤 6	シリコン	1500	3.10	クラックなし
製剤 5	シリコン	1500	3.09	クラックなし
比較製剤 C	シリコン	1500	3.16	激しくクラック
製剤 7	シリコン	1100	3.56	クラックなし
製剤 6	シリコン	1100	3.55	クラックなし
製剤 5	シリコン	1100	3.63	クラックあり
比較製剤 C	シリコン	1100	3.59	激しくクラック
製剤 7	ガラス	1500	2.6	クラックなし
製剤 6	ガラス	1500	2.6	クラックなし
製剤 5	ガラス	1500	2.6	クラックなし
比較製剤 C	ガラス	1500	2.6	激しくクラック
製剤 7	ガラス	1100	3	クラックなし
製剤 6	ガラス	1100	3	クラックなし
製剤 5	ガラス	1100	3	クラックなし
比較製剤 C	ガラス	1100	3	激しくクラック

20

30

【 0 1 0 5 】

表 7 及び 8 に示されるように、製剤 5、6、及び 7 は、比較製剤 C の膜よりも高いクラック限界を有していた。

例 2 に示されるように、製剤 5、6、及び 7 は、様々な基材上でクラックを発生させることなく、異なる条件下で硬化されて、比較製剤 C よりも非常に大きい厚さの膜を形成することが可能であった。製剤 5 の膜は、380 の硬化温度では、3 μm 以上の厚さまで、それよりも低い硬化温度では、3.6 μm まで安定であった。

40

【 0 1 0 6 】

例 3 - クラックを含まない膜厚に対する二官能性シロキサン含有量の影響

以下の表 9 に示されるように、例 1 で作製したコントロール比較製剤 C、並びに製剤 8、9、及び 10 のサンプルを、様々な厚さで基材上に堆積させ、空気中で硬化した。各サンプルに対するクラック限界値を表 9 に示す。

【 0 1 0 7 】

【表 9】

表 9：クラック限界値

サンプル	硬化温度	硬化時間	クラック限界値(μm)
比較製剤 C	350℃	60 分	1.3
製剤 8	350℃	60 分	2.4
製剤 8	400℃	30 分	2.4
製剤 8	400℃	60 分	2.06
製剤 9	350℃	60 分	2.5
製剤 9	400℃	30 分	2.5
製剤 9	400℃	60 分	2.24
製剤 10	350℃	60 分	3.15
製剤 10	400℃	30 分	3.15
製剤 10	400℃	60 分	2.6

10

【0108】

表 9 から分かるように、製剤 8、9、及び 10 の各々に対するクラック限界値は、比較製剤 C の膜に対する厚さ 1.3 μm を超えていた。

例 3 に示されるように、製剤 8、9、及び 10 は、異なる条件下で硬化された場合に、クラックを発生させることなく、比較製剤 C よりも非常に大きい厚さの膜を形成することが可能であった。

20

【0109】

例 4 - 膜の光学特性の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の 6000 サンプルを、各々、ガラス基材上に堆積させ、350 で 1 時間硬化した。結果を図 1 及び以下の表 10 に示す。

【0110】

【表 10】

表 10：透過率の結果—窒素中 350℃

サンプル	厚さ(μm)	硬化雰囲気	絶対透過率%
未コーティングガラス	未コーティングガラス	なし	90.73
製剤 5	3.1	N ₂	91.31
製剤 5	3.1	空気	91.26
製剤 5	3.4	N ₂	91.01
製剤 5	3.4	空気	91.36
製剤 5	3.1	N ₂	91.36
製剤 5	3.1	空気	91.34
比較製剤 C	1.1	N ₂	91.33
比較製剤 C	1.1	空気	91.27

30

【0111】

表 10 に示されるように、比較製剤 C 及び製剤 5 の両方が、未コーティングのガラスよりも高い透過率を有していた。加えて、製剤 5 の非常により厚い 3.1 ~ 3.4 μm のサンプルが、比較製剤 C の比較的薄い 1.1 μm のサンプルに類似する透過率を有していた。コントロール比較製剤 C 及び製剤 5 の膜は、類似する透過率の結果を有していた。

40

【0112】

比較製剤 C 及び製剤 5 のサンプルを、基材上に堆積させ、空气中、230 で 30 分間に基づき、続いて、窒素中、390 で 30 分間硬化した。400 nm から 1050 nm の反射性を特定した。比較製剤 C の結果を図 2 A に、製剤 5 の結果を図 2 B に示す。図から分かるように、これらのコーティングは、ほぼ同一の反射性プロファイルを有していた。

【0113】

50

例 4 に示されるように、比較製剤 C 及び製剤 5 の膜は、類似の光学特性を有しており、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、光学的設計の考慮に影響を与えないことが示唆される。

【 0 1 1 4 】

例 5 - 製剤粘度の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤の粘度を、25 で特定した。結果を以下の表 1 に示す。

【 0 1 1 5 】

【表 1 1】

10

表 1 1 : 粘度

サンプル	厚さ (Å)	25℃での粘度 (cP)
比較製剤 C	6005	2.7
製剤 5	6176	2.73
製剤 8	6235	2.83

【 0 1 1 6 】

表 1 1 に示されるように、3 つの製剤の各々は、類似する粘度を有しており、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、スピンコーティング、スプレーコーティング、スロット

20

ダイコーティング技術による製剤のコーティングの加工性に影響を与えないことが示唆される。

【 0 1 1 7 】

例 6 - 機械的特性の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤のサンプルを、基材上に 1.9 μm で堆積させ、窒素中、390 で 30 分間硬化した。これらのコーティングに、室温と 400 との間の加熱冷却サイクルを施した。温度の関数としての残留応力を、比較製剤 C のコーティングについては図 3 A に、製剤 5 については図 3 B に示す。各コーティングにおける冷却線の直線回帰も示す。図 3 に示されるように、製剤 5 のコーティングにおける冷却線の傾き ($-0.0947 \text{ Mpa} /$) は、比較製剤 C のコーティングの場合 ($-0.0989 \text{ Mpa} /$) よりも小さい。いかなる特定の理論にも束縛されるものではないが、このことが、製剤 5 のより高いクラック限界に寄与しているものと考えられる。

30

【 0 1 1 8 】

様々な温度での比較製剤 C 及び製剤 5 のコーティングに対する熱膨張係数 (CTE) を、表 1 2、並びに図 4 A 及び 4 B に示す。

【 0 1 1 9 】

【表 1 2】

表 1 2 : 熱膨張係数

温度(°C)	比較製剤 C の CTE (ppm/°C)	製剤 5 の CTE (ppm/°C)	差 (ppm/°C)
室温(ボアソン 0)	52.46	48.27	4.20
100	58.00	53.43	4.66
200	64.93	59.68	5.25
300	73.83	67.84	6.00
350	85.71	78.71	7.00
400 (ボアソン 0.5)	102.33	93.93	8.39

40

【 0 1 2 0 】

表 1 2 及び図 4 B に示されるように、製剤 5 のコーティングに対する熱膨張係数が比較製剤 C のコーティングよりも低いというだけでなく、2 つの値の差が、温度の上昇と共に

50

増加している。特定のいかなる理論にも束縛されるものではないが、このことが、製剤 5 のより高いクラック限界に寄与しているものと考えられる。

【 0 1 2 1 】

例 7 - 膜の熱安定性の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤のサンプルを、基材上に堆積させ、380 で 30 分間硬化した。室温から約 380 までコーティングを加熱して熱重量分析 (TGA) を行った。結果を図 5 に示す。図 5 に示されるように、コーティングは、ほぼ同一の TGA プロファイルを有していた。

【 0 1 2 2 】

例 8 - 膜収縮の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤のサンプルを、基材上に堆積させ、空気中、230 で 30 分間焼成し、続いて、空気中、380 で 1 時間硬化した。焼成工程及び硬化工程の後に各コーティングの厚さを測定し、硬化の過程での収縮割合を特定した。結果を、以下の表 13 に示す。

【 0 1 2 3 】

【表 13】

表 13 : コーティングの収縮

サンプル	焼成後の厚さ (Å)	硬化後の厚さ (Å)	収縮%
比較製剤 C	6005	5921	1.399
製剤 5	6554	6451	1.572

【 0 1 2 4 】

表 13 に示されるように、両方のコーティング共に、硬化の過程での類似の収縮を示し、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、平坦化性能に影響を与えないことが示唆される。

【 0 1 2 5 】

図 6 ~ 8 に示されるように、比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤は、類似の特性を有しており、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、下流での熱への暴露の過程でのガス放出性能に影響を与えないことが示唆される。

【 0 1 2 6 】

例 9 - 膜の機械的耐性の研究

例 1 で作製した比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤のサンプルを、基材上に 1.9 µm で堆積させ、窒素中、390 で 30 分間硬化した。これらのコーティング厚さを、N & K 社のツール又は Nanometrics 社のツールを用いてエリプソメトリで測定した。

【 0 1 2 7 】

コーティングの硬度を、図 6 A に示し、コーティングの弾性率を、図 6 B に示す。図 6 A 及び 6 B に示されるように、2 つのコーティングに対する硬度及び弾性率の値は、ほぼ同一である。

【 0 1 2 8 】

µN での荷重に対する nm での深さのプロファイルを、比較製剤 C のコーティングに対しては図 7 A に、製剤 5 のコーティングに対しては図 8 A に示す。インデンテーションの走査型プローブ顕微鏡画像を、比較製剤 C のコーティングに対しては図 7 B に、製剤 5 のコーティングに対しては図 8 B に示す。図 7 及び 8 から分かるように、プロファイル及びインデンテーションは、比較製剤 C 及び製剤 5 のコーティングに対して、ほぼ同一である。

【 0 1 2 9 】

製剤 5 をシリコン基材上に堆積させ、窒素又は空気中、350 で 1 時間硬化した。ASTM D 3359 - 09 E 2、テープ試験による接着性を測定するための標準試験法に

10

20

30

40

50

従ってテープ試験を行い、下地とのコーティングの接着性を評価した。次に、基材を 85 に加熱し、15 分間で -20 に冷却し、これを 3 回行った。各サイクルの後、コーティングをクラックについて確認した。最終サイクルの後、テープ試験を再度行った。結果を以下の表 14 に示す。

【0130】

【表 14】

表 14：接着性の結果

サンプル	厚さ (μm)	硬化 雰囲気	テープ 試験	第一サイクル 後	第二サイクル 後	第三サイクル 後	テープ 試験
製剤 5	3.1	N ₂	剥離 0%	クラックなし	クラックなし	クラックなし	剥離 0%
製剤 5	3.1	空気	剥離 0%	クラックなし	クラックなし	クラックなし	剥離 0%
製剤 5	3.4	N ₂	剥離 0%	クラックなし	クラックなし	クラックなし	剥離 0%
製剤 5	3.4	空気	剥離 0%	クラックなし	クラックなし	クラックなし	剥離 0%

10

【0131】

表 14 に示されるように、製剤 5 のコーティングは、熱サイクルに起因するクラックは起こさず、熱サイクルの前後で非常に優れた接着性を示し、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、接着性に影響を与えないことが示唆される。

20

【0132】

例 9 に示されるように、比較製剤 C 及び製剤 5 の製剤は、類似の機械的耐性を有し、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、機械的耐性に影響を与えないことが示唆される。

【0133】

例 10 - 膜の化学的耐性の研究

例 1 で作製した比較製剤 C、製剤 5、及び製剤 8 の製剤のサンプルを、基材上に堆積させ、230 で硬化した。各サンプルを、TOK-106 に 70 で 10 分間、又は 2.38% TMAH に室温で 10 分間暴露した。結果を以下の表 15 に示す。負のエッチング速度は、膜膨潤の結果である。

30

【0134】

【表 15】

表 15：化学的耐性

サンプル	溶液	試験前厚さ (Å)	試験後厚さ (Å)	エッチング速度 (Å/分)
比較製剤 C	TOK-106	6005	6007	-0.2
製剤 5	TOK-106	6572	6581	-0.9
製剤 8	TOK-106	7765	7773	-0.8
比較製剤 C	TMAH	6005	6007	-0.2
製剤 5	TMAH	6554	6548	0.6
製剤 8	TMAH	7751	7740	1.1

40

【0135】

表 15 に示されるように、これら 3 つの製剤は、TOK-106 及び TMAH 中での類似のエッチング速度を有している。

例 1 で作製した製剤 5 の製剤のサンプルを、シリコン上に堆積させ、記載のように 1 時間硬化した。初期厚さを測定し、続いて、コーティングを、NMP 溶液に 70 で 10 分間暴露した。再度コーティングの測定を行い、エッチング速度 (/ 分) を特定した。次に、コーティングを、ピラニア溶液、濃硫酸と過酸化水素との 3 : 1 混合物、に 70 で

50

10分間暴露した。再度コーティングの測定を行い、エッチング速度（ /分）を特定した。続いて、コーティングを、2.38% TMAH溶液に室温で10分間暴露した。再度コーティングの測定を行い、エッチング速度（ /分）を特定した。湿式エッチング試験の結果を以下の表16に示す。負のエッチング値は、膜膨潤によるものである。

【0136】

【表16】

表16：湿式エッチングの結果

サンプル	硬化 雰囲気	初期厚さ (Å)	NMPエッチング 速度 (Å/分)	ピラニアエッチング 速度 (Å/分)	TMAHエッチング 速度 (Å/分)
製剤5	N ₂	30870	-89	23	-8
製剤5	空気	31490	0	30	57
製剤5	N ₂	33719	-90	3	-6
製剤5	空気	33858	-93	-21	0

10

【0137】

次に、例1で作製した製剤5の製剤のサンプルを、基材に堆積させ、空气中で硬化した。コーティングを、光学顕微鏡で目視検査し、初期透過率%と共に初期厚さを測定し、テープ試験を行って接着性を測定した。次に、コーティングを、TOK-106フォトリソスト剥離液に70で10分間暴露した。TOK-106溶液は、オレゴン州ヒルズボロのTokyo Ohka Kogyo America社から入手可能であるモノエタノールアミン及びDMSO溶媒を含むアミン系フォトリソスト剥離液である。コーティングを、再度光学顕微鏡下で目視検査し、再度厚さを測定し、エッチング速度（ /分）を特定した。試験後透過率、テープ接着性、及びOM検査を行った。結果を以下の表17に示す。

20

【0138】

【表17】

表17：TOK-106エッチングの結果

サンプル	硬化 雰囲気	初期厚さ (Å)	TOK-106エッチング 速度 (Å/分)	テープ試験 TOK-106なし領域/ TOK-106あり領域	目視検査 TOK-106なし領域/ TOK-106あり領域
製剤5	空気	31175	3.7	0%剥離/0%剥離	合格/合格

30

【0139】

表16及び17に示されるように、製剤5のコーティングは、NMP、ピラニア、及びTOK-106に対しては70で、TMAHに対しては室温で10分間耐性を示し、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び/又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、化学的耐性に影響を与えないことが示唆される。

【0140】

例10に示されるように、比較製剤C、製剤5、及び製剤8の製剤は、類似の化学的耐性を有している。

40

例11 - 膜のプラズマエッチング速度の研究

次に、例1で作製した比較製剤C及び製剤5の製剤のサンプルを、基材上に堆積させ、表18に挙げたRPMでスピンコーティングし、230で焼成し、続いて、以下の表13に示されるようにして硬化した。次に、コーティングを、200ワットの出力、200ミリの圧力、並びに15sccmのSF₆、20sccmのO₂、及び20sccmのArでプラズマエッチングした。結果を以下の表18に示す。

【0141】

【表 18】

表 18：エッチングの結果

サンプル	RPM	硬化	平均エッチング速度 (nm/分)
比較製剤 C	2000	N ₂ 中 380°C	248.9
製剤 5	2000	N ₂ 中 380°C	257.6
比較製剤 C	1500	未硬化	283.2

【0142】

表 18 に示されるように、製剤 5 は、比較製剤 C に類似のプラズマエッチング速度を有し、このことから、樹脂ブレンドを用いることによる、及び / 又はより高い含有量のジアルキルシロキサンを用いることによる修飾が、プラズマエッチング速度に影響を与えないことが示唆される。

10

【0143】

例 12 - 外的な水を含まない製剤

製剤 13、オハイオ州ペリーズバーグの Techneglas Technical Products 社から入手可能である MTEOS から誘導されたポリシロキサン樹脂 GR-650F を、所望される固体充填 % で PGMEA 溶媒中に溶解し、2 つのサンプルに分割した。第一のサンプルに、少量の希 TMAN 水溶液を添加した。第二のサンプルに、PGPE 溶媒に溶解した等量の TMAN を添加した。PGMEA 溶媒及び BYK 界面活性剤を添加することで、各サンプルからコーティング製剤を形成した。各コーティングを、1000 ~ 1500 rpm で基材上にスピンコーティングして、所望される厚さの膜を堆積させ、類似の条件下で硬化した。これら 2 つのコーティングに対する屈折率 (1.4) 及びテープ試験による接着性能 (100 % 合格) は同一であり、このことから、コーティングの光学的又は物理的特性に影響を与えることなく、外的な水をまったく用いずにコーティング製剤を製剤可能であることが示唆される。

20

【0144】

例 13 - 接着促進剤を含む製剤

製剤 14、オハイオ州ペリーズバーグの Techneglas Technical Products 社から入手可能である MTEOS から誘導されたポリシロキサン樹脂 GR-650F を、所望される固体充填 % で PGMEA 溶媒中に溶解した。少量の希 TMAN 水溶液、PGMEA 溶媒、BYK 界面活性剤、及び VTEOS を添加した。コーティングを、1000 ~ 1500 rpm で基材上にスピンコーティングして、所望される厚さの膜を堆積させ、類似の条件下で硬化した。

30

【0145】

例 14 - 既存ポリシロキサン樹脂の分子量の増加

製剤 15 - 分子量 1100 AMU であるフェニル TEOS 系ポリマーの PGMEA 中 45 重量 % 溶液を、250 ppm の塩基性触媒 TBAH の存在下、100 で 2 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、5000 AMU の分子量を有していた。製剤 15 を、シリコン基材上にスピンコーティングし、380 で 1 時間硬化した。得られたコーティングは、4 µm 超のクラック限界を有していた。

40

【0146】

製剤 16 - 製剤 15、並びに 4200 AMU の分子量を有し、約 50 % のフェニル TEOS 及び約 50 % のメチル TEOS から形成された第二のポリマーの混合物を、パターン化された薄膜トランジスタ (FTF) 及びインターコネクト誘電体基材上に、スロットダイコーティングによって適用し、硬化した。得られたコーティングを、平坦化及び化学的耐性について試験した。コーティングは、完全に平坦化され、NMP (70 で 10 分間)、2.38 重量 % TMAH (室温で 10 分間)、TOK-106 (70 で 10 分間)、DHF (室温で 5 分間)、及びピラニア (70 で 10 分間) の溶媒に対する完全な耐性を有していた。350 で 4 時間にわたる熱重量分析 (等温) から、コーティングのガス放出が、0.09 重量 % 以下であると特定された。

50

【 0 1 4 7 】

製剤 17 - 分子量 1 1 0 0 A M U であるフェニル T E O S 系ポリマーの P G M E A 中 4 5 重量% 溶液を、2 5 0 p p m の塩基性触媒 T B A H の存在下、7 0 ° で 2 ~ 3 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、2 5 0 0 A M U の分子量を有していた。製剤 15 を、シリコン基材上にスピンコーティングし、3 8 0 ° で 1 時間硬化した。得られたコーティングは、4 μ m 超のクラック限界を有していた。

【 0 1 4 8 】

製剤 18 - 製剤 17、並びに 4 2 0 0 A M U の分子量を有し、約 5 0 % のフェニル T E O S 及び約 5 0 % のメチル T E O S から形成された第二のポリマーの混合物を、パターン化された薄膜トランジスタ (F T F) 及びインターコネクト誘電体基材上に、スロットダイコーティングによって適用し、硬化した。得られたコーティングを、平坦化及び化学的耐性について試験した。コーティングは、完全に平坦化され、N M P (7 0 ° で 1 0 分間)、2 . 3 8 重量% T M A H (室温で 1 0 分間)、T O K - 1 0 6 (7 0 ° で 1 0 分間)、D H F (室温で 5 分間)、及びピラニア (7 0 ° で 1 0 分間) の溶媒に対する完全な耐性を有していた。

【 0 1 4 9 】

製剤 19 - 分子量 1 1 0 0 A M U であるフェニル T E O S 系ポリマーの P G M E A 中 3 0 重量% 溶液を、2 0 0 p p m の塩基性触媒 T B A H の存在下、1 0 0 ° で 8 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、6 0 0 0 A M U の分子量を有していた。

【 0 1 5 0 】

製剤 20 - 分子量 1 1 0 0 A M U であるフェニル T E O S 系ポリマーの P G M E A 中 3 0 重量% 溶液を、3 0 0 p p m の塩基性触媒 T B A H の存在下、1 0 0 ° で 8 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、8 0 0 0 A M U の分子量を有していた。

【 0 1 5 1 】

製剤 21 - 分子量 1 1 0 0 A M U であるフェニル T E O S 系ポリマーの P G M E A 中 3 0 重量% 溶液を、4 0 0 p p m の塩基性触媒 T B A H の存在下、1 0 0 ° で 8 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、ゲル化し、溶液から析出した。

【 0 1 5 2 】

製剤 22 - 分子量 1 1 0 0 A M U であるフェニル T E O S 系ポリマー、並びに 4 2 0 0 A M U の分子量を有し、約 5 0 % のフェニル T E O S 及び約 5 0 % のメチル T E O S から形成された第二のポリマーの P G M E A 中 3 0 重量% 溶液を、2 0 0 p p m の塩基性触媒 T B A H の存在下、1 0 0 ° で 8 時間反応させた。反応後、得られた樹脂は、室温でゲル化し、溶液から析出した。

【 0 1 5 3 】

本発明の範囲から逸脱することなく、考察した代表的な実施形態に対して様々な改変及び追加が行われてもよい。例えば、上述した実施形態は、特定の特徴に関するが、本発明の範囲には、特徴の異なる組み合わせを有する実施形態、及び上述した特徴のすべてを含んではいない実施形態も含まれる。

[1] 1 0 0 0 A M U から 1 0 0 0 0 A M U の重量平均分子量を有する、アルキル基及びアリール基を含む第一のケイ素含有樹脂、9 0 0 A M U から 5 0 0 0 A M U の重量平均分子量を有する、アリール基を含む第二のケイ素含有樹脂、少なくとも 1 つの溶媒、及び、少なくとも 1 つの熱活性化触媒、を含む架橋性組成物。

[2] 少なくとも 1 つの界面活性剤をさらに含む、[1] に記載の架橋性組成物。

[3] 前記第一のケイ素含有樹脂が、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、前記第二のケイ素含有樹脂が、フェニルシロキサンを含む、[1] に記載の架橋性組成物。

[4] 前記第一のケイ素含有樹脂が、ジメチルシロキサンをさらに含む、[1] に記載の架橋性組成物。

[5] 前記第一及び第二のケイ素含有樹脂中の炭素原子の総数に基づいて、アルキル基中に含有される炭素原子の割合が、1 0 % 超から 1 0 0 % である、[1] に記載の架橋性組

10

20

30

40

50

成物。

〔 6 〕 1 . 5 μm 以上の厚さを有する、〔 1 〕に記載の架橋性組成物から形成された架橋された膜。

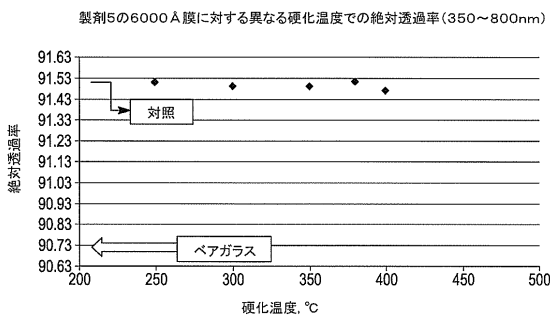
〔 7 〕〔 6 〕に記載の架橋された膜を含むデバイスであって、トランジスタ、発光ダイオード、カラーフィルター、光起電力セル、フラットパネルディスプレイ、湾曲ディスプレイ、タッチスクリーンディスプレイ、 \times 線検出器、アクティブ又はパッシブマトリックスOLEDディスプレイ、アクティブマトリックス薄膜液晶ディスプレイ、電気泳動ディスプレイ、CMOSイメージセンサー、及びこれらの組み合わせから成る群より選択され、前記架橋された膜が、不動態化層、平坦化層、バリア層、又はこれらの組み合わせを形成する、デバイス。

〔 8 〕 1 0 0 0 A M U から 1 0 0 0 0 A M U の重量平均分子量を有する、アルキル基及びアリール基を含む第一のシロキサン樹脂、9 0 0 A M U から 5 0 0 0 A M U の重量平均分子量を有する、アリール基を含む第二のシロキサン樹脂、溶媒、及び、熱活性化触媒を混合して、架橋性組成物を形成すること、前記組成物を基材上に堆積させること、及び、前記架橋性組成物を、3 5 0 以上の温度で硬化して、1 . 5 μm 以上の厚さを有する架橋された膜を形成すること、を含む、組成物を形成する方法。

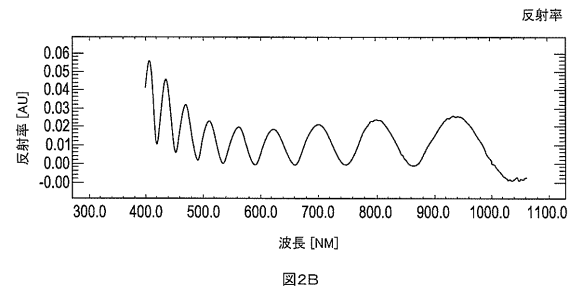
〔 9 〕前記架橋された膜が、3 . 0 μm 以上の厚さを有する、〔 8 〕に記載の方法。

〔 1 0 〕前記第一のケイ素含有樹脂が、メチルシロキサン及びフェニルシロキサンを含み、前記第二のケイ素含有樹脂が、フェニルシロキサンを含み、前記方法が、少なくとも1 0 0 0 A M U の分子量を有するフェニルTEOS系ポリマーを、塩基性触媒の存在下、溶媒中で反応させて、前記第二のケイ素含有樹脂を形成することをさらに含む、〔 8 〕に記載の方法。

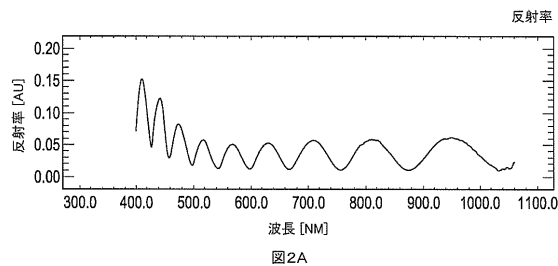
【 図 1 】



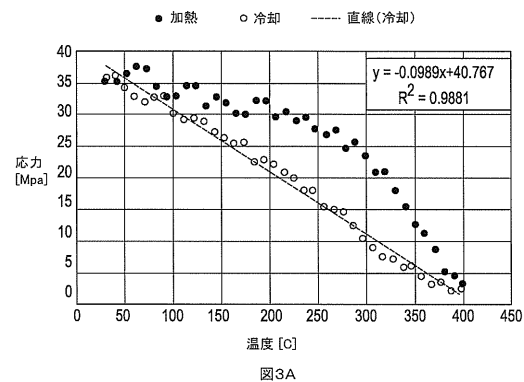
【 図 2 B 】



【 図 2 A 】



【 図 3 A 】



【図 3 B】

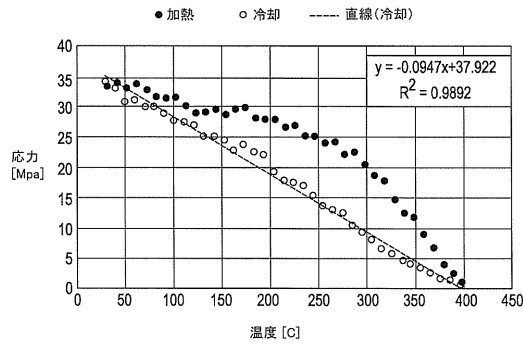


図3B

【図 4 A】

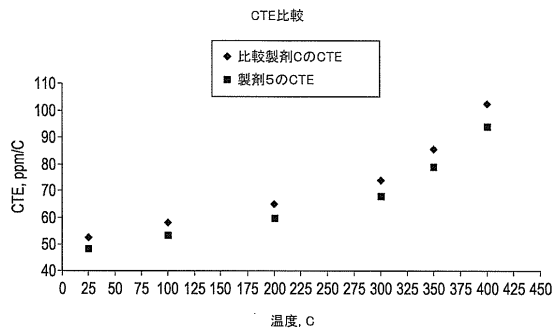


図4A

【図 4 B】

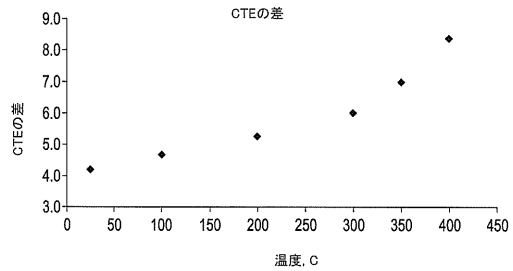


図4B

【図 5】

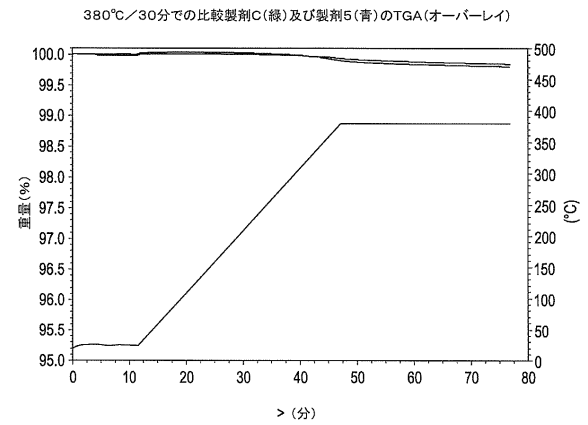


図5

【図 6 A】

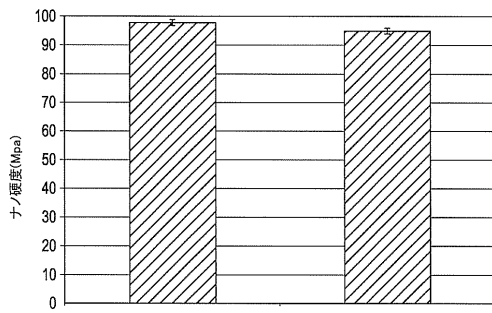


図6A

【図 7 A】

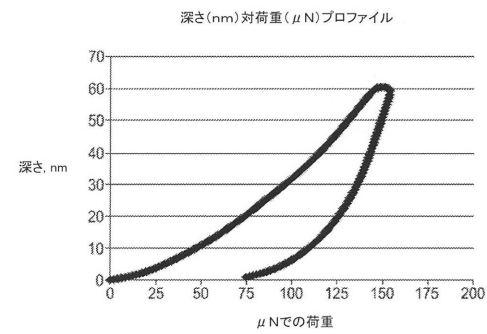


図7A

【図 6 B】

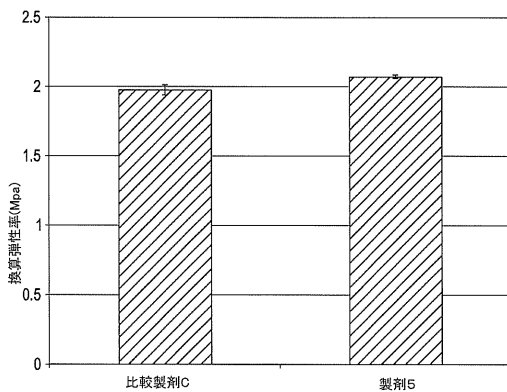


図6B

【図 7 B】

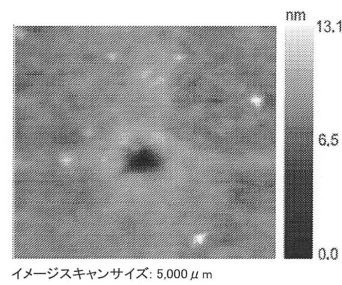
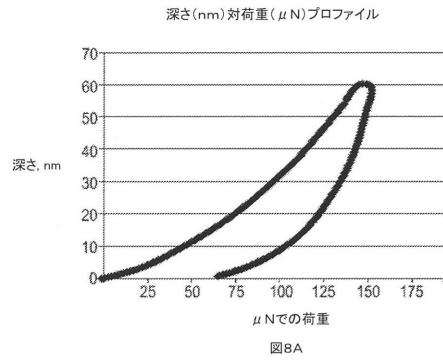


図7B

【図 8 A】



【図 8 B】

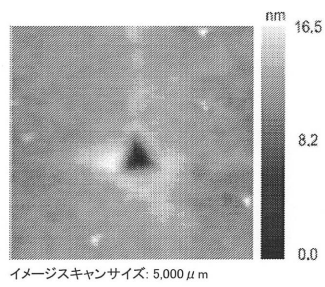


図8B

フロントページの続き

(74)代理人 100106208

弁理士 宮前 徹

(74)代理人 100120112

弁理士 中西 基晴

(74)代理人 100133765

弁理士 中田 尚志

(72)発明者 バラプラサッド, デサラージュ

アメリカ合衆国ニュージャージー州07950, モリス・ブレインズ, テイバー・ロード 115
, エム/エス 4ディー3 ピー・オー・ボックス 377, ハネウェル・インターナショナル・
インコーポレーテッド, インテレクチュアル・プロパティ・パテント・サーヴィシズ

(72)発明者 マクホッパディアイ, サディップ

アメリカ合衆国ニュージャージー州07950, モリス・ブレインズ, テイバー・ロード 115
, エム/エス 4ディー3 ピー・オー・ボックス 377, ハネウェル・インターナショナル・
インコーポレーテッド, インテレクチュアル・プロパティ・パテント・サーヴィシズ

(72)発明者 シエ, ソンギュアン

アメリカ合衆国ニュージャージー州07950, モリス・ブレインズ, テイバー・ロード 115
, エム/エス 4ディー3 ピー・オー・ボックス 377, ハネウェル・インターナショナル・
インコーポレーテッド, インテレクチュアル・プロパティ・パテント・サーヴィシズ

(72)発明者 ゲブレーハン, アマニュエル・エイチ.

アメリカ合衆国ニュージャージー州07950, モリス・ブレインズ, テイバー・ロード 115
, エム/エス 4ディー3 ピー・オー・ボックス 377, ハネウェル・インターナショナル・
インコーポレーテッド, インテレクチュアル・プロパティ・パテント・サーヴィシズ

(72)発明者 ビエン, ハイ

アメリカ合衆国ニュージャージー州07950, モリス・ブレインズ, テイバー・ロード 115
, エム/エス 4ディー3 ピー・オー・ボックス 377, ハネウェル・インターナショナル・
インコーポレーテッド, インテレクチュアル・プロパティ・パテント・サーヴィシズ

審査官 牟田 博一

(56)参考文献 特表2010-532792(JP, A)

特開2013-137512(JP, A)

特開2013-167669(JP, A)

国際公開第2011/162294(WO, A1)

特開2012-222202(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 83/04