

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2012-144607

(P2012-144607A)

(43) 公開日 平成24年8月2日(2012.8.2)

| (51) Int.Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|------------------------------|------------|-------------|
| CO8L 83/05 (2006.01) | CO8L 83/05 | 4J002 |
| CO8K 5/01 (2006.01) | CO8K 5/01 | 4J246 |
| CO8K 3/00 (2006.01) | CO8K 3/00 | 5F151 |
| CO8G 77/12 (2006.01) | CO8G 77/12 | |
| HO1L 31/042 (2006.01) | HO1L 31/04 | |

R
審査請求 未請求 請求項の数 20 O L (全 23 頁)

(21) 出願番号 特願2011-2946 (P2011-2946)
 (22) 出願日 平成23年1月11日 (2011.1.11)

(71) 出願人 00000941
 株式会社カネカ
 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号
 (72) 発明者 西山 義隆
 大阪府摂津市鳥飼西5丁目1-1 株式会
 社カネカ内
 (72) 発明者 眞鍋 貴雄
 大阪府摂津市鳥飼西5丁目1-1 株式会
 社カネカ内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 オルガノポリシロキサン系組成物および硬化物。

(57) 【要約】

【課題】成型加工性、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れたオルガノポリシロキサン系組成物および硬化物を提供する。

【解決手段】(A) アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)同士をヒドロシリル化して得られるポリシロキサン化合物(b)に、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)をヒドロシリル化反応させて得られる多面体構造ポリシロキサン変性体、

(B) 環状オレフィン化合物、

からなるオルガノポリシロキサン系組成物により成型加工性、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れた組成物および硬化物を提供することができる。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

(A) アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士をヒドロシリル化して得られるポリシロキサン化合物 (b) に、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) をヒドロシリル化反応させて得られるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体、

(B) 環状オレフィン化合物、
からなるオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 2】

前記 (B) 成分が、炭素 炭素 2 重結合を 2 個以上有する環状オレフィン化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。 10

【請求項 3】

前記 (B) 成分が、平均分子量 1000 以下であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 4】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) のポリシロキサン化合物 (b) において、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 由来のアルケニル基もしくはヒドロシリル基のどちらか一方が残留していることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。 20

【請求項 5】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) が、温度 20 において、液状であることを特徴とする、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 6】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) の分子中に少なくとも 3 個のヒドロシリル基を有する事を特徴とする、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 7】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) のアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) のアルケニル基が、ビニル基であることを特徴とする、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。 30

【請求項 8】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) 成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を含有するシロキサン化合物であることを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 9】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) 成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する環状シロキサンであることを特徴とする、請求項 8 に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。 40

【請求項 10】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) 成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する直鎖状シロキサンであることを特徴とする、請求項 8 に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 11】

前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) が、アルケニル基および 50

ヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士をヒドロシリル化させて得られるポリシロキサン化合物 (b) を得た後、さらにヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) とをヒドロシリル化反応させて得られることを特徴とする、請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 12】

ヒドロシリル化触媒を含有することを特徴とする、請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 13】

硬化遅延剤を含有することを特徴とする、請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 14】

接着性付与剤を含有することを特徴とする、請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 15】

無機フィラーを含有することを特徴とする、請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【請求項 16】

請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物を硬化して得られる硬化物。

【請求項 17】

周波数 10 Hz で測定した損失正接 ($\tan \delta$) の極大値が 20 以上の温度範囲内にあることを特徴とする請求項 16 に記載の硬化物。

【請求項 18】

硬化後の透湿度が $30 / \text{g} / \text{m}^2 / 24 \text{h}$ 以下であることを特徴とする請求項 16 または 17 に記載の硬化物。

【請求項 19】

請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物を用いてなる光素子封止剤。

【請求項 20】

請求項 19 に記載の光素子封止剤を用いてなる光学デバイス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、成型加工性、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れたオルガノポリシロキサン系組成物および硬化物に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリシロキサン組成物は、耐熱性、耐寒性、耐候性、耐光性、化学的安定性、電気特性、難燃性、耐水性、透明性、着色性、非粘着性、非腐食性に優れている。中でも、多面体構造を有するポリシロキサンで構成された組成物は、その特異的な化学構造から、さらに優れた耐熱性、耐光性、化学的安定性、低誘電性等を示すことが知られており、その応用が期待されている。しかし、ポリシロキサン組成物は優れた特性を持つ一方で、一般にガスバリア性が低いといった問題点を有しており、例えば、特許文献 1 において、ガスバリア性が低いポリシロキサン系組成物を封止材として用いた場合、リフレクターが硫化物によって黒色化すると記載されている。

【0003】

また、特許文献 2 において、多面体構造を有するポリシロキサン変性体を用いた液状組成物が開示されているが、この組成物は、成型加工性、透明性、接着性に優れているものの、ガスバリア性についてはさらなる改良の余地が残されていた。

一方、環状オレフィンポリマーは透明性、強度、耐熱性、ガスバリア性に優れており、光

10

20

30

40

50

学用途の機能性プラスチックとして注目されている。この環状オレフィンとポリシロキサンの機能を併せ持つ材料として、例えば、特許文献3で、ヒドロシリル基を持つシロキサンと、ポリシクロオレフィン官能性ポリシロキサンからなる硬化性組成物が開示されている。しかし、該当技術で得られる硬化物は、いずれも淡黄色であり、透明性に問題があった。

【0004】

上記のように、ポリシロキサン及び、環状オレフィンの機能を併せ持つ材料の開示は見られず、新たな材料の開発が求められていた。

【先行技術文献】

【特許文献】

10

【0005】

【特許文献1】特開2009-206124

【特許文献2】WO08/010545

【特許文献3】特開2007-77252

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

成型加工性、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れたオルガノポリシロキサン系組成物および硬化物を提供する。

【課題を解決するための手段】

20

【0007】

本発明者らは、上記課題を解決すべく、鋭意研究を重ねた結果、

(A) アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士をヒドロシリル化して得られるポリシロキサン化合物 (b) に、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) をヒドロシリル化させて得られる多面体構造ポリシロキサン変性体、

(B) 環状オレフィン化合物、

からなるオルガノポリシロキサン系組成物により、上記課題を解決できることを見出し、本発明に至った。すなわち、本発明は以下の構成を有するものである。

【0008】

30

(1) . (A) アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士をヒドロシリル化して得られるポリシロキサン化合物 (b) に、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物 (c) をヒドロシリル化反応させて得られるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体、

(B) 環状オレフィン化合物、

からなるオルガノポリシロキサン系組成物。

【0009】

(2) . 前記 (B) 成分が、炭素-炭素2重結合を2個以上有する環状オレフィン化合物であることを特徴とする (1) に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0010】

40

(3) . 前記 (B) 成分が、平均分子量1000以下であることを特徴とする (1) または (2) に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0011】

(4) . 前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) のポリシロキサン化合物 (b) において、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 由来のアルケニル基もしくはヒドロシリル基のどちらか一方が残留していることを特徴とする (1) ~ (3) のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0012】

(5) . 前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) が、温度20

50

において、液状であることを特徴とする、(1)～(4)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0013】

(6)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)の分子中に少なくとも3個のヒドロシリル基を有する事を特徴とする、(1)～(5)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0014】

(7)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)のアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)のアルケニル基が、ビニル基であることを特徴とする、(1)～(6)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

10

【0015】

(8)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を含有するシロキサン化合物であることを特徴とする、(1)～(7)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0016】

(9)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する環状シロキサンであることを特徴とする、(8)に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

20

【0017】

(10)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)において、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)成分が、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する直鎖状シロキサンであることを特徴とする、(8)に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0018】

(11)．前記ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)が、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)同士をヒドロシリル化させて得られるポリシロキサン化合物(b)を得た後、さらにヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)とをヒドロシリル化反応させて得られることを特徴とする、(1)～(10)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

30

【0019】

(12)．ヒドロシリル化触媒を含有することを特徴とする、(1)～(11)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0020】

(13)．硬化遅延剤を含有することを特徴とする、(1)～(12)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0021】

(14)．接着性付与剤を含有することを特徴とする、(1)～(13)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

40

【0022】

(15)．無機フィラーを含有することを特徴とする、(1)～(14)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物。

【0023】

(16)．(1)～(15)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物を硬化して得られる硬化物。

【0024】

(17)．周波数10Hzで測定した損失正接(tan δ)の極大値が20以上の温

50

度範囲内にあることを特徴とする(16)に記載の硬化物。

【0025】

(18)・硬化後の透湿度が $30 / \text{g} / \text{m}^2 / 24 \text{h}$ 以下であることを特徴とする(16)または(17)に記載の硬化物。

【0026】

(19)・(1)～(15)のいずれか1項に記載のオルガノポリシロキサン系組成物を用いてなる光素子封止剤。

【0027】

(20)・(19)に記載の光素子封止剤を用いてなる光学デバイス。

【発明の効果】

10

【0028】

成型加工性、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れるオルガノポリシロキサン系組成物および硬化物を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0029】

<(A)ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体>

本発明の(A)成分であるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体は、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)同士をヒドロシリル化して得られるポリシロキサン化合物(b)に、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)をヒドロシリル化させて得ることができる。本発明の(A)成分であるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体の製造においては、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)同士を分子間でヒドロシリル化反応させてポリシロキサン化合物(b)を得た後、さらにヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)をヒドロシリル化反応させることにより、(A)成分であるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体を得ることができる。

20

【0030】

本発明における(A)成分であるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体は、ハンドリング性・加工性の観点から温度 20 において、液状であることが好ましい。

30

【0031】

また、(A)成分であるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体は、得られる硬化物の強度や硬度、さらには、耐熱性・耐光性等の観点から、分子中に少なくとも3個のヒドロシリル基を有することが好ましい。

【0032】

<アルケニル基およびヒドロキシル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物(a)>

本発明における(a)成分は、多面体構造を形成するSi原子上に直接、または間接的にアルケニル基およびヒドロシリル基が結合したポリシロキサン系化合物であればよく、特に限定されない。

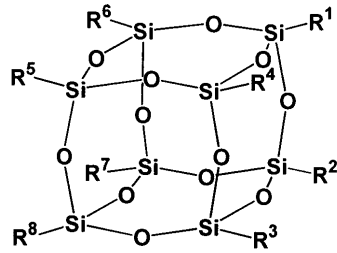
40

【0033】

本発明において使用される多面体構造を形成するSi原子上に直接、または間接的にアルケニル基およびヒドロシリル基が結合したポリシロキサン系化合物において、多面体構造に含有されるSi原子の数は $6 \sim 24$ であることが好ましく、具体的に、例えば、以下の構造で示される多面体構造を有するシルセスキオキサンが例示される(ここでは、Si原子数=8を代表例として例示する)。

【0034】

【化 1】



【 0 0 3 5 】

上記式中 R¹ ~ R⁸ は、アルケニル基、アミノ基を有する有機基、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヒドロシリル基またはこれらの基の炭素原子に結合した水素原子の一部又は全部をハロゲン原子、シアノ基などで置換したクロロメチル基、トリフルオロプロピル基、シアノエチル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、メルカプト基などから選択される同一又は異種の、好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 10 の非置換又は置換の 1 価の炭化水素基である。アルケニル基の例として、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基等が挙げられる。アミノ基を有する有機基の例として、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、トリメチルアミノ基等が挙げられる。アルキル基の例として、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等が挙げられる。シクロアルキル基の例として、シクロヘキシル基等、アリール基の例として、フェニル基、トリル基等が挙げられる。

10

20

【 0 0 3 6 】

ただし、R¹ ~ R⁸ のうち、平均して、少なくとも 1 つはアルケニル基、また、少なくとも 1 つはヒドロシリル基である。前記アルケニル基においては、耐熱性の観点からビニル基が好ましく、アルケニル基以外の基が選択される場合は、耐熱性の観点からメチル基が好ましい。

【 0 0 3 7 】

上記、多面体構造を有するシルセスキオキサンは、例えば、R Si X₃ (式中 R は、上述の R¹ ~ R⁸ を表し、X は、ハロゲン原子、アルコキシ基等の加水分解性官能基を表す) のシラン化合物の加水分解縮合反応によって、得ることができる。また、R Si X₃ の加水分解縮合反応によって分子内に 3 個のシラノール基を有するトリシラノール化合物を合成したのち、さらに、同一もしくは異なる 3 官能性シラン化合物を反応させることにより、閉環し、多面体構造を有するシルセスキオキサンを合成する方法も知られている。さらには、前記トリシラノール化合物に、1 官能性シランおよび/または 2 官能性シランを反応させることにより、部分開裂型の多面体構造を有するシルセスキオキサンを合成することもできる。

30

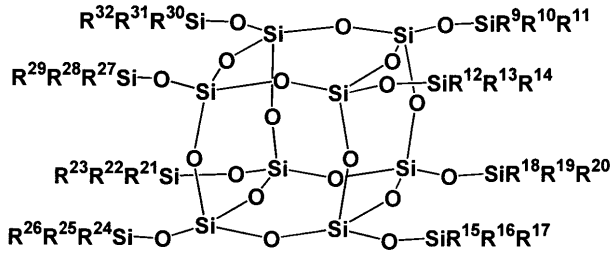
【 0 0 3 8 】

本発明での多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) において、さらに好ましい例としては、以下の構造で示されるような多面体構造を有するシリル化ケイ酸が例示される (ここでは、Si 原子数 = 8 を代表例として例示する)。多面体骨格を形成する Si 原子とアルケニル基およびヒドロシリル基とが、シロキサン結合を介して結合していると、得られる硬化物の剛直になり過ぎず、良好な成形体を得ることができる。

40

【 0 0 3 9 】

【化 2】



【0040】

10

上記式中 $R^9 \sim R^{32}$ は、アルケニル基、アミノ基を有する有機基、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ヒドロシリル基またはこれらの基の炭素原子に結合した水素原子の一部又は全部をハロゲン原子、シアノ基などで置換したクロロメチル基、トリフルオロプロピル基、シアノエチル基、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、メルカプト基などから選択される同一又は異種の、好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 10 の非置換又は置換の 1 価の炭化水素基である。アルケニル基の例として、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基等が挙げられる。アミノ基を有する有機基の例として、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、トリメチルアミノ基等が挙げられる。アルキル基の例として、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等が挙げられる。シクロアルキル基の例として、シクロヘキシル基等、アリール基の例として、フェニル基、トリル基等が挙げられる。これら $R^9 \sim R^{32}$ のうち、少なくとも 1 つはアルケニル基であり、また、少なくとも 1 つはヒドロシリル基である。前記アルケニル基においては、耐熱性の観点からビニル基が好ましく、アルケニル基以外の基が選択される場合も、耐熱性、耐光性の観点からメチル基が好ましい。

20

【0041】

多面体構造を有するシリル化ケイ酸の合成方法としては、特に限定されず、公知の方法を用いて合成される。前記合成方法としては、具体的に、例えば、テトラエトキシシラン等のテトラアルコキシシランを 4 級アンモニウムヒドロキッド等の塩基存在下で加水分解縮合させる方法が挙げられる。

【0042】

30

本合成方法においては、テトラアルコキシシランの加水分解縮合反応により、多面体構造を有するケイ酸塩が得られ、さらに得られたケイ酸塩をアルケニル基含有シリルクロライド、ヒドロシリル基含有シリルクロライド等のシリル化剤と反応させることにより、多面体構造を形成する Si 原子とアルケニル基およびヒドロシリル基とが、シロキサン結合を介して結合した多面体構造ポリシロキサン系化合物を得ることが可能となる。本発明においては、テトラアルコキシシランの代わりに、シリカや稲籾殻等のシリカ含有物質からも、同様の多面体構造を有するシリル化ケイ酸を得ることが可能である。

【0043】

本発明においては、多面体構造に含有される Si 原子の数として、6 ~ 24、さらに好ましくは、6 ~ 10 のものを好適に用いることが可能である。また、Si 原子数の異なる多面体構造ポリシロキサン系化合物の混合物であってもよい。

40

【0044】

本発明の (a) における多面体構造を形成する Si 原子上に存在するアルケニル基およびヒドロシリル基については、得られる多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) や多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) を用いて得られる硬化物の強度やガスバリア性、ハンドリング性、成形加工性の観点から、

(i) [アルケニル基の数] - [ヒドロシリル基の数] > 2、もしくは、

(ii) [ヒドロシリル基の数] - [アルケニル基の数] > 2、

であることが好ましい。

【0045】

50

また、本発明の (a) における多面体構造を形成する S i 原子上に存在するアルケニル基もしくはヒドロシリル基の少なくともいずれか一方が平均して 2 . 5 個以下、さらには、1 . 5 個以下であることが好ましい。2 . 5 個を超えると、後述のポリシロキサン化合物 (b) あるいは、多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) にゲル化が生じ、ハンドリング性や成形加工性等が低下する恐れがある。

【 0 0 4 6 】

一方、ガスバリア性の観点からは、本発明の (a) における多面体構造を形成する S i 原子上に存在するアルケニル基もしくはヒドロシリル基の少なくともいずれか一方が平均して 0 . 5 個以上、さらには、1 . 0 個以上であることが好ましい。

【 0 0 4 7 】

< ポリシロキサン化合物 (b) >

本発明におけるポリシロキサン化合物 (b) は、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士を直接ヒドロシリル化反応により結合させて得ることができる。本発明におけるポリシロキサン化合物 (b) は、(a) 由来のアルケニル基およびヒドロシリル基の反応により、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) の分子同士が直接結合することで、例えば、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) を用いて得られる硬化物の強度やガスバリア性、ダイシング性 (切削加工性) を向上させることが可能となる。ここで、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 由来のアルケニル基およびヒドロシリル基のヒドロシリル化反応において、アルケニル基またはヒドロシリル基のどちらか一方が残留していることが、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) を用いて得られる硬化物の硬度や強度、ガスバリア性やダイシング性 (切削加工性) の観点から好ましい。ここで、前記、アルケニル基またはヒドロシリル基のどちらか一方が残留した状態とは、アルケニル基もしくはヒドロシリル基の一方が実質的に消失してポリシロキサン化合物 (b) の 1 分子中に、平均して 0 . 5 個以下、好ましくは、0 . 2 個以下、さらに好ましくは 0 個の状態となり、他方、残留する置換基の数がポリシロキサン化合物 (b) 1 分子中に、平均して、1 . 5 個、好ましくは 2 個、さらに好ましくは、2 . 5 個以上の状態となることをさす。このとき、ガスバリア性の観点からは、残留する置換基の数がさらに多くなることがより好ましい。

【 0 0 4 8 】

また、具体的に例えば、最終的に得られるヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) やヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 (A) を含有する組成物を硬化させて得られる硬化物の耐熱性や耐光性の観点から、アルケニル基のみが残留していることが好ましい。

【 0 0 4 9 】

また、アルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物 (a) 同士をヒドロシリル化反応させてポリシロキサン化合物 (b) を得る際には、ヒドロシリル化触媒を用いることができる。前記ヒドロシリル化触媒としては、特に制限はなく、任意のものを使用することができる。具体的に例示すると、白金 - オレフィン錯体、塩化白金酸、白金の単体、担体 (アルミナ、シリカ、カーボンブラック等) に固体白金を担持させたもの ; 白金 - ビニルシロキサン錯体 { 例えば、 $Pt_n (ViMe_2SiOSiMe_2Vi)_n$ 、 $Pt \{ (MeViSiO)_4 \}_n$ } ; 白金 - ホスフィン錯体 { 例えば、 $Pt (PPh_3)_4$ 、 $Pt (PBu_3)_4$ } ; 白金 - ホスファイト錯体 { 例えば、 $Pt \{ P(OPh)_3 \}_4$ 、 $Pt \{ P(OBu)_3 \}_4$ } (式中、Me はメチル基、Bu はブチル基、Vi はビニル基、Ph はフェニル基を表し、n、m は整数を表す)、 $Pt (acac)_2$ 、また、Ashbyらの米国特許第 3 1 5 9 6 0 1 及び 3 1 5 9 6 6 2 号明細書中に記載された白金 - 炭化水素複合体、並びに Lamoreauxらの米国特許第 3 2 2 0 9 7 2 号明細書中に記載された白金アルコール - ト触媒も挙げられる。

【 0 0 5 0 】

10

20

30

40

50

また、白金化合物以外の触媒の例としては、 $RhCl(PPh_3)_3$ 、 $RhCl_3$ 、 Rh/Al_2O_3 、 $RuCl_3$ 、 $IrCl_3$ 、 $FeCl_3$ 、 $AlCl_3$ 、 $PdCl_2 \cdot 2H_2O$ 、 $NiCl_2$ 、 $TiCl_4$ 、等が挙げられる。これらの触媒は単独で使用してもよく、2種以上併用しても構わない。触媒活性の点から塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体、 $Pt(acac)_2$ 等が好ましい。

【0051】

ヒドロシリル化反応の反応温度としては、 $30 \sim 400$ 、さらに好ましくは、 $40 \sim 250$ であることが好ましい。また、ポリシロキサン化合物(b)にヒドロシリル化触媒が残存する場合は、残存するヒドロシリル化触媒を、次の(c)とヒドロシリル化する際のヒドロシリル化触媒として用いることも可能である。

10

【0052】

<ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)>

本発明におけるヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)は、分子中にヒドロシリル基またはアルケニル基を平均して1個以上含有する化合物であれば特に制限はないが、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)のハンドリング性、成形加工性、透明性、あるいは、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)を用いて得られる硬化物の透明性、耐熱性、耐光性の観点から、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を含有するシロキサン化合物、さらには、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する環状シロキサン、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する直鎖状シロキサン、特に、耐青色レーザー性やガスバリア性等の観点から、ヒドロシリル基もしくはアルケニル基を有する環状シロキサンが好ましいものとして例示される。

20

本発明におけるヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)は単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。

【0053】

前記アルケニル基を有する直鎖状シロキサンとしては、ジメチルシロキサン単位とメチルビニルシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、ジフェニルシロキサン単位とメチルビニルシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、メチルフェニルシロキサン単位とメチルビニルシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、ジメチルビニルシロキサンで末端が封鎖されたポリシロキサン、などが例示される。

30

【0054】

前記アルケニル基を有する環状シロキサンとしては、1,3,5,7-ビニル-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1-プロピル-3,5,7-トリビニル-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1,5-ジビニル-3,7-ジヘキシル-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1,3,5-トリビニル-トリメチルシクロシロキサン、1,3,5,7,9-ペンタビニル-1,3,5,7,9-ペンタメチルシクロシロキサン、1,3,5,7,9,11-ヘキサビニル-1,3,5,7,9,11-ヘキサメチルシクロシロキサンなどが例示される。

前記ヒドロシリル基を有する直鎖状シロキサンの具体例としては、ジメチルシロキサン単位とメチルヒドロジェンシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、ジフェニルシロキサン単位とメチルヒドロジェンシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、メチルフェニルシロキサン単位とメチルヒドロジェンシロキサン単位及び末端トリメチルシロキシ単位との共重合体、ジメチルヒドロジェンシロキサンで末端が封鎖されたポリシロキサン、1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、などが例示される。

40

【0055】

前記ヒドロシリル基を有する環状シロキサンの具体例としては、1,3,5,7-テトラヒドロジェン-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1-プロピル-3,5,7-トリヒドロジェン-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1,5-ジヒドロジェン-3,7-ジヘキシル-1,3,5,7-テトラメチ

50

ルシクロテトラシロキサン、1, 3, 5 - トリヒドロジェン - トリメチルシクロシロキサン、1, 3, 5, 7, 9 - ペンタヒドロジェン - 1, 3, 5, 7, 9 - ペンタメチルシクロシロキサン、1, 3, 5, 7, 9, 11 - ヘキサヒドロジェン - 1, 3, 5, 7, 9, 11 - ヘキサメチルシクロシロキサンなどが例示される。

【0056】

本発明におけるヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)は、耐熱性・耐光性の観点から、Si原子上は、水素原子、ビニル基、メチル基から構成されることが好ましく、さらには、1, 3, 5, 7 - テトラヒドロジェン - 1, 3, 5, 7 - テトラメチルシクロテトラシロキサン、1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサンが入手性にも優れていることから好ましい。また、特に、耐青色レーザー性やガスバリア性の観点から、1, 3, 5, 7 - テトラヒドロジェン - 1, 3, 5, 7 - テトラメチルシクロテトラシロキサンが好ましい。

10

【0057】

ヒドロシリル基もしくはアルケニル基含有化合物(c)の添加量は、ポリシロキサン化合物(b)にアルケニル基が残留している場合、残留するアルケニル基1個あたり、(c)成分のSi原子に直結した水素原子の数が1個より多いことが好ましく、さらに好ましくは2.5~20個になるように用いることであるが、化合物に依存する。添加量が少ないと、架橋反応によりゲル化が生じてハンドリング性の劣るヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)となり、多すぎると、(A)を用いて得られる硬化物の物性に悪影響を及ぼす場合がある。さらには、過剰量の(c)成分を存在させるため、例えば減圧・加熱条件下にて、未反応の(c)成分を取り除くことが好ましい。

20

【0058】

また、ポリシロキサン化合物(b)にヒドロシリル基が残留している場合、残留するヒドロシリル基1個あたり、(c)成分のSi原子に直結したアルケニル基の数が1個より少ないことが好ましく、さらに好ましくは0.05~0.4個になるように用いることであるが、化合物に依存する。添加量が少ないと、硬化物の物性に悪影響を及ぼす場合があり、多すぎると、架橋反応によりゲル化が生じてハンドリング性の劣るヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)となる。

【0059】

<(B)環状オレフィン化合物>

本発明における(B)成分である環状オレフィン化合物は、前記(A)成分とヒドロシリル化反応により硬化する。本発明における(B)成分は(A)成分との相溶性が良く、(A)成分および(B)成分を用いたオルガノポリシロキサン系組成物は成型加工性に優れている。そのため、(A)成分および(B)成分を用いたオルガノポリシロキサン系組成物を硬化させることで、硬化ムラのない透明な硬化物が得られる。また、(B)成分を硬化材として用いることで、耐熱性が高く、ガスバリア性が高い材料が得られる。

30

【0060】

本発明における(B)成分は、環状オレフィン化合物であればよいが、内部オレフィンを含む炭素-炭素2重結合が2個以上有することがガスバリア性の観点から好ましく、内部オレフィン以外に、末端オレフィンを有していてもよい。

40

【0061】

また、本発明における(B)成分は、平均分子量が1000以下であることが(A)成分との相溶性の観点から好ましい。

【0062】

このような環状オレフィン化合物として、脂肪族環状ポリエン化合物、置換脂肪族環状オレフィン化合物等が挙げられる。

脂肪族環状ポリエン化合物として、具体的に例えば、シクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、シクロオクタジエン、ジシクロペンタジエン、トリシクロペンタジエン、ノルボルナジエン等が挙げられる。

置換脂肪族環状オレフィン化合物として、具体的に例えば、4 - ビニル - 1 - シクロヘキ

50

セン、3 - ビニル - 1 - シクロヘキセン、5 - ビニルノルボルネン、4 - ビニル - 1 - シクロペンテン、4 - ビニル - 1 - シクロヘプテン、4 - ビニル - 1 - シクロオクテン、5 - ビニル - 1 - シクロオクテン、4 - アリル - 1 - シクロヘキセン、3 - アリル - 1 - シクロヘキセン、5 - アリルノルボルネン、4 - アリル - 1 - シクロペンテン、4 - アリル - 1 - シクロヘプテン、4 - アリル - 1 - シクロオクテン、5 - アリル - 1 - シクロオクテン等が挙げられる。

【0063】

中でも、入手性、相溶性、硬化物の透明性、ガスバリア製の観点から、5 - ビニルノルボルネン、ジシクロペンタジエン、4 - ビニル - 1 - シクロヘキセンが好ましい例として挙げられる。

10

これらは、単独で用いても良く、2種類以上併用して用いてもよい。

【0064】

本発明における(B)成分の添加量は種々設定できるが、炭素-炭素2重結合1個あたり、多面体構造ポリシロキサン系化合物に含まれるSi原子に直結した水素原子が0.3~5個、好ましくは、0.5~3個となる割合で添加されることが望ましい。炭素-炭素2重結合の割合が少なすぎると、発泡等による外観不良が生じやすくなり、また、多すぎると硬化物の物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0065】

<硬化触媒>

本発明では、オルガノポリシロキサン系組成物を硬化させる際に、ヒドロシリル化触媒を用いる。

20

【0066】

本発明で用いるヒドロシリル化触媒としては、通常ヒドロシリル化触媒として公知のものを用いることができ特に制限はない。

【0067】

具体的には例示すれば、白金 - オレフィン錯体、塩化白金酸、白金の単体、担体(アルミナ、シリカ、カーボンブラック等)に固体白金を担持させたもの;白金 - ビニルシロキサン錯体、例えば、 $Pt_n(ViMe_2SiOSiMe_2Vi)_n$ 、 $Pt\{(MeViSiO)_4\}_m$;白金 - ホスフィン錯体、例えば、 $Pt(PPh_3)_4$ 、 $Pt(PBu_3)_4$;白金 - ホスファイト錯体、例えば、 $Pt\{P(OPh)_3\}_4$ 、 $Pt\{P(OBu)_3\}_4$ (式中、Meはメチル基、Buはブチル基、Viはビニル基、Phはフェニル基を表し、n、mは整数を表す)、 $Pt(acac)_2$ 、また、Ashbyらの米国特許第3159601及び3159662号明細書中に記載された白金 - 炭化水素複合体、並びにLamoreauxらの米国特許第3220972号明細書中に記載された白金アルコラ - ト触媒も挙げられる。

30

【0068】

また、白金化合物以外の触媒の例としては、 $RhCl(PPh_3)_3$ 、 $RhCl_3$ 、 Rh/Al_2O_3 、 $RuCl_3$ 、 $IrCl_3$ 、 $FeCl_3$ 、 $AlCl_3$ 、 $PdCl_2 \cdot 2H_2O$ 、 $NiCl_2$ 、 $TiCl_4$ 、等が挙げられる。これらの触媒は単独で使用してもよく、2種以上併用しても構わない。触媒活性の点から塩化白金酸、白金 - オレフィン錯体、白金 - ビニルシロキサン錯体、 $Pt(acac)_2$ 等が好ましい。

40

【0069】

<硬化遅延剤>

硬化遅延剤は、本発明のオルガノポリシロキサン系組成物の保存安定性を改良あるいは、硬化過程でのヒドロシリル化反応の反応性を調整するための成分である。本発明においては、硬化遅延剤としては、ヒドロシリル化触媒による付加型硬化性組成物で用いられている公知のものが使用でき、具体的には脂肪族不飽和結合を含有する化合物、有機リン化合物、有機イオウ化合物、窒素含有化合物、スズ系化合物、有機過酸化物等が挙げられる。これらを単独使用、または2種以上併用してもよい。

【0070】

50

前記の脂肪族不飽和結合を含有する化合物としては、具体的には3-ヒドロキシ-3-メチル-1-ブチン、3-ヒドロキシ-3-フェニル-1-ブチン、3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール、1-エチニル-1-シクロヘキサノール等のプロパギルアルコール類、エン-イン化合物類、無水マレイン酸、マレイン酸ジメチル等のマレイン酸エステル類等が例示できる。

【0071】

有機リン化合物としては、具体的にはトリオルガノフォスフィン類、ジオルガノフォスフィン類、オルガノフォスフォン類、トリオルガノフォスファイト類等が例示できる。

【0072】

有機イオウ化合物としては、具体的にはオルガノメルカプタン類、ジオルガノスルフィド類、硫化水素、ベンゾチアゾール、チアゾール、ベンゾチアゾールジサルファイド等が例示できる。

10

【0073】

窒素含有化合物としては、具体的にはN,N,N,N-テトラメチルエチレンジアミン、N,N-ジメチルエチレンジアミン、N,N-ジエチルエチレンジアミン、N,N-ジブチルエチレンジアミン、N,N-ジブチル-1,3-プロパンジアミン、N,N-ジメチル-1,3-プロパンジアミン、N,N,N,N-テトラエチルエチレンジアミン、N,N-ジブチル-1,4-ブタンジアミン、2,2'-ピピリジン等が例示できる。

【0074】

スズ系化合物としては、具体的にはハロゲン化第一スズ2水和物、カルボン酸第一スズ等が例示できる。

20

【0075】

有機過酸化物としては、具体的にはジ-t-ブチルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ベンゾイルペルオキシド、過安息香酸t-ブチル等が例示される。これらのうち、マレイン酸ジメチル、3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール、1-エチニル-1-シクロヘキサノールが、特に好ましい硬化遅延剤として例示できる。

【0076】

硬化遅延剤の添加量は、特に限定するものではないが、ヒドロシリル化触媒1モルに対して 10^{-1} ~ 10^3 モルの範囲で用いるのが好ましく、1~100モルの範囲で用いるのがより好ましい。また、これらの硬化遅延剤は単独で使用してもよく、2種類以上組み合わせ使用してもよい。

30

【0077】

<接着性付与剤>

接着性付与剤は本発明におけるオルガノポリシロキサン系組成物と基材との接着性を向上する目的で用いるものであり、その様な効果があるものであれば特に制限はないが、シランカップリング剤が好ましい例として例示できる。

【0078】

シランカップリング剤としては、分子中に有機基と反応性のある官能基と加水分解性のケイ素基を各々少なくとも1個有する化合物であれば特に限定されない。有機基と反応性のある基としては、取扱い性の点からエポキシ基、メタクリル基、アクリル基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、ビニル基、カルバメート基から選ばれる少なくとも1個の官能基が好ましく、硬化性及び接着性の点から、エポキシ基、メタクリル基、アクリル基が特に好ましい。加水分解性のケイ素基としては取扱い性の点からアルコキシシリル基が好ましく、反応性の点からメトキシシリル基、エトキシシリル基が特に好ましい。

40

【0079】

好ましいシランカップリング剤としては、具体的には3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシ

50

クロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジエトキシシラン等のエポキシ官能基を有するアルコキシシラン類：3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシメチルトリメトキシシラン、メタクリロキシメチルトリエトキシシラン、アクリロキシメチルトリメトキシシラン、アクリロキシメチルトリエトキシシラン等のメタクリル基あるいはアクリル基を有するアルコキシシラン類が挙げられる。これらは、単独で用いてもよく、2種類以上併用してもよい。

【0080】

シランカップリング剤の添加量としては、(A)成分と(B)成分の混合物100重量部に対して、0.05~30重量部であることが好ましく、さらに好ましくは、0.1~10重量部である。添加量が少ないと接着性改良効果が表れず、添加量が多いと硬化物の物性に悪影響を及ぼす場合がある。

【0081】

本発明においては、接着性付与剤の効果を高めるために、公知の接着性促進剤を用いることができる。接着性促進剤としては、エポキシ含有化合物、エポキシ樹脂、ボロン酸エステル化合物、有機アルミニウム化合物、有機チタン化合物が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0082】

<無機フィラー>

本発明のオルガノポリシロキサン系組成物は、必要に応じて無機フィラーを添加することができる。

【0083】

本発明のオルガノポリシロキサン系組成物の組成成分として無機フィラーを用いることにより、得られる成形体の強度、硬度、弾性率、熱膨張率、熱伝導率、放熱性、電気的特性、光の反射率、難燃性、耐火性、およびガスバリア性等の諸物性を改善することができる。

【0084】

無機フィラーは、無機物もしくは無機物を含む化合物であれば特に限定されないが、具体的に例えば、石英、ヒュームドシリカ、沈降性シリカ、無水ケイ酸、熔融シリカ、結晶性シリカ、超微粉無定型シリカ等のシリカ系無機フィラー、アルミナ、ジルコン、酸化鉄、酸化亜鉛、酸化チタン、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化アルミ、炭化ケイ素、ガラス繊維、ガラスフレーク、アルミナ繊維、炭素繊維、マイカ、黒鉛、カーボンブラック、フェライト、グラファイト、ケイソウ土、白土、クレー、タルク、水酸化アルミニウム、炭酸カルシウム、炭酸マンガン、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、チタン酸カリウム、ケイ酸カルシウム、無機バルーン、銀粉等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種類以上併用してもよい。

【0085】

無機フィラーは、適宜表面処理をほどこしてもよい。表面処理としては、アルキル化処理、トリメチルシリル化処理、シリコーン処理、カップリング剤による処理等が挙げられるが、特に限定されるものではない。

【0086】

前記カップリング剤の例としては、シランカップリング剤が挙げられる。シランカップリング剤としては、分子中に有機基と反応性のある官能基と加水分解性のケイ素基を各々少なくとも1個有する化合物であれば特に限定されない。有機基と反応性のある基としては、取扱い性の点からエポキシ基、メタクリル基、アクリル基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、ビニル基、カルバメート基から選ばれる少なくとも1個の官能基が好ましく、硬化性及び接着性の点から、エポキシ基、メタクリル基、アクリル基が特に好ましい。加水分解性のケイ素基としては取扱い性の点からアルコキシシリル基が好ましく、反

10

20

30

40

50

応性の点からメトキシシリル基、エトキシシリル基が特に好ましい。

【0087】

好ましいシランカップリング剤としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン等のエポキシ官能基を有するアルコキシシラン類：3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシメチルトリメトキシシラン、メタクリロキシメチルトリエトキシシラン、アクリロキシメチルトリメトキシシラン、アクリロキシメチルトリエトキシシラン等のメタクリル基あるいはアクリル基を有するアルコキシシラン類が挙げられる。

10

【0088】

上記無機フィラーをオルガノポリシロキサン系組成物の組成分として用いることにより、得られる成形体の強度、硬度、弾性率、熱膨張率、熱伝導率、放熱性、電気的特性、光の反射率、難燃性、耐火性等の諸物性を改善することができる。

【0089】

無機フィラーの形状としては、破砕状、片状、球状、棒状等、各種用いることができる。無機フィラーの平均粒径や粒径分布は、特に限定されるものではないが、平均粒径が0.005~100 μ mであることが好ましく、さらには0.01~50 μ mであることが好ましい。同様に、比表面積についても、特に限定されない。

20

【0090】

無機フィラーの添加量は特に限定されないが、(A)成分と(B)成分の混合物100重量部に対して、1~1000重量部、よりこの好ましくは、5~500重量部、さらに好ましくは、10~300重量部である。無機フィラーの添加量が多すぎると、流動性が悪くなる場合があり、少ないと、得られる成型体の物性が不十分となる場合がある。

【0091】

無機フィラーの混合の順序としては、特に限定されないが、貯蔵安定性が良好になりやすいという点においては、(B)成分に混ぜた後、(A)成分を混合する方法が望ましい。また、反応成分である(A)成分、(B)成分がよく混合され安定した成形物が得られやすいという点においては、(A)成分、(B)成分を混合したものに、無機フィラーを混合することが好ましい。

30

【0092】

これら無機フィラーを混合する手段としては、特に限定されるものではないが、具体的に例えば、2本ロールあるいは3本ロール、遊星式攪拌脱泡装置、ホモジナイザー、ディゾルバー、プラネタリーミキサー等の攪拌機、プラストミル等の溶融混練機等が挙げられる。無機フィラーの混合は、常温で行ってもよいし加熱して行ってもよく、また、常圧下に行ってもよいし減圧状態で行ってもよい。混合する際の温度が高いと、成型する前に組成物が硬化する場合がある。

【0093】

<オルガノポリシロキサン系組成物および硬化物>

40

本発明のオルガノポリシロキサン系組成物は、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体(A)に、環状オレフィン化合物(B)、必要に応じて、ヒドロシリル化触媒、硬化遅延剤、接着性付与剤を加えることにより得ることができる。本発明のオルガノポリシロキサン系組成物は、液状樹脂組成物として取り扱うことが可能であり、成型加工性に優れる。この液状組成物を、型、パッケージ、基板等に流し込み、加熱して硬化させることで容易に成型体を得ることができる。本発明のオルガノポリシロキサン系組成物によって得られる成型体は、透明性、耐熱、耐光性、ガスバリア性に優れるに優れる。

【0094】

硬化させる際に温度を加える場合は、好ましくは、30~400、さらに好ましくは50~250である。硬化温度が高くなり過ぎると、得られる硬化物に外観不良が生じ

50

る傾向があり、低すぎると硬化が不十分となる。また、２段階以上の温度条件を組み合わせることで硬化させてもよい。具体的には例えば、70、120、150 の様に段階的に硬化温度を引き上げていくことで、良好な硬化物を得ることができ好ましい。

本発明においては、必要に応じて、ヒドロシリル化触媒を追加して用いることができる。硬化時間は硬化温度、用いるヒドロシリル化触媒の量及びヒドロシリル基の量、その他、本願組成物のその他の配合物の組み合わせにより適宜選択することができるが、あえて例示すれば、1分～12時間、好ましくは10分～8時間行うことにより、良好な硬化物を得ることができる。

【0095】

本発明におけるオルガノポリシロキサン系組成物は、具体的に例えば、パッケージや基板などに、注入あるいは塗布して使用することが可能である。注入あるいは塗布した後、上述の硬化条件にて、硬化させることで、用途に応じた成型体を容易に得ることができる。

10

【0096】

また、本発明のオルガノポリシロキサン系組成物には、必要に応じて蛍光体、着色剤、耐熱性向上剤などの各種添加剤や反応制御剤、離型剤あるいは充填剤用分散剤などを任意で添加することができる。この充填剤用分散剤としては、例えば、ジフェニルシランジオール、各種アルコキシシラン、カーボンファンクショナルシラン、シラノール基含有低分子量シロキサンなどが挙げられる。なお、これら任意成分は、本発明の効果を損なわないように最小限の添加量に止めることが好ましい。

20

【0097】

本発明に用いるオルガノポリシロキサン系組成物は、上記した成分をロール、バンバリミキサー、ニーダーなどの混練機を用いたり、遊星式攪拌脱泡機を用いて均一に混合し、必要に応じて加熱処理を施したりしてもよい。

【0098】

本発明のオルガノポリシロキサン系組成物は、成型体として使用することができる。成型方法としては、押出成形、圧縮成形、ブロー成形、カレンダー成形、真空成形、発泡成形、射出成形、液状射出成形、注型成形などの任意の方法を使用することができる。本発明によるオルガノポリシロキサン系組成物から得られる成型体は、耐熱性、耐光性に優れ、光学材料用組成物として用いることができる。ここで言う光学材料とは、可視光、赤外線、紫外線、X線、レーザーなどの光をその材料中を通過させる用途に用いる材料一般を示す。

30

【0099】

本発明において得られる変性体および組成物の用途としては、具体的には、カラーフィルター、レジスト材料、液晶ディスプレイ分野における基板材料、パッシベーション膜、導光板、プリズムシート、偏向板、位相差板、視野角補正フィルム、接着剤、偏光子保護フィルムなどの液晶用フィルムなどの液晶表示装置周辺材料が例示される。

【0100】

また、次世代フラットパネルディスプレイとして期待されるカラーPDP（プラズマディスプレイ）の封止剤、反射防止フィルム、光学補正フィルム、ハウジング材、前面ガラスの保護フィルム、前面ガラス代替材料、接着剤、LED表示装置に使用されるLED素子のモールド材、前面ガラスの保護フィルム、前面ガラス代替材料、接着剤、プラズマアドレス液晶（PALC）ディスプレイにおける基板材料、導光板、プリズムシート、偏向板、位相差板、視野角補正フィルム、接着剤、偏光子保護フィルム。

40

【0101】

有機EL（エレクトロルミネッセンス）ディスプレイにおける前面ガラスの保護フィルム、前面ガラス代替材料、接着剤、フィールドエミッションディスプレイ（FED）における各種フィルム基板、前面ガラスの保護フィルム、前面ガラス代替材料、接着剤が例示される。

【0102】

50

光記録分野では、V D (ビデオディスク)、C D / C D - R O M、C D - R / R W、D V D - R / D V D - R A M、M O / M D、P D (相変化ディスク)、光カード用のディスク基板材料、ピックアップレンズ、保護フィルム、封止剤、接着剤が例示される。

【0103】

光学機器分野では、スチールカメラのレンズ用材料、ファインダプリズム、ターゲットプリズム、ファインダーカバー、受光センサー部が例示される。また、ビデオカメラの撮影レンズ、ファインダーが例示される。またプロジェクションテレビの投射レンズ、保護フィルム、封止剤、接着剤などが例示される。光センシング機器のレンズ用材料、封止剤、接着剤、フィルムなどが例示される。

【0104】

光部品分野では、光通信システムでの光スイッチ周辺のファイバー材料、レンズ、導波路、素子の封止剤、接着剤などが例示される。

光コネクタ周辺の光ファイバー材料、フェルール、封止剤、接着剤などが例示される。

光受動部品、光回路部品ではレンズ、導波路、L E D素子の封止剤、接着剤などが例示される。

光電子集積回路(O E I C)周辺の基板材料、ファイバー材料、素子の封止剤、接着剤などが例示される。

【0105】

光ファイバー分野では、装飾ディスプレイ用照明・ライトガイドなど、工業用途のセンサー類、表示・標識類など、また通信インフラ用および家庭内のデジタル機器接続用の光ファイバーが例示される。

【0106】

半導体集積回路周辺材料では、L S I、超L S I材料用のマイクロリソグラフィー用のレジスト材料が例示される。

【0107】

自動車・輸送機分野では、自動車用のランプリフレクタ、ベアリングリテーナー、ギア部分、耐蝕コート、スイッチ部分、ヘッドランプ、エンジン内部品、電装部品、各種内外装品、駆動エンジン、ブレーキオイルタンク、自動車用防錆鋼板、インテリアパネル、内装材、保護・結束用ワイヤーネス、燃料ホース、自動車ランプ、ガラス代替品が例示される。また、鉄道車輛用の複層ガラスが例示される。また、航空機の構造材の靱性付与剤、エンジン周辺部材、保護・結束用ワイヤーネス、耐蝕コートが例示される。

【0108】

建築分野では、内装・加工用材料、電気カバー、シート、ガラス中間膜、ガラス代替品、太陽電池周辺材料が例示される。農業用では、ハウス被覆用フィルムが例示される。

【0109】

次世代の光・電子機能有機材料としては、次世代D V D、有機E L素子周辺材料、有機フォトリソグラフィ素子、光-光変換デバイスである光増幅素子、光演算素子、有機太陽電池周辺の基板材料、ファイバー材料、素子の封止剤、接着剤などが例示される。

【0110】

<透湿度>

本発明のオルガノポリシロキサン系組成物を用いた硬化後の透湿度は $30 \text{ g} / \text{m}^2 / 24 \text{ h}$ 以下であることがガスバリア性の観点から好ましい。

なお、透湿度とは以下の方法に従って算出することができる。

【0111】

5cm角の板ガラス(0.5mm厚)の上部に5cm角のポリイソブチレンゴムシート(3mm厚、口の字型になるように内部の3cm角を切り取ったもの)を固定した治具を作製し、和光純薬工業製塩化カルシウム(水分測定用)1gを口の字型内に充填しこれを試験体とする。さらに上部に5cm角の評価用硬化物(2mm厚)を固定し、恒温恒湿機(エスベック製PR2KP)内で温度40、湿度、90%RHで24時間養生する。下記式に従い、透湿度を算出することができる。

10

20

30

40

50

【0112】

透湿度 ($g / m^2 / 24 h$) = { (透湿性試験後の試験体総重量 (g)) - (透湿性試験前の試験体総重量 (g)) } × 10000 / 9 cm^2

尚、ここに記載の試験体総重量とは、5 cm角の板ガラス、および5 cm角のポリイソブチレンゴムシート、および塩化カルシウム、および5 cm角の評価用硬化物を含んだ総重量である。また、ここで使用したポリイソブチレンゴムは、同様の透湿度の試験の結果、 $0 g / m^2 / 24 h$ であることが確認されている。

【0113】

硬化後の透湿度が $30 g / m^2 / 24 h$ 以下であることにより水分、更には、酸素、硫化水素等のガス透過が抑制されて、例えば、LEDにおける銀リードフレームや、リフレクター等の腐食が生じにくくなるなど、耐久性が向上する効果が期待できる。

10

【0114】

< 粘弾性 (損失正接の極大位置 :) >

本発明におけるオルガノポリシロキサン系組成物は特定の粘弾性挙動を示すものである。一般に角周波数 ω の正弦波形震動応力 (σ) を受けた場合、 σ と応力における複素弾性率は $E^* = E' + i E''$ で示される。ここで E' は貯蔵弾性率、 E'' は損失弾性率である。応力と σ の位相差が δ である場合、損失正接 ($\tan \delta$) は、 E'' / E' で表される。

【0115】

本発明におけるオルガノポリシロキサン系組成物は、20 以上において、少なくとも1つの損失正接の極大値を有する。損失正接の極大値は、30 以上の範囲内にあることがより好ましく、40 以上の範囲内にあることがさらに好ましい。低温に極大値を有すると、硬化物の耐熱性が低下し、ガスバリア性が低下する場合がある。

20

【実施例】

【0116】

次に本発明の組成物を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。

【0117】

(組成物の相溶性)

オルガノポリシロキサン系組成物を配合後、30分間室温で放置しても分離することなく、透明であるものは、配合後、白濁し分離するものは×とした。

30

【0118】

(硬化物形状)

5 cm角の板ガラス (0.5 mm厚) の上部に、7 cm角のシリコンゴムシート (2 mm厚、口の字型になるように内部を5 cm角に切り取ったもの) を固定した治具を作製した。そこにオルガノポリシロキサン系組成物を流し込み、対流式オーブンで80 × 2時間、100 × 1時間、150 × 6時間熱硬化させることで、2 mm厚の硬化物を作成した。得られた硬化物形状を目視で確認し、透明で皺による硬化ムラのないものは、皺による硬化ムラがあるものは×とした。

【0119】

(透明性)

10 cm × 10 cmの板ガラス2枚を純水で洗浄し、乾燥させた。その後、フッ素系離型剤 (ダイキン工業社製ダイフリー、GA6010) でスプレーし、キムワイプで均一に塗布した後、余剰分を除去した。コの字型に切った2 mm厚のシリコンゴムにテフロン (登録商標) シールを巻いた素ペーサーを2枚の上記板ガラスで挟んでクリップで固定し、150、1 h加熱乾燥してガラスセルを作成した。

40

このガラスセルにオルガノポリシロキサン系組成物を流し込み、対流式オーブンで80 × 2時間、100 × 1時間、150 × 6時間熱硬化させることで、2 mm厚の硬化物を作成した。

【0120】

初期の指標として、硬化後のサンプルを目視により確認し、透明であるものは、透明

50

でないものは×とした。

【0121】

透明性（耐熱後）の指標として、上記、ガラスセルで作成した2mm厚の硬化物を、さらに対流式オープンにて120 × 50時間加熱した。この硬化物を放冷後、目視により、硬化物が着色せず透明であるものは、着色や透明でないものは×とした。

【0122】

（透湿度）

オルガノポリシロキサン系組成物を型に5cm角の型に充填し、対流式オープンで80 × 2時間、100 × 1時間、150 × 6時間熱硬化させて厚さ2mmの試料を作成した。この硬化物を室温25、湿度55%RHの状態ですべて24時間養生した。

10

本発明における透湿度とは以下の方法に従って算出したものである。

【0123】

5cm角の板ガラス（0.5mm厚）の上部に5cm角のポリイソブチレンゴムシート（3mm厚、口の字型になるように内部の3cm角を切り取ったもの）を固定した治具を作製し、和光純薬工業製塩化カルシウム（水分測定用）1gを口の字型内に充填しこれを試験体とした。さらに上部に5cm角の評価用硬化物（2mm厚）を固定し、恒温恒湿機（エスベック製PR-2KP）内で温度40、湿度、90%RHで24時間養生した。下記式に従い、透湿度を算出した。

【0124】

透湿度 ($\text{g} / \text{m}^2 / 24 \text{h}$) = { (透湿性試験後の試験体総重量 (g)) - (透湿性試験前の試験体総重量 (g)) } × 10000 / 9.0 cm^2

20

尚、ここに記載の試験体総重量とは、5cm角の板ガラス、および5cm角のポリイソブチレンゴムシート、および塩化カルシウム、および5cm角の評価用硬化物を含んだ総重量である。また、ここで使用したポリイソブチレンゴムは、同様の透湿度の試験の結果、 $0 \text{g} / \text{m}^2 / 24 \text{h}$ であることが確認されている。

【0125】

< 損失正接の極大値 () >

（動的粘弾性測定用サンプル作成）

封止層を形成させる硬化性組成物を型に充填し、対流式オープンで80 × 2時間、100 × 1時間、150 × 6時間熱硬化させて、長さ35mm、幅5mm、厚さ2mmのサンプルを作成した。

30

【0126】

（動的粘弾性測定）

上記の通り作成したサンプルの動的粘弾性を、UBM社製動的粘弾性測定装置Reogel LE4000を用い、測定温度 - 40 ~ 150、昇温速度4 毎分、歪み4μメートル、周波数10Hz、チャック間25mm、引張モードで測定した。測定温度 - 40 ~ 150 の間で、損失正接 (tan) の極大値 () を求めた。

【0127】

（製造例1）

多面体構造を有するポリシロキサンの合成方法としては、48%トリメチル-2ヒドロキシエチルアンモニウムヒドロオキシド水溶液（コリン水溶液）1288gにテトラアルコキシシラン1042gを加え、室温で3時間激しく攪拌した。反応系内が発熱し、均一溶液になった段階で、攪拌を緩め、さらに12時間反応させた。次に、反応系内に生成した固形物に、メタノール750mLを加え均一溶液とした。ジメチルビニルクロロシラン588g、トリメチルクロロシラン554g、ジメチルクロロシラン132g、ヘキササン750mLの溶液を攪拌しながら、得られた均一溶液をゆっくりと滴下した。滴下終了後、1時間反応させた後、有機層を抽出、濃縮することにより、固形物を得た。次に、生成した固形物をアセトニトリル中で攪拌し洗浄した後、ろ別することによりアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物601gを得た。

40

¹H-NMRより、ビニル基とトリメチルシリル基、ヒドロシリル基が、3.1 : 3.9

50

: 1.0の割合で導入している事を確認した。

【0128】

(製造例2)

製造例1で得られたアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物40g、トルエン200gの混合溶液に、白金ビニルシロキサン錯体(3%白金、キシレン溶液)10.1 μ L、トルエン10gの混合溶液を滴下し、105で1時間加温したのち、室温まで冷却した。¹H-NMRより、ポリシロキサン由来のヒドロシリル基が消失している事を確認した。

次いで1、3、5、7-テトラヒドロジェン-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン(クラリアント製)64gとトルエン64gの混合溶液に滴下し、105で2時間加温したのち、室温まで冷却した。¹H-NMRより、ポリシロキサン由来のビニル基が消失している事を確認した。得られた反応溶液から、トルエンと未反応の1、3、5、7-テトラヒドロジェン-1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサンを留去することにより、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体48gを得た。

【0129】

(製造例3)

多面体構造を有するポリシロキサンの合成方法として、48%トリメチル-2ヒドロキシエチルアンモニウムヒドロオキサイド水溶液(コリン水溶液)1288gにテトラアルコキシシラン1042gを加え、室温で3時間激しく攪拌した。反応系内が発熱し、均一溶液になった段階で、攪拌を緩め、さらに12時間反応させた。次に、反応系内に生成した固形物に、メタノール750mLを加え均一溶液とした。ジメチルビニルクロロシラン85g、トリメチルクロロシラン380g、ジメチルクロロシラン600g、ヘキサン750mLの溶液を攪拌しながら、得られた均一溶液をゆっくりと滴下した。滴下終了後、1時間反応させた後、有機層を抽出、濃縮することにより、固形物を得た。次に、生成した固形物をメタノール中で攪拌し洗浄した後、ろ別することによりアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物601gを得た。¹H-NMRより、ビニル基とトリメチルシリル基、ヒドロシリル基が、0.5:2.7:4.8の割合で導入している事を確認した。

【0130】

(製造例4)

製造例3で得られたアルケニル基およびヒドロシリル基を含有する多面体構造ポリシロキサン系化合物60g、トルエン300gの混合溶液に、白金ビニルシロキサン錯体(3%白金、キシレン溶液)3.0 μ L、トルエン10gの混合溶液を滴下し、105で1時間加温したのち、室温まで冷却した。¹H-NMRより、ポリシロキサン由来のビニル基が消失している事を確認した。

【0131】

次いで1、3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン5gとトルエン5gの混合溶液に滴下し、105で2時間加温したのち、室温まで冷却した。¹H-NMRより、シロキサン由来のビニル基が消失している事を確認した。得られた反応溶液から、トルエンを留去することにより、ヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体64gを得た。

【0132】

(実施例1)

製造例2で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、ビニルノルボルネン(TCI製、重量平均分子量120)0.58gを加え攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、オルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を型枠およびLEDパッケージに流し込み、80で2h、100で1h、150で6h加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表1に記載した。

【0133】

(実施例2)

製造例2で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、ジシクロペンタジエン(TCI製、重量平均分子量132)0.64gを加え攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、オルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を型枠およびLEDパッケージに流し込み、80で2h、100で1h、150で6h加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表1に記載した。

【0134】

(実施例3)

製造例2で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、4-ビニル-1-シクロヘキセン(TCI製、重量平均分子量108)0.53gを加え攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、オルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を型枠およびLEDパッケージに流し込み、80で2h、100で1h、150で6h加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。

そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表1に記載した。

【0135】

(実施例4)

製造例2で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、ビニルノルボルネン(TCI製、重量平均分子量120)0.58g、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(東レダウコーニング製、SH6040)0.14g、をに加え、さらに、エチルシクロヘキサノールを0.21 μ l、マレイン酸ジメチルを0.1 μ l添加し攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、オルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を型枠およびLEDパッケージに流し込み、80で2h、100で1h、150で6h加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表1に記載した。

【0136】

(実施例5)

製造例2で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、ビニルノルボルネン(TCI製、重量平均分子量120)0.58gを加え混合した。そこに、一次平均粒径7nmでBET比表面積が260(m^2/g)であるヒュームドシリカ(日本アエロジル社製、商品名アエロジルR812)0.28g、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(東レダウコーニング製、SH6040)0.14g、さらに、エチルシクロヘキサノールを0.21 μ l、マレイン酸ジメチルを0.1 μ l添加し攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、オルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を型枠およびLEDパッケージに流し込み、80で2h、100で1h、150で6h加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表1に記載した。

【0137】

(実施例6)

製造例4で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体5.00gに、ビニルノルボルネン(TCI製、重量平均分子量120)0.42gを加え、良く混合することによりオルガノポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたオルガノポリシロキサン系組成物を用いて、前述の各試験法に従い評価した。その結果を表1に記載した。

【0138】

(比較例1)

10

20

30

40

50

製造例 2 で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 5.00 g に、トリアリルイソシアヌレート（重量平均分子量 249）0.81 g を加え、さらに、エチニルシクロヘキサノールを 0.21 μ l、マレイン酸ジメチルを 0.1 μ l 添加し攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、ポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたポリシロキサン系組成物を型枠および LED パッケージに流し込み、80 で 2 h、100 で 1 h、150 で 6 h 加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表 1 に記載した。

【0139】

（比較例 2）

製造例 2 で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 5.00 g に、ジアリルイソシアヌレート（重量平均分子量 223）1.09 g を加え、さらに、エチニルシクロヘキサノールを 0.21 μ l、マレイン酸ジメチルを 0.1 μ l 添加し攪拌した後、遊星式攪拌脱泡機にて攪拌・脱泡を行い、ポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたポリシロキサン系組成物を型枠および LED パッケージに流し込み、80 で 2 h、100 で 1 h、150 で 6 h 加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表 1 に記載した。

【0140】

（比較例 3）

製造例 2 で得たヒドロシリル基含有多面体構造ポリシロキサン変性体 5.00 g に、ビニル基を両末端に含有する直鎖状ポリジメチルシロキサン（クラリアント製、商品名 MVD8V、重量平均分子量 780、Vi 価数 2.56 mol/kg）3.81 g を加え、良く混合することによりポリシロキサン系組成物を得た。このようにして得られたポリシロキサン系組成物を型枠および LED パッケージに流し込み、80 で 2 h、100 で 1 h、150 で 6 h 加熱して硬化させ、評価用成形体を得た。そして、各評価項目にしたがって、評価した結果を表 1 に記載した。

【0141】

【表 1】

| 実施例 | 組成物の 相溶性 | 硬化物形状 | 透明性 | | 透湿度 (g/m ² ・24h) | 損失正接の 極大値(°C) |
|-------|-------------|-------|-----|-----|--------------------------------|------------------|
| | | | 初期 | 耐熱後 | | |
| 実施例 1 | ○ | ○ | ○ | ○ | 16.0 | 66 |
| 実施例 2 | ○ | ○ | ○ | ○ | 16.9 | 68 |
| 実施例 3 | ○ | ○ | ○ | ○ | 19.5 | 61 |
| 実施例 4 | ○ | ○ | ○ | ○ | 17.0 | 68 |
| 実施例 5 | ○ | ○ | ○ | ○ | 15.8 | 69 |
| 実施例 6 | ○ | ○ | ○ | ○ | 18.2 | 63 |
| 比較例 1 | ×(白濁) | × | × | × | 14.1 | ND |
| 比較例 2 | ×(白濁) | × | × | × | 15.5 | ND |
| 比較例 3 | ○ | ○ | ○ | ○ | 47.8 | -40°Cより下 |

【0142】

上記のように、本発明のオルガノポリシロキサン系組成物は成型加工性に優れており、また本発明のオルガノポリシロキサン系組成物より得られた成型体は、硬化ムラがなく、透明性、耐熱性、ガスバリア性に優れることが分かった。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J002 CP041 DA019 DA029 DA079 DD027 DE099 DE109 DE119 DE139 DE149
DE189 DE239 DE249 DF019 DG049 DJ009 DJ019 DJ039 DJ049 DJ059
DK009 DL009 EA026 EC027 EH147 EK037 EK047 EK057 EL147 EN037
EV027 EV047 EV327 EW067 EW127 EW137 EX018 EX068 EX078 EZ047
FA019 FA049 FD019 FD146 FD207 FD348 GQ05
4J246 AA03 AA11 AB05 BA25X BA250 BA29X BA290 BB02X BB020 BB022
BB12X BB120 BB122 BB14X BB140 BB142 CA01X CA010 CA24X CA240
CA34X CA340 FA081 FA131 FA151 FA221 FA421 FA431 FA441 FB211
FC161 FD09 GC12 GC23 GC32 HA29
5F151 BA16 BA18 JA03