(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-535195
(P2024-535195A)
(43)公表日　令和6年9月30日(2024.9.30)

| (51)国際特許分類 | FI | テーマコード（参考） |
|---|---|---|
| *C08L 83/07 (2006.01)* | C08L 83/07 | 4J002 |

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全20頁）

| | |
|---|---|
| (21)出願番号 | 特願2024-513228(P2024-513228) |
| (86)(22)出願日 | 令和4年9月19日(2022.9.19) |
| (85)翻訳文提出日 | 令和6年2月27日(2024.2.27) |
| (86)国際出願番号 | PCT/US2022/043968 |
| (87)国際公開番号 | WO2023/055596 |
| (87)国際公開日 | 令和5年4月6日(2023.4.6) |
| (31)優先権主張番号 | 63/249,047 |
| (32)優先日 | 令和3年9月28日(2021.9.28) |
| (33)優先権主張国・地域又は機関 | 米国(US) |
| (81)指定国・地域 | AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC, |
| | 最終頁に続く |

| | |
|---|---|
| (71)出願人 | 590001418<br>ダウ シリコーンズ コーポレーション<br>アメリカ合衆国 ４８６８６－０９９４<br>ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード ２２００ |
| (74)代理人 | 100092783<br>弁理士　小林 浩 |
| (74)代理人 | 100095360<br>弁理士　片山 英二 |
| (74)代理人 | 100120134<br>弁理士　大森 規雄 |
| (74)代理人 | 100217663<br>弁理士　末広 尚也 |
| (72)発明者 | ガーナー、メアリー イー.<br>アメリカ合衆国 ４８６８６－０９９４ |
| | 最終頁に続く |

(54)【発明の名称】　硬化性ポリシロキサン組成物及びそれから調製される光学的に平滑なフィルム

(57)【要約】
硬化性組成物は、（ａ）１５～７３重量パーセントのビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂と、（ｂ）０．５～５重量パーセントのビニル官能性ジシロキサンと、（ｃ）２～２５重量%の水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂と、（ｄ）白金ヒドロシリル化触媒からの１～１０重量部／百万重量部の白金と、を含有し、ここで、（ａ）及び（ｂ）の濃度の合計は、少なくとも３５重量パーセントであり、重量パーセント値は、硬化性組成物の重量に対するものであり、硬化性組成物は、アセチレンアルコールヒドロシリル化抑制剤を含まない。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
硬化性組成物であって、
（ａ）７００～１９００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の平均化学構造（Ｉ）を有する、１５～７３重量パーセントのビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂：
$(R_3SiO_{1/2})_a(R'SiO_{3/2})_b((ZO)_xR'SiO_{(3-x/2)})_z$ （Ｉ）
（式中、少なくとも１つのＲは、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基であり、下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、下付き文字ａは、０．１５～０．３５の範囲内の値であり、下付き文字ｂは、０．６５～０．８５の範囲内の値であり、下付き文字ｚは、０～０．１０の範囲内であり、下付き文字ａ、ｂ、及びｚの合計は、１．０である）；
（ｂ）２５０～５００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の化学構造（ＩＩ）を有する、０．５～５重量パーセントのビニル官能性ジシロキサン：
$(R'R_2SiO_{1/2})_2$ （ＩＩ）
（式中、少なくとも１つのＲは、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基である）；
（ｃ）５００～１２００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の平均化学構造（ＩＩＩ）を有する、２～２５重量％の水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂：
$(R''_2HSiO_{1/2})_c(R'SiO_{3/2})_d((ZO)_xR'SiO_{(3-x/2)})_z$ （ＩＩＩ）
（式中、下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、下付き文字ｃは、０．５～０．７の範囲内の値を有し、下付き文字ｄは、０．３～０．５の範囲内の値を有し、下付き文字ｚは、０～０．１０の範囲内であり、下付き文字ｃ、ｄ、及びｚの合計は、１．０である）；
（ｄ）硬化性組成物の重量に基づいた、白金ヒドロシリル化触媒からの１～１０重量部／百万重量部の白金、
を含み、
ここで、
Ｒは、上記の要件を条件として、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基、及び１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基からなる群から選択され；Ｒ’は、記載の度に独立して、アリール基から選択され；Ｒ”は、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基から独立して選択され；Ｚは、記載の度に独立して、水素、及びアルキル基、及びＲ基からなる群から選択され；下付き文字ａ～ｄ及び下付き文字ｚは、シロキサン単位を含有する分子中の対応するシロキサン単位のモル比を指し；（ａ）及び（ｂ）の濃度の合計は、少なくとも３５重量パーセントであり；重量パーセント値は、硬化性組成物の重量に対するものであり；前記硬化性組成物は、アセチレンアルコールヒドロシリル化抑制剤を含まない、硬化性組成物。
【請求項２】
前記硬化性組成物が、０重量パーセントを超え、同時に６５重量パーセント以下である、３００～９０００ダルトンの範囲内の重量平均分子量及び化学構造（ＩＶ）を有する直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサンを更に含み：
$(R_3SiO_{1/2})_e(R'_{(2-x)}R''_xSiO_{2/2})_f$ （ＩＶ）
式中、各（$R_3SiO_{1/2}$）単位中の少なくとも１つのＲが末端アルケニル基であり、Ｒ’がアリール基から選択され、Ｒ”が１～８個の炭素原子を有するアルキル基から選択され、下付き文字ｘが０～１の範囲内の平均値を有し、下付き文字ｅが０．０３～０．９７の値を有し、下付き文字ｅ及び下付き文字ｆが、シロキサン単位を含有する前記分子中の会合したシロキサン単位のモル比であり、下付き文字ｅ及び下付き文字ｆの値の合計が

１．０であり、重量パーセントが、硬化性組成物重量に対するものであることを条件として、Ｒが、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基及び末端アルケニル基から選択される、請求項１に記載の硬化性組成物。

【請求項３】

前記硬化性組成物が、０重量パーセントを超え、同時に２５重量パーセント以下である、２５０～５００ダルトンの範囲内の重量平均分子量及び化学構造（Ｖ）を有するシリルヒドリド官能性直鎖オルガノシロキサンを更に含み：

$(HR_2SiO_{1/2})_2(R'_2SiO_{2/2})$ （Ｖ）

式中、Ｒが、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基から選択され、Ｒ’が、アリール基から選択される、請求項１又は請求項２に記載の硬化性組成物。

【請求項４】

ＳｉＨと末端アルケニル基とのモル比が、０．８～３．０の範囲内である、請求項１～請求項３のいずれか一項に記載の硬化性組成物。

【請求項５】

（ｉ）化学構造（Ｉ）が、以下の化学構造を有し：$(ViMe_2SiO_{1/2})_a(PhSiO_{3/2})_b((ZO)_xPhSiO_{(3-x/2)})_z$；

（ｉｉ）化学構造（ＩＩ）が、以下の化学構造を有し：$(ViMePhSiO_{1/2})_2$；

（ｉｉｉ）化学構造（ＩＩＩ）が、以下の化学構造を有し：$(HMe_2SiO_{1/2})_c(PhSiO_{3/2})_d((ZO)_xPhSiO_{(3-x/2)})_z$；

（ｉｖ）化学構造（ＩＶ）が、存在する場合は、以下の化学構造を有し：$(ViMe_2SiO_{1/2})_e(PhMeSiO_{2/2})_f$；

（ｖ）化学構造（Ｖ）が、存在する場合は、以下の化学構造を有し：$(HMe_2SiO_{1/2})_2(PhPhSiO_{2/2})$；かつ、

式中、「Ｖｉ」がビニル基を指し、「Ｐｈ」がフェニル基を指し、「Ｍｅ」がメチル基を指す、請求項１～請求項４のいずれか一項に記載の硬化性組成物。

【請求項６】

前記硬化性組成物が、前記シロキサン分子中のケイ素原子のモルに対して３モル％を超えるエポキシ含有基を含有するシロキサン分子を含まない、請求項１～請求項５のいずれか一項に記載の硬化性組成物。

【請求項７】

前記硬化性組成物のフィルムを形成し、次いで、１００摂氏度を超える温度まで前記フィルムを加熱して硬化ポリマーフィルムを形成することを含む、請求項１～請求項６のいずれか一項に記載の硬化性組成物を硬化する方法。

【請求項８】

請求項１～請求項６のいずれか一項に記載の組成物の硬化ポリマーフィルムを含む、硬化ポリマーフィルム。

【請求項９】

前記フィルムが、５８９ナノメートルの波長光を用いて測定した場合に１．５０以上の屈折率、２５～５００マイクロメートルの範囲内の厚さを有することを特徴とし、前記フィルムが、光学的に平滑な主面を有する、請求項８に記載の硬化ポリマーフィルム。

【請求項１０】

前記フィルムが、前記フィルムの縁部へと光を誘導するように、前記フィルムに結合された光源を更に含む、請求項８又は請求項９に記載の硬化ポリマーフィルム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、硬化性ポリシロキサン組成物、硬化性ポリシロキサン組成物を特に光学的に平滑なフィルムへと硬化させる方法、及び硬化性ポリシロキサン組成物から作製された光学的に平滑なフィルムに関する。

【背景技術】
【０００２】
序論
ライトガイドは、発光体から特定の所望の位置へと光を指向的に透過するのに有用である。物品の厚さ寸法を通って光を透過させるレンズとは対照的に、ライトガイドは、ライトガイド物品の縁部へと光を導き、次いで、物品の長さ及び／又は幅寸法を通ってライトガイドを通じてライトガイドの対向する縁部へと光を透過させる際に、ライトガイド物品内で光を内部反射することによって使用される。ライトガイド物品は、光がライトガイドを通って移動する際にライトガイド物品内に維持される光を最大にするために、表面粗さ及び屈折率についてより厳しい要件を有する。表面粗さ及び不充分な屈折率は、光がライトガイド物品内を移動する間にライトガイドの表面から内部反射するため、ライトガイドの表面を通る光の損失をもたらす可能性がある。光は、ライトガイド内の他の物体の周りの曲がりくねった経路又は複雑な経路を通って効率的に導かれ、かつ所望の位置で放射され得る。ライトガイドは、携帯電話、テレビ、及びディスプレイエレクトロニクスで広く使用されている。
【０００３】
ポリメチルシロキサンは、コストが高く屈折率が低いため、一般的なライトガイド媒体ではない。ポリメチルシロキサンは、典型的には約１．４の屈折率を有するが、一方でポリカーボネート（「ＰＣ」）及びポリ（メチルメタクリレート）（「ＰＭＭＡ」）のようなより一般的なライトガイド材料は、典型的には１．５を超える屈折率を有し、２０摂氏度で５８９ナノメートルの波長光を用いて測定される屈折率値を有する。材料は、ライトガイドとして材料内の光をより効率的に並進させるために、１．５０を超える屈折率を有することが望ましい。しかし、熱安定性などの固有の安定性が知られているので、ポリシロキサン材料をライトガイド媒体として使用することもまた望ましい。
【０００４】
ある特定のライトガイド用途では、ライトガイドは、およそ２５～５００マイクロメートルの厚さを有するフィルムである必要がある。そのような用途の例には、屋外ディスプレイエレクトロニクス、前面照明付き電子ディスプレイ、審美的照明又は周囲照明、自動車のアクセント照明、及び照明が薄くかつ／又は可撓性である領域（すなわち、光のシート）から放射する必要がある他の用途が含まれる。このようなフィルムは独自の課題を提示する。例としては、フィルムは、光学的に平滑であるか、又は光が表面の粗さ特徴に沿ってライトガイドから散乱し得る、対向する主面を有する必要がある。表面が２５ナノメートル未満である値$R_a$を特徴とする粗さを有する場合、表面は「光学的に平滑」であり、ここで、「$R_a$」とは、表面から光を拡散させるために意図的に粗面化された領域を除いて、表面上の任意の１．０ミリメートルの長さの線で遭遇する特徴高さの算術平均である。ライトガイドフィルムは、ライトガイドからの光を拡散させるために単語又は図形などの意図的に粗面化されたパターンを含むことができ、それらは意図的に光学的に平滑ではない。しかしながら、フィルムの残りの部分は、意図的に拡散させられる領域以外の領域において主面からの光拡散を最小限に抑えるために、光学的に平滑でなければならない。
【０００５】
更に、フィルムは、取り扱い可能なほど充分に高い弾性率まで硬化しなければならず、これは、ＡＳＴＭ Ｄ５２８９－１９ａによって測定されるように、１５デシニュートン＊メートル（ｄＮ＊ｍ）を超えるトルクの剛性まで硬化しなければならないことを意味する。そのようなフィルムを調製するのに好適な硬化性組成物は、２５摂氏度（℃）で少なくとも１時間の作業時間を有することが更に望ましく、ここで、作業時間は、組成物が２倍の粘度となるのに必要な時間である。
【発明の概要】
【０００６】
本発明は、２０摂氏度（℃）で５８９ナノメートルの波長光を用いて測定した場合に１

．５０以上の屈折率を有し、２５～５００マイクロメートルの厚さであり、２５ナノメートル未満の表面粗さ$R_a$値を有し、１５ｄＮ＊ｍを超える硬化剛性を有するフィルムへとキャスト及び硬化することができる、硬化性ポリシロキサン組成物を提供することによって、上述した各問題の解決策を提供する。更に、硬化性組成物は、１００℃を超える温度で（主面が空気に曝された状態で）外気中にて硬化させた場合、そのようなフィルムを形成することができる。硬化性組成物はまた、２５℃で少なくとも１時間の作業時間を有する。

【０００７】

この解決策は、キャストしてフィルムを形成し、次いでヒドロシリル化によって硬化させて上述した特性を伴うフィルム（「目標フィルム」）を得ることができる、ポリシロキサン材料の特定の組合せを発見した結果である。なお、ポリシロキサンにアリール基を含有させることにより、１．５０を超える値まで屈折率を高めることができることが知られている。しかしながら、本発明を発見する過程で、アリール官能性ポリシロキサンは、主面を空気に曝露した状態で１００℃を超える温度で硬化させた場合、光学的に平滑な主面を有するフィルムへの硬化に問題を有し得ることが見出された。本発明は、空気に曝露された場合に光学的に平滑な主面へと硬化することができるが、一方で目標フィルムの他の特性もまた達成することができる、特定の組成物を発見した結果である。

【０００８】

第１の態様では、本発明は、硬化性組成物であって、以下：

（ａ）７００～１９００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の平均化学構造（Ｉ）を有する、１５～７３重量パーセントのビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂：

$(R_3SiO_{1/2})_a(R'SiO_{3/2})_b((ZO)_xR'SiO_{(3-x/2)})_z$ （Ｉ）

（式中、少なくとも１つのＲは、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基であり、下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、下付き文字ａは、０．１５～０．３５の範囲内の値であり、下付き文字ｂは、０．６５～０．８５の範囲内の値であり、下付き文字ｚは、０～０．１０の範囲内であり、下付き文字ａ、ｂ、及びｚの合計は、１．０である）；

（ｂ）２５０～５００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の化学構造（ＩＩ）を有する、０．５～５重量パーセントのビニル官能性ジシロキサン：

$(R'R_2SiO_{1/2})_2$ （ＩＩ）

（式中、少なくとも１つのＲは、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基である）；

（ｃ）５００～１２００ダルトンの範囲内の重量平均分子量を有し、かつ以下の平均化学構造（ＩＩＩ）を有する、２～２５重量％の水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂：

$(R''_2HSiO_{1/2})_c(R'SiO_{3/2})_d((ZO)_xR'SiO_{(3-x/2)})_z$ （ＩＩＩ）

（式中、下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、下付き文字ｃは、０．５～０．７の範囲内の値を有し、下付き文字ｄは、０．３～０．５の範囲内の値を有し、下付き文字ｚは、０～０．１０の範囲内であり、下付き文字ｃ、ｄ、及びｚの合計は、１．０である）；

（ｄ）硬化性組成物の重量に基づいた、白金ヒドロシリル化触媒からの１～１０重量部／百万重量部（weight parts per million weight parts）の白金；

を含み、

式中、Ｒは、上記の要件を条件として、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基、及び１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基からなる群から選択され；Ｒ’は、記載の度に独立して、アリール基から選択され；Ｒ”は、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基から独立して選択され；Ｚは、記載の度に独

立して、水素、及びアルキル基、及びＲ基からなる群から選択され；下付き文字ａ～ｄ及び下付き文字ｚは、シロキサン単位を含有する分子中の対応するシロキサン単位のモル比を指し；（ａ）及び（ｂ）の濃度の合計は、少なくとも３５重量パーセントであり；重量パーセント値は、硬化性組成物の重量に対するものであり；硬化性組成物は、アセチレンアルコールヒドロシリル化抑制剤を含まない、
硬化性組成物である。

【０００９】

第２の態様では、本発明は、硬化性組成物のフィルムを形成し、次いで、１００摂氏度を超える温度までフィルムを加熱して硬化ポリマーフィルムを形成することを含む、第１の態様の硬化性組成物を硬化する方法である。

【００１０】

第３の態様では、本発明は、第１の態様の組成物の硬化ポリマーフィルムを含む、硬化ポリマーフィルムである。

【００１１】

特に、透明なシロキサン組成物は、鋳型空隙を充填するための、又は半導体素子上のコーティングとしての、様々な組成物で知られている。しかしながら、これらの用途は、シロキサン組成物の光学的に平坦なフィルムを達成するという課題に対処せず、本明細書に記載の目標フィルムなどの光学的に平坦なフィルムを作製するために使用され得る組成物を特定していない。

【発明を実施するための形態】

【００１２】

試験方法は、日付が試験方法の番号と共に示されていない場合、本文書の優先日に直近の試験方法を指す。試験方法への言及は、試験の協会及び試験方法番号への参照の両方を含む。本明細書では、以下の試験方法の略語及び識別子が適用される。ＡＳＴＭは、ＡＳＴＭインターナショナル試験法（ASTM International methods）を指し、ＥＮは、Ｅｕｒｏｐｅａｎ　Ｎｏｒｍを指し、ＤＩＮは、ドイツ規格協会（Deutsches Institut fur Normung）を指し、ＩＳＯは、国際標準化機構（International Organization for Standards）を指し、ＵＬは、米国保険業者安全試験所（Underwriters Laboratory）を指す。

【００１３】

商品名で識別される製品は、本文書の優先日において、それらの商品名で入手可能な組成物を指す。

【００１４】

「複数の」とは、２つ以上を意味する。「及び／又は」とは、「及び、又は代替として」を意味する。全ての範囲は、特に指示がない限り、終点を含む。

【００１５】

「アルキル」は、水素原子を除去することによってアルカンから誘導可能な炭化水素基を指す。アルキルは、直鎖状又は分岐状であり得る。

【００１６】

「分子量」は、特に明記しない限り、重量平均分子量を指す。ポリスチレン標準に対するゲル浸透クロマトグラフィー（gel permeation chromatography：ＧＰＣ）によってポリマーの重量平均分子量を決定する。ＧＰＣ分析用のポリマーの試料をトルエン中の希釈溶液として調製し、分析前に０．４５マイクロメートルのポリテトラフルオロエチレンフィルタを用いて溶液を濾過する。溶離液として高圧液体クロマトグラフィー（high pressure liquid chromatography：ＨＰＬＣ）グレードのテトラヒドロフランを使用し、３５℃に維持した２本のＰｏｌｙｍｅｒ　Ｌａｂｓ　５マイクロメートル混合Ｃカラムに通す。

【００１７】

「屈折率」又は「ＲＩ」とは、人工サファイアプリズム及び発光ダイオード（light emitting diode：ＬＥＤ）光源を備えたＲｕｄｏｌｐｈ　Ｒｅｓｅａｒｃｈ　Ａｎａｌ

ｙｔｉｃａｌ Ｊ２５７ Ｓｅｒｉｅｓ Ａｕｔｏｍａｔｉｃ Ｒｅｆｒａｃｔｏｍｅｔｅｒを用いて、硬化性組成物について測定される。２０℃で５８９ナノメートルの光を用いて屈折率を測定する。本明細書の組成物のために、硬化性組成物のＲＩは、硬化性組成物を用いて作製された得られた硬化ポリマーフィルムのＲＩと同等であると仮定されるので、硬化フィルムのＲＩ値は、硬化ポリマーフィルムを作製するために使用される硬化性組成物のＲＩ値に対応する。フィルム上のＲＩを実際に測定するには、Ｍｅｔｒｉｃｏｎ Ｐｒｉｓｍ Ｃｏｕｐｌｅｒを使用する。

【００１８】

フィルムの「表面粗さ」は、値「Ｒａ」によって特徴付けられ、これは、５倍対物レンズを備えたＺｙｇｏ Ｎｅｗ Ｖｉｅｗ ７３００白色光干渉計を用いて評価されるように、表面上の任意の１．０ミリメートル長の線で遭遇する特徴高さの算術平均である。

【００１９】

「光学的に平滑」とは、光を拡散させるために意図的に粗面化されていない表面部分について、２５ナノメートル未満の表面粗さ$R_a$値を有するフィルムを指す。このような$R_a$値は、プラスチック産業会（Ｐｌａｓｔｉｃｓ Ｉｎｄｕｓｔｒｙ Ａｓｓｏｃｉａｔｉｏｎ）規格ＳＰＩ Ａ－１からのプラスチックの射出成型仕上げのための最高光沢規格に対応する。

【００２０】

フィルムの「主面」とは、最大の平面表面積を有する表面を指し、ここで、平面表面積とは、表面のテクスチャを無視するように平面へと投影された表面の表面積を指す。フィルムは、典型的には、フィルムの厚さによって分離された対向する主面を有する。

【００２１】

フィルムの「縁部」とは、フィルムの対向する主面を接合するフィルムの寸法に沿ったフィルムの外側限界を指す。

【００２２】

３°コーンを備えたプレート粘度計（ＣＰＡ－５２Ｚ － Ｂｒｏｏｋｆｉｅｌｄ）におけるＢｒｏｏｋｆｉｅｌｄ ＤＶ－ＩＩコーンと、トルク読み取り値が所与の設定の下におけるレオメータの最大トルク値の４０～６０％になるような毎分回転数値と、を用いて、２５℃での硬化性組成物の粘度を決定する。

【００２３】

一態様では、本発明は、硬化性組成物である。硬化性組成物は、硬化性組成物の成分を架橋する硬化反応を受けることができる。本発明は、白金ヒドロシリル化触媒の存在下において、ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂、ビニル官能性ジシロキサン、及び水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂のヒドロシリル化反応によって硬化することができる。

【００２４】

ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂は、以下の平均化学構造（Ｉ）を有する：

$$(R_3SiO_{1/2})_a(R'SiO_{3/2})_b((ZO)_xR'SiO_{(3-x/2)})_z \quad (I)$$

ここで、

Ｒは、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基、及び１～８個の炭素原子を有するアルケニル基からなる群から選択される。ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂において、少なくとも１つのＲ基、好ましくは２つ以上のＲ基は、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基から選択される。好ましくは、Ｒの末端アルケニル基は、ビニル（「Ｖｉ」）基であり、アルキル基は、メチル（「Ｍｅ」）、エチル、及びプロピル基から選択される。

【００２５】

Ｒ’は、記載の度に独立して、アリール基から、好ましくはフェニル（「Ｐｈ」）基及びベンジル基からなる群から選択される。

【００２６】
Ｚは、記載の度に独立して、水素及びＲ基から、好ましくは水素（「Ｈ」）、メチル、及びエチル基からなる群から選択される。
【００２７】
下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、０、１、又は２であり得る。
【００２８】
下付き文字ａ、下付き文字ｂ、及び下付き文字ｚとは、シロキサン単位を含有する分子中の対応するシロキサン単位のモル比を指し、ａ、ｂ、及びｚの合計は、化学構造（Ｉ）では１．０である。下付き文字ａは、０．１５～０．３５の範囲内の値であり、０．１５以上、０．２０以上、０．２５以上、更には０．３０以上であり得るが、一方で同時に、０．３５以下であり、０．３０以下、０．２５以下、更には０．２０以下であり得る。下付き文字ｂは、０．６５～０．８５の範囲内の値であり、０．６５以上、０．７０以上、０．７５以上、更には０．８０以上であり得るが、一方で同時に、０．８５以下、０．８０以下、０．７５以下、更には０．７０以下である。下付き文字ｚは、０～０．１０の範囲内の値であり、０以上、更には０．０５以上であり得るが、一方で同時に、０．１０以下であり、０．０５以下であり得る。
【００２９】
望ましくは、ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂は、以下の化学構造を有する：$(ViMe_2SiO_{1/2})_a(PhSiO_{3/2})_b((ZO)_xPhSiO_{(3-x/2)})_z$。
【００３０】
ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂は、７００～１９００ダルトン（Ｄａ）の範囲内の重量平均分子量（Ｍｗ）を有し、７００Ｄａ以上、８００Ｄａ以上、９００Ｄａ以上、１０００Ｄａ以上、１１００Ｄａ以上、１２００Ｄａ以上、１３００Ｄａ以上、１４００Ｄａ以上、１５００Ｄａ以上、１６００Ｄａ以上、１７００Ｄａ以上、又は更には１８００Ｄａ以上のＭｗを有し得るが、一方で同時に、１９００Ｄａ以下、１８００Ｄａ以下、１７００Ｄａ以下、１６００Ｄａ以下、１５００Ｄａ以下、１４００Ｄａ以下、１３００Ｄａ以下、１２００Ｄａ以下、１１００Ｄａ以下、１０００Ｄａ以下、９００Ｄａ以下、又は更にはこれら以下（or even or less）のＭｗを有し得る。
【００３１】
硬化性組成物中のビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂の濃度は、硬化性組成物重量に基づいて、１５～７３重量パーセント（重量％）の範囲内であり、１５重量％以上、２０重量％以上、２５重量％以上、３０重量％以上、３５重量％以上、４０重量％以上、４５重量％以上、５０重量％以上、５５重量％以上、６０重量％以上、又は更には７０重量％以上であり得るが、一方で同時に、７３重量％以下、７０重量％以下、６５重量％以下、６０重量％以下、５５重量％以下、５０重量％以下、４５重量％以下、４０重量％以下、３５重量％以下、３０重量％以下、２５重量％以下、又は更には２０重量％以下である。
【００３２】
ビニル官能性ジシロキサンは、以下の平均化学構造（ＩＩ）を有する：
$(R'R_2SiO_{1/2})_2$　（ＩＩ）
式中、Ｒ及びＲ’は、本明細書中の上記で定義したとおりであるが、ただし、少なくとも１つのＲは、１～８個の炭素原子を有する末端アルケニル基である。望ましくは、ビニル官能性ジシロキサンは、以下の化学構造を有する：$(ViMePhSiO_{1/2})_2$。
【００３３】
ビニル官能性ジシロキサンは、２５０～５００Ｄａの範囲内のＭｗを有し、２５０Ｄａ以上、３００Ｄａ以上、３５０Ｄａ以上、４００Ｄａ以上、又は更には４５０Ｄａ以上のＭｗを有し得るが、一方で同時に、５００Ｄａ以下、４５０Ｄａ以下、４００Ｄａ以下、３５０Ｄａ以下、又は更には３００Ｄａ以下のＭｗを有し得る。

【００３４】
硬化性組成物中のビニル官能性ジシロキサンの濃度は、硬化性組成物重量に対して重量％で、０．５～５重量％の範囲内であり、０．５重量％以上、１重量％以上、２重量％以上、３重量％以上、又は更には４重量％以上であり得るが、一方で同時に、５重量％以下、４重量％以下、３重量％以下、２重量％以下、又は更には１重量％以下であるが、ただし、ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂及びビニル官能性ジシロキサンの合わせた濃度は、硬化性組成物重量に基づいて、３５重量％以上である。ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂及びビニル官能性ジシロキサンの合わせた濃度は、例えば、硬化性組成物重量に対して重量％で、３５重量％～７８重量％の範囲内、又は言い換えると３５重量％以上、４０重量％以上、５０重量％以上、６０重量％以上、又は更には７０重量％以上であり得るが、一方で同時に７８重量％以下、７５重量％以下、７０重量％以下、６５重量％以下、６０重量％以下、５０重量％以下、更には４０重量％以下であり得る。

【００３５】
水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂は、以下の平均化学構造（ＩＩＩ）を有する：
（Ｒ”$_2$ＨＳｉＯ$_{1/2}$）$_c$（Ｒ’ＳｉＯ$_{3/2}$）$_d$（（ＺＯ）$_x$Ｒ’ＳｉＯ$_{(3-x/2)}$）$_z$　（ＩＩＩ）
式中、
Ｒ’、Ｚ、及び下付き文字ｚは、本明細書中の上記で定義したとおり、記載の度に独立しており；
Ｒ”は、記載の度に独立して、１～８個の炭素原子を有するアルキル基からなる群から選択され、１個以上、２個以上、３個以上、４個以上、５個以上、更には６個以上を有し得るが、一方で同時に８個以下、７個以下、６個以下、４個以下、３個以下、更に２個以下の炭素原子を有し得；
下付き文字ｘは、記載の度に独立して、０～２の範囲内の値から選択され、０、１、又は２であり得；
下付き文字ｃは、０．５～０．７の範囲内の値を有し、０．６～０．７又は０．５～０．６の範囲内であり得；
下付き文字ｄは、０．３～０．５の範囲内の値を有し、０．３～０．４又は０．４～０．４の範囲内であり得；
下付き文字ｃ、下付き文字ｄ、及び下付き文字ｚの合計は、１．０である。

【００３６】
望ましくは、水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂は、以下の平均化学構造を有する：（ＨＭｅ$_2$ＳｉＯ$_{1/2}$）$_c$（ＰｈＳｉＯ$_{3/2}$）$_d$（（ＺＯ）$_x$ＰｈＳｉＯ$_{(3-x/2)}$）$_z$。

【００３７】
水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂は、５００～１２００Ｄａの範囲内のＭｗを有し、５００Ｄａ以上、６００Ｄａ以上、７００Ｄａ以上、８００Ｄａ以上、９００Ｄａ以上、１０００Ｄａ以上、又は更には１１００Ｄａ以上であり得るが、一方で同時に、１２００Ｄａ以下、１１００Ｄａ以下、１０００Ｄａ以下、９００Ｄａ以下、８００Ｄａ以下、７００Ｄａ以下、又は更には６００Ｄａ以下である。

【００３８】
水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂の濃度は、２～２５重量％の範囲内であり、硬化性組成物重量に対して重量％で、２重量％以上、３重量％以上、４重量％以上、５重量％以上、１０重量％以上、１５重量％以上、又は更には２０重量％以上であり得るが、一方で同時に、２５重量％以下、２０重量％以下、１５重量％以下、１０重量％以下、又は更には５重量％以下であり得る。

【００３９】
白金ヒドロシリル化触媒は、１つを超える白金含有ヒドロシリル化触媒のいずれか１つ

又は組合せであり得る。白金ヒドロシリル化触媒としては、化合物及び錯体、例えば、白金（０）－１，３－ジビニル－１，１，３，３－テトラメチルジシロキサン（カルステット触媒）、$H_2PtCl_6$、ジ－μ．－カルボニルジ－．π．－シクロペンタジエニルジニッケル、白金－カルボニル錯体、白金－ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体、白金シクロビニルメチルシロキサン錯体、白金アセチルアセトナート（ａｃａｃ）、白金黒など、白金化合物、例えば、塩化白金酸、塩化白金酸六水和物、塩化白金酸と一価アルコールとの反応生成物、白金ビス（エチルアセトアセテート）、白金ビス（アセチルアセトナート）、二塩化白金、及び白金化合物とオレフィン若しくは低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体、又はマトリックス若しくはコアシェル型構造でマイクロカプセル化された白金化合物などが挙げられる。白金ヒドロシリル化触媒は、白金との１，３－ジエテニル－１，１，３，３－テトラメチルジシロキサン錯体を含む、白金と低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体を含む溶液の一部であり得る。これらの錯体は、樹脂マトリックス中にマイクロカプセル化されていてもよい。触媒は、白金との１，３－ジエテニル－１，１，３，３－テトラメチルジシロキサン錯体であり得る。

【００４０】

白金ヒドロシリル化触媒の濃度は、１～１０重量百万分率（parts per million：ｐｐｍ）の範囲内の白金濃度を得るのに充分であり、硬化性組成物重量に基づいてｐｐｍで、１ｐｐｍ以上、２ｐｐｍ以上３ｐｐｍ以上、４ｐｐｍ以上、５ｐｐｍ以上、６ｐｐｍ以上、７ｐｐｍ以上、８ｐｐｍ以上、又は更には９ｐｐｍ以上であり得るが、一方で同時に、１０ｐｐｍ以下、９ｐｐｍ以下、８ｐｐｍ以下、７ｐｐｍ以下、６ｐｐｍ以下、５ｐｐｍ以下、４ｐｐｍ以下、３ｐｐｍ以下、又は更には２ｐｐｍ以下であり得る。

【００４１】

任意選択的には、硬化性組成物は、平均化学構造（ＩＶ）を有する直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサンを更に含み得る：

$(R_3SiO_{1/2})_e(R'_{(2-x)}R''_xSiO_{2/2})_f$　（ＩＶ）

式中、各Ｒ、Ｒ’、及びＲ”は、本明細書中上記に提示される基の定義から独立して選択され；下付き文字ｘは、０～１の範囲内の平均値を有し；下付き文字ｅは、０．０３～０．９７の値を有し、０．０３以上、０．０５以上、０．１０以上、０．２０以上、０．３０以上、０．４０以上、０．５０以上、０．６０以上、０．７０以上、０．８０以上、又は更には０．９０以上であり得るが、一方で同時に、０．９７以下、０．９５以下、０．９０以下、０．９０以下、０．８０以下、０．７０以下、０．６０以下、０．５０以下、０．４０以下、０．３０以下、０．２０以下、又は更には０．１０以下であり、下付き文字ｆは、下付き文字ｅ及び下付き文字ｆの合計が１．０になるように選ばれる。

【００４２】

望ましくは、直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサンは、以下の２つの構造の範囲内の化学構造を有する１つ以上の成分から選択される：$(ViMe_2SiO_{1/2})_e(PhMeSiO_{2/2})_f$、式中、下付き文字ｅ及び下付き文字ｆは、本明細書中上記に記載のとおり、$(ViMe_2SiO_{1/2})$　$(Ph_2SiO_{2/2})$　$(ViMe_2SiO_{1/2})$である。

【００４３】

硬化性組成物中の直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサンの濃度は、０～６５重量％の範囲内であり、硬化性組成物重量に対して重量％で、０重量％以上、１０重量％以上、２０重量％以上、３０重量％以上、４０重量％以上、５０重量％以上、又は更には６０重量％以上であり得るが、一方で同時に、６５重量％以下、６５重量％以下、５５重量％以下、４５重量％以下、４０重量％以下、３５重量％以下、２５重量％以下、１５重量％以下、又は更には５重量％以下である。

【００４４】

同時に、硬化性組成物は、任意選択的に、平均化学構造（Ｖ）を有するシリルヒドリド官能性直鎖オルガノシロキサンを含み得る：

$(HR_2SiO_{1/2})_2(R'_2SiO_{2/2})$　（Ｖ）

式中、Ｒ及びＲ’は、本明細書中上記で記載されたとおり、記載の度に各々独立している。望ましくは、シリルヒドリド官能性直鎖オルガノシロキサンは、以下の化学構造を有する：（$HMe_2SiO_{1/2}$）$_2$（$PhPhSiO_{2/2}$）。

【００４５】

硬化性組成物中のシリルヒドリド官能性直鎖オルガノシロキサンの濃度は、０～２５重量％の範囲内であり、硬化性組成物重量に対して重量％で、０重量％以上、１０重量％以上、又は更には２０重量％以上であり得るが、一方で同時に、２５重量％以下、１５重量％以下、又は更には５重量％以下である。

【００４６】

望ましくは、硬化性組成物は、水素化ケイ素官能基（silicon hydride functionality：ＳｉＨ）と末端アルケニル基とのモル比が０．８～３．０の範囲内であり、０．８以上、０．９以上、１．０以上、１．２以上、１．４以上、１．６以上、１．８以上、２．０以上、２．２以上、２．４以上、２．６以上、又は更には２．８以上であり得るが、一方で同時に、望ましくは３．０以下、２．９以下、２．７以下、２．５以下、２．３以下、２．１以下、１．９以下、１．７以下、１．５以下、１．３以下、１．１以下、又は更には１．０以下である。プロトン核磁気共鳴（$^1$Ｈ　ＮＭＲ）分光法によって、ＳｉＨ対末端アルケニル基のモル比を決定する。既知量の試料を、既知量の内部標準（１，４－ジオキサン）と合わせて、重水素化クロロホルム中において、分析用試料を調製する。５ミリメートルのＯＮｅＮＭＲプローブを備えたＡｌｉｇｅｎｔ　４００－ＭＲ　ＮＭＲ装置を用いてスペクトルを収集する。ＭｅｓＲｅＮｏｖａ　ｘ６４ソフトウェアを用いてデータを分析する。内部標準のプロトン共鳴に対する関連プロトン共鳴を積分することによって、末端アルケニル基及びＳｉＨ基の重量パーセントを計算する。

【００４７】

望ましくは、硬化性組成物は、シロキサン分子中のケイ素原子のモルに対して、３モルパーセント（モル％）を超える、好ましくは２モル％以上、更により好ましくは１モル％以上のエポキシ含有基を含有するシロキサン分子を含まない。

【００４８】

望ましくは、硬化性組成物は、５８９ナノメートルにて、１．５０以上、好ましくは１．５０超の屈折率（ＲＩ）を有する。

【００４９】

別の態様では、本発明は、本発明の硬化性組成物を硬化ポリマーフィルムへと硬化させる方法である。本方法は、硬化性組成物のフィルムを形成し、次いで、１００摂氏度（℃）を超える温度、好ましくは１２０℃以上、更により好ましくは１３０℃以上までフィルムを加熱して、フィルムを硬化ポリマーフィルムへと硬化させることを含む。硬化性組成物は、基材上へのスピンコーティング、又は引き下げバー、ドクターブレード（若しくは任意のナイフブレード）、若しくはスロットダイを用いたフィルムへのキャストなどの任意の方法によってフィルムへと形成することができる。例えば、硬化性組成物は、シリコンウェハ、好ましくは光学的に平滑なシリコンウェハ上へとスピンコーティングすることができる。あるいは、硬化性組成物は、スロットダイの物理的オフセットによって、又はブレード若しくはナイフの下における基材上に硬化性組成物を通過させることによって、フィルム厚が制御され、ブレード縁部若しくはナイフ縁部と基材との間のギャップによって厚さが制御される、基材、好ましくは光学的に平滑な基材上に配置することができる。

【００５０】

硬化前及び特に硬化後のフィルム厚は、望ましくは２５～５００マイクロメートルの範囲内であり、２５マイクロメートル以上、５０マイクロメートル以上、７５マイクロメートル以上、１００マイクロメートル以上、１５０マイクロメートル以上、２００マイクロメートル以上、２５０マイクロメートル以上、３００マイクロメートル以上、３５０マイクロメートル以上、４００マイクロメートル以上、又は更に４５０マイクロメートル以上であり得るが、一方で同時に、望ましくは、５００マイクロメートル以下、４７５マイクロメートル以下、４２５マイクロメートル以下、３７５マイクロメートル以下、３２５マ

イクロメートル以下、２７５マイクロメートル以下、２２５マイクロメートル以下、１７５マイクロメートル以下、１２５マイクロメートル以下、７５マイクロメートル以下、又は更には５０マイクロメートル以下である。手持ち式デジタルマイクロメータ（Ｍｉｔｕｔｏｙｏ　５４７－５２６Ｓ）を用いて、ＡＳＴＭ　Ｄ１００５手順Ｃ　６．３．６に従ってフィルム厚を決定する。

【００５１】

硬化性組成物のフィルムの一方の主面が基材表面と接触している間、対向する主面は空気に曝され得る。空気に曝された場合でも、フィルムの露出した主面は、光学的に平滑な表面に硬化することができる。更に、光学的に平滑な表面を有する基材上で硬化した場合、得られた硬化ポリマーフィルムは、両方とも光学的に平滑な対向する主面を有することができる。特に、意図的なパターニングは、意図的なパターニングが存在しない光学的に平滑な表面を保持しながら、主面の一部又は全部へとインプリント又は付与することができる。

【００５２】

硬化ポリマーフィルムは、１５デシニュートン＊メートル（ｄＮ＊ｍ）以上の剛性を有し、２０ｄＮ＊ｍ以上、２５ｄＮ＊ｍ以上、３０ｄＮ＊ｍ以上、３５ｄＮ＊ｍ以上、４０ｄＮ＊ｍ以上、４５ｄＮ＊ｍ以上、５０ｄＮ＊ｍ以上、５５ｄＮ＊ｍ以上、６０ｄＮ＊ｍ以上、６５ｄＮ＊ｍ以上、７０ｄＮ＊ｍ以上、７５ｄＮ＊ｍ以上、８０ｄＮ＊ｍ以上、８５ｄＮ＊ｍ以上、又は更には９０ｄＮ＊ｍ以上の剛性を有し得るが、一方で同時に、典型的には、１５０ｄＮ＊ｍ以下、１００ｄＮ＊ｍ以下、７５ｄＮ＊ｍ以下、又は更には５０ｄＮ＊ｍ以下の剛性を有する。

【００５３】

硬化ポリマーフィルムは、硬化ポリマーフィルムがフィルムの縁部へと光を誘導するようにフィルムに結合された光源を更に含む、物品の一部であり得る。本発明の硬化ポリマーフィルムは、特に、光がフィルムの縁部内へと誘導され、フィルム内でフィルムの他の縁部へと、及び任意選択的にはフィルムの１つ以上の主面のパターン化部分から外へと透過する、ライトガイドとして特に有用である。そのような用途では、フィルムは、フィルムの縁部へと光を誘導する光源と「結合」される。結合は、発光源との直接接触によって、又は発光源からの光を透過している光ファイバ又は他の導波路材料を介した間接結合によって行うことができる。

【実施例】

【００５４】

表１は、以下の実施例のための材料を列挙する。

【００５５】

【表１】

表１

| 成分 | 説明 | 供給元 |
|---|---|---|
| A | 1520DaのMw及び以下の平均化学構造を有する、ビニル官能性Mキャップアリールシルセスキオキサン樹脂：$(ViMe_2SiO_{1/2})_{0.25}(PhSiO_{3/2})_{0.75}$ | 米国特許第7863392（B2）号における教示に従って調製する。 |
| B | 310DaのMw及び以下の平均化学構造を有する、ビニル官能性ジシロキサン：ViMePhSiOSiMePhVi | TCI Chemicalsから製品D5557として入手可能。 |
| C | 740DaのMw及び以下の平均化学構造を有する、水素化ケイ素官能性Mキャップシルセスキオキサン樹脂：$(HMe_2SiO_{1/2})_{(0.6-y/2)}(PhSiO_{3/2})_{(0.4-y/2)}[(OZ)(Ph)SiO_{(3-x)/2}]_y$<br>式中、Zが水素及びアルキル基から選択される場合、xは1又は2であり、yは0．02～0．05である。 | 米国特許第7863392（B2）号における教示に従って調製する |
| D | 白金ヒドロシリル化触媒：イソプロパノール中白金（0）－1，3－ジビニル－1，1，3，3－テトラメチルジシロキサン | Aldrich |
| E1 | 2600DaのMw及び以下の平均化学構造を有する、直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサン：$(ViMe_2SiO_{1/2})_2(PhMeSiO_{2/2})_{25}$ | GelestからPMV－9925の名称で入手可能。 |
| E2 | 380DaのMwを有する、直鎖アルケニル官能性オルガノシロキサン1，5－ジビニル－3，3－ジフェニル－1，1，5，5－テトラメチルトリシロキサン。 | GelestからSID4609．0の名称で入手可能。 |
| F | シリルヒドリド官能性直鎖オルガノシロキサン：332DaのMwを有する、1，1，5，5－テトラメチル－3，3，ジフェニルトリシロキサン。 | TCI Chemicalsから製品T3832として入手可能 |
| 抑制剤 | 2－フェニル－3－ブチン2－オール（PBO） | Sigma－Aldrichから入手可能 |

【００５６】

以下の表に示される組成物の成分（グラムで示される成分量）を容器中に合わせ、金属スパチュラを用いて手で混合し、次いでスピードミキサーを用いて毎分３５００回転で３０秒間混合することによって硬化性組成物を調製する。硬化性組成物のＲＩを決定する。また、最初に製造後に粘度を測定し、続いて硬化性組成物の作業時間に相当する粘度が倍増するまでの時間を決定するために１５分毎に測定することによって、硬化性組成物の作業時間を決定する。

【００５７】

２～４グラムの硬化性組成物を光学的に平滑なシリコンウェハ（直径１００ミリメートル又は１５０ミリメートルのＰｕｒｅ　Ｗａｆｅｒ、ホウ素ドープシリコーン、試験グレード、０．５ミリメートル厚、二乗平均平方根表面粗さが１ナノメートル未満）上に堆積させ、次いで、Ｃｏａｓｔ　Ｅｆｆｅｃｔｉｖｅ　Ｅｑｕｉｐｍｅｎｔスピンコータを用いて毎分５００～１０００回転で６０秒間ウェハ上に硬化性組成物をスピンコートして、２５～５００マイクロメートルの厚さの均一な薄膜を達成することによって、硬化性組成物のフィルムを調製する。

【００５８】

フィルムを含有するウェハを、外気中で１３０℃に設定されたホットプレート上に５分間移載し、次いで硬化したフィルムを冷却させることによって、硬化性組成物のフィルムを硬化させる。手持ち式デジタルマイクロメータ（Ｍｉｔｕｔｏｙｏ　５４７－５２６Ｓ）を用いて、ＡＳＴＭ　Ｄ１００５手順Ｃ　６．３．６に従って硬化フィルムの厚さを決定する。露出した主面の表面粗さを評価する。

【００５９】

以下の表は、硬化性組成物のレシピ、及びそれらの硬化性組成物の特性評価結果を提供する。

【００６０】

本発明の組成物は、５８９ナノメートルで１．５超のＲＩ、その露出した硬化表面では２４ナノメートル未満の$R_a$値、及び２５～５００マイクロメートルの厚さ、並びに＞１

５ｄＮ＊ｍ超の剛性及び１時間を超える作業時間を有する、硬化ポリマーフィルムを形成する能力を実証する。

【００６１】

実施例Ａ～実施例Ｇは、水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂なしでは、許容できない表面粗さを硬化フィルムが呈することを明らかにする。

【００６２】

実施例Ｈ～実施例Ｊは、ビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂とビニル官能性ジシロキサンとの組合せが３５重量％未満である硬化性組成物が、１５ｄＮ＊ｍ超の剛性を達成しない硬化フィルムをもたらすことを明らかにする。

【００６３】

実施例Ｋは、１５ｄＮ＊ｍ超の剛性を達成するために、１．９重量％超の水素化ケイ素官能性Ｍキャップシルセスキオキサン樹脂が必要であることを明らかにする。

【００６４】

実施例Ｌ及び実施例１は、硬化フィルムが１５ｄＮ＊ｍ超の剛性を達成するためには、１５重量％超のビニル官能性Ｍキャップアリールシルセスキオキサン樹脂が必要であることを明らかにする。

【００６５】

実施例Ｍ～実施例Ｏ及び実施例９～実施例１１は、ビニル官能性ジシロキサン成分がない場合、硬化性組成物が６０分未満の作業時間を有することを明らかにする。

【００６６】

実施例Ｐ及び実施例１２は、本発明が、露出した硬化フィルム表面上に光学的に平滑な表面を達成するために、アセチレンアルコールヒドロシリル化抑制剤を含んではならないことを明らかにする。

【００６７】

実施例１２～実施例１６は、ポリマー骨格上にアルキルアリール又はジアリール置換基を有する直鎖アルケニル官能性ポリオルガノシロキサンを、別々に又は組成物中のブレンドとして使用し、所望のフィルム特性をもたらすことができることを明らかにする。

【００６８】

実施例１～実施例１６は「光学的に透明」である。「光学的透明度」とは、４００ナノメートル（ｎｍ）での光に対して８０％を超える透過率、及び４００ｎｍでの透過率を８００ｎｍでの透過率で割った（「％Ｔ（４００／８００）」）０．７を超える透過率を指す。４００～８００ｎｍの波長範囲にわたり、ＡＳＴＭ　Ｄ１００３の方法によって紫外／可視（ＵＶ／Ｖｉｓ）デュアルビーム分光光度計（Ｐｅｒｋｉｎ　Ｅｌｍｅｒ　Ｌａｍｂｄａ　９５０）で透過率を測定する。反応性組成物前駆体を手で混合し、次いでスピードミキサー中で毎分３５００回転にて３０秒間にわたって混合し、８０℃で１２時間硬化させることによって、透過率を測定するための試料を調製する。ガラススライド間で試料を硬化させて、厚さ１０ミリメートルの光学的に平滑な表面を有する試料を生成する。

【００６９】

実施例について、実施例４は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８５．１であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９５である；実施例８は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８６．７であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９５である；実施例１０は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８７．９であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９８である；実施例１３は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８８．０であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９８である；実施例１４は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８８．５であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９８である；実施例１５は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８９．０であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９８である；並びに、実施例１６は、４００ｎｍでのパーセント透過率（％Ｔ）が８８．０であり、％Ｔ（４００／８００）が０．９９である。

【００７０】

【表２】

表２

| 成分 | 実施例A | 実施例B | 実施例C | 実施例D | 実施例E | 実施例F | 実施例G | 実施例H | 実施例I | 実施例J | 実施例K | 実施例L | 実施例M | 実施例N | 実施例O | 実施例P |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| A | 58.8 | 60.4 | 61.9 | 63.2 | 65.2 | 66.5 | 73.3 | 0.0 | 0.0 | 29.2 | 45.5 | 10.8 | 71.9 | 71.8 | 67.6 | 63.2 |
| B | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0 | 0.1 | 5.2 | 1 |
| C | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 4.7 | 6.9 | 5.6 | 1.9 | 25.0 | 14.3 | 14.3 | 13.9 | 13.5 |
| D | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 |
| E1 | 10.0 | 10.0 | 9.9 | 10.0 | 10.0 | 0.0 | 0.0 | 89.5 | 89.6 | 52.4 | 31.3 | 63.2 | 0 | 0 | 0 | 9.2 |
| F | 30.2 | 28.6 | 27.2 | 25.8 | 23.8 | 32.5 | 25.7 | 4.7 | 2.5 | 11.8 | 20.3 | 0.0 | 13.8 | 13.8 | 13.3 | 13.1 |
| 抑制剤 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0.05 |
| 特性 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| フィルム厚（マイクロメートル） | 60 | 60 | 110 | 120 | 130 | 50 | 80 | 50 | 50 | 70 | 110 | 90 | データなし | 120 | 140 | 110 |
| 作業時間（分） | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＞60 | ＜10 | ＜15 | ＞60 | ＞60 |
| 表面粗さ、$R_a$（ナノメートル） | 74 | 32 | 26 | 30 | 67 | 42 | 36 | ＜1 | ＜1 | ＜1 | ＜1 | 5 | データなし | 1 | 32 | 103 |
| RI | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 |
| 剛性（dN*m） | 0.24 | 1.8 | 9.7 | 18.9 | 21.8 | 0.95 | 27.4 | 4 | 6.9 | 14.0 | 9.3 | 5.1 | 98 | 90 | 45 | 49.6 |

データなし－特性評価することができず、フィルムを作製することができたよりも前にあまりにも速く硬化した。

【００７１】

【表３】

表３

| 成分 | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 実施例6 | 実施例7 | 実施例8 | 実施例9 | 実施例10 | 実施例11 | 実施例12 | 実施例13 | 実施例14 | 実施例15 | 実施例16 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| A | 16.2 | 29.2 | 27.3 | 62.2 | 37.8 | 37.1 | 71.4 | 63.3 | 70.0 | 71.2 | 68.3 | 63.3 | 55.4 | 51.5 | 62.3 | 52 |
| B | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0.5 | 1 | 4.2 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| C | 20.2 | 8.9 | 16.3 | 3.5 | 7.2 | 18.9 | 2.6 | 13.5 | 14.6 | 14.2 | 14 | 13.5 | 15.1 | 17.1 | 15.0 | 17.1 |
| D | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.01 |
| E1 | 62.6 | 52.3 | 55.5 | 9.7 | 41.8 | 43.0 | 0.0 | 9.2 | 0 | 0 | 0 | 9.2 | 4.4 | 4.1 | 0 | 0 |
| E2 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 12.6 | 15.7 | 10.3 | 17.8 |
| F | 0.0 | 8.6 | 0.0 | 23.7 | 12.2 | 0.0 | 25.0 | 13.1 | 14 | 13.7 | 13.5 | 13.1 | 11.3 | 10.5 | 11.4 | 12.1 |
| 特性評価 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| フィルム厚（マイクロメートル） | 110 | 60 | 100 | 90 | 80 | 90 | 110 | 110 | 110 | 120 | 100 | 110 | 110 | 80 | 90 | 80 |
| 作業時間（分） | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 | >60 |
| 表面粗さ、$R_a$（ナノメートル） | 7 | 4 | <1 | <1 | <1 | <1 | 5 | <1 | 1 | <1 | <1 | 1 | 2 | 4 | 2 | <1 |
| RI | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 | 1.54 |
| 剛性（dN*m） | 18.6 | 23.1 | 43.9 | 18.4 | 24.3 | 57 | 33 | 60.5 | 90 | 98 | 70 | 60.5 | 40 | 37 | 51 | 19 |

【国際調査報告】

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2022/043968

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08L83/06 G02B1/04 C08G77/04 C08G77/12 C08G77/20
ADD.

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)
G02B C08G C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| X | JP 2017 186479 A (JNC CORP)<br>12 October 2017 (2017-10-12)<br>tables 1,2<br>claims 1-16<br>paragraph [[0182]] - paragraph [[0183]]<br>paragraph [[0128]]<br>----- | 1-10 |
| A | US 7 863 392 B2 (DOW CORNING TORAY CO LTD [JP]) 4 January 2011 (2011-01-04)<br>claims 1-16<br>table 1<br>----- | 1-10 |
| A | JP 6 323086 B2 (JNC CORP)<br>16 May 2018 (2018-05-16)<br>claims 1-17<br>tables 1,2<br>----- | 1-10 |
| | -/-- | |

[x] Further documents are listed in the continuation of Box C. [x] 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 |
|---|---|
| 6 January 2023 | 17/01/2023 |

| Name and mailing address of the ISA/ | Authorized officer |
|---|---|
| European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2<br>NL - 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040,<br>Fax: (+31-70) 340-3016 | Popescu, Teodora |

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2022/043968

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| A | WO 2015/061075 A1 (DOW CORNING [US])<br>30 April 2015 (2015-04-30)<br>tables 1A-1B<br>claims 1-17<br>----- | 1-10 |

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (April 2005)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/US2022/043968

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---|---|---|
| JP 2017186479 A | 12-10-2017 | NONE | |
| US 7863392 B2 | 04-01-2011 | AT 479726 T | 15-09-2010 |
| | | CN 101213257 A | 02-07-2008 |
| | | EP 1904579 A1 | 02-04-2008 |
| | | JP 5392805 B2 | 22-01-2014 |
| | | JP 2007008996 A | 18-01-2007 |
| | | KR 20080031339 A | 08-04-2008 |
| | | MY 149507 A | 13-09-2013 |
| | | TW 200704715 A | 01-02-2007 |
| | | US 2009118440 A1 | 07-05-2009 |
| | | WO 2007001039 A1 | 04-01-2007 |
| JP 6323086 B2 | 16-05-2018 | JP 6323086 B2 | 16-05-2018 |
| | | JP 2015172146 A | 01-10-2015 |
| WO 2015061075 A1 | 30-04-2015 | TW 201527436 A | 16-07-2015 |
| | | WO 2015061075 A1 | 30-04-2015 |

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード ２２００

(72)発明者 タフト、ブラッドリー ダブリュ.

アメリカ合衆国 ４８６８６－０９９４ ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード ２２００

(72)発明者 カミングス、ミシェル

アメリカ合衆国 ４８６８６－０９９４ ミシガン州 ミッドランド ウェスト サルツバーグ ロード ２２００

Ｆターム（参考） 4J002 CP042 CP141 CP143 EX016 EX017 FD206 FD207 GP00 GP02