



등록특허 10-2802701



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2025년05월08일
(11) 등록번호 10-2802701
(24) 등록일자 2025년04월28일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08J 5/18 (2006.01) *C08G 77/12* (2006.01)
C08G 77/20 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C08J 5/18 (2021.05)
C08G 77/12 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2021-7004691
- (22) 출원일자(국제) 2019년07월16일
심사청구일자 2022년07월06일
- (85) 번역문제출일자 2021년02월17일
- (65) 공개번호 10-2021-0032476
- (43) 공개일자 2021년03월24일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2019/027836
- (87) 국제공개번호 WO 2020/017480
국제공개일자 2020년01월23일
- (30) 우선권주장
JP-P-2018-133908 2018년07월17일 일본(JP)

(56) 선행기술조사문헌

W02017183541 A1*

JP2012078144 A*

KR1020120043750 A

KR1020050008785 A

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

- (73) 특허권자
다우 도레이 컴퍼니 리미티드
일본 1408617 도쿄 시나가와-구 히가시-시나가와
2-초메 2-24
- (72) 발명자
후쿠이 히로시
일본 2990108 치바 이찌하라시 치구사까이간 2-2
다우 도레이 컴퍼니 리미티드 내
카미나가 요이찌
일본 2990108 치바 이찌하라시 치구사까이간 2-2
다우 코닝 도레이 컴퍼니 리미티드 내
쓰다 타케아끼
일본 2990108 치바 이찌하라시 치구사까이간 2-2
다우 도레이 컴퍼니 리미티드 내
- (74) 대리인
장훈

전체 청구항 수 : 총 8 항

심사관 : 안국현

(54) 발명의 명칭 오가노폴리실록산 경화물 필름, 그의 용도 및 제조 방법

(57) 요 약

[과제] 본 발명은 박막화가 가능하고, 필름의 표면 및 내부에서의 결함의 개수가 매우 적으며, 하전압에 대한 높은 절연 파괴 강도를 나타내는 오가노폴리실록산 경화물 필름, 그의 용도 및 제조 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다. [해결 수단] 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있는 오가노폴리실록산 경화물 필름이며, 필름의 임의의 개소에서 15 mm \times 15 mm를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그 표면 결함의 개수를 측정한 경우, 표면 결함의 개수가 0~1개의 범위이고, 적합하게는 내부 결함의 개수가 0~20개의 범위인 오가노폴리실록산 경화물 필름. 이러한 필름은 클린 룸 등에서 압연 공정에 의해 얻어질 수도 있고, 또한 적절한 박리층을 구비한 세퍼레이터 사이에서의 경화에 의해 얻어질 수도 있다.

(52) CPC특허분류

C08G 77/20 (2013.01)

C08J 2383/04 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 제조되는, 오가노폴리실록산 경화물 필름으로서,

상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물은

- (A) 분자 내에 적어도 2개의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산,
- (B) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠플리실록산으로서, 상기 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 결합 수소 원자가 0.1~2.5몰이 되는 양의 상기 오가노하이드로젠플리실록산 및

(C) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매

를 함유하고,

상기 성분 (A)는

- (a1) 분자쇄 말단에만 알케닐기를 갖는 직쇄상 또는 분지쇄상의 오가노폴리실록산 및
- (a2) 분자 내에 적어도 1개의 분지 실록산 단위를 가지며, 비닐($\text{CH}_2=\text{CH}-$)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위 내에 있는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지

를 함유하는 오가노폴리실록산의 혼합물이고,

상기 성분 (a2)는

$$\{(Alk)R_2^2SiO_{1/2}\}q1(R_3^2SiO_{1/2})q2(SiO_{4/2})r$$

(식 중, Alk는 탄소 원자수 2 이상의 알케닐기이고, R^2 는 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 알콕시기로부터 선택되는 기이고, $q1+q2+r$ 은 50~500의 범위의 수이고, $(q1+q2)/r$ 은 0.1~2.0의 범위의 수이고, $q2$ 는 당해 오가노폴리실록산 수지 중의 비닐($\text{CH}_2=\text{CH}-$)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위를 만족하는 범위의 수이다)로 표시되는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지이고,

상기 오가노폴리실록산 경화물 필름은 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있고, 필름의 임의의 개소에서 15 $\text{mm} \times 15 \text{ mm}$ 를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그 표면 결함의 개수를 측정한 경우, 표면 결함의 개수가 0~1개의 범위인, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 2

제1항에 있어서, 필름의 임의의 개소에서 15 $\text{mm} \times 15 \text{ mm}$ 를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그 내부 결함의 개수를 측정한 경우, 내부 결함의 개수가 0~20개의 범위인, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 3

◆청구항 3은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 실온에서 측정되는 절연 파괴 강도가 60 V/ μm ~200 V/ μm 의 범위에 있는 것을 특징으로 하는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 4

◆청구항 4은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 실질적으로 투명하고, 평균 두께가 1~150 μm 의 범위에 있는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 5

제1항에 있어서, 압연 가공되어 수득되는 것을 특징으로 하는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 6

◆ 청구항 6은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제5항에 있어서, 상기 압연 가공이 클린 품에서 수행되는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 7

◆ 청구항 7은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제6항에 있어서, 박리층을 갖는 세퍼레이터의 사이에서 경화됨으로써 표면이 평탄화되는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 8

◆ 청구항 8은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제7항에 있어서, 상기 세퍼레이터의 사이에서의 경화가 클린 품에서 수행되는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 9

제1항 또는 제8항에 있어서, 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부가 고유전성 관능기를 갖는 오가노 폴리실록산 또는 오가노하이드로젠플리실록산인, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 10

◆ 청구항 10은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제9항에 있어서, 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부가 $(C_pF_{2p+1})-R-$ (R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌 기이며, p는 1 이상 8 이하의 정수이다)로 표시되는 플루오로알킬기를 갖는 오가노폴리실록산 또는 오가노하이드로젠플리실록산인, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 11

◆ 청구항 11은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제8항에 있어서, 전자 재료 또는 표시 장치용 부재로서 사용되는, 오가노폴리실록산 경화물 필름.

청구항 12

제1항 또는 제8항에 기재된 오가노폴리실록산 경화물 필름이 박리층을 구비한 시트상 기재에 적층된 구조를 갖는 적층체.

청구항 13

제1항 또는 제8항에 기재된 오가노폴리실록산 경화물 필름을 포함하는, 전자 부품.

청구항 14

제1항 또는 제8항에 기재된 오가노폴리실록산 경화물 필름을 포함하는, 표시 장치.

청구항 15

경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 전 혹은 경화 후에 압연 가공을 수행하는 단계를 포함하는, 제1항 또는 제8항에 기재된 오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법.

청구항 16

◆ 청구항 16은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

경화성 오가노폴리실록산 조성물을 박리층을 갖는 세퍼레이터의 사이에 끼워 넣은 상태에서 경화시키는 단계를

포함하는, 제1항 또는 제8항에 기재된 오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 표면 및 내부 결함이 적고, 절연 파괴 강도가 우수한 것을 특징으로 하는 오가노폴리실록산 경화물 필름, 그의 용도 및 제조 방법에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 폴리실록산 골격을 갖는 오가노폴리실록산 경화물은 투명성, 전기 절연성, 내한성 등이 우수하며, 소망에 따라 플루오로알킬기 등의 고유전성 관능기를 도입함으로써 전기 활성을 개선할 수 있는 동시에, 필름상 또는 시트상으로 용이하게 가공할 수 있기 때문에, 각종 전기·전자 디바이스에 이용하는 접착제 필름이나 액추에이터 등의 트랜스듀서 디바이스에 이용하는 전기 활성을 비롯하여, 다양한 용도로 사용되고 있는 이들 오가노폴리실록산 경화물은 그의 경화 메커니즘에 따라, 하이드로실릴화 반응 경화형, 축합 반응 경화형, 페온이드 경화형 등으로 분류된다. 실온 방지 혹은 가열에 의해 신속하게 경화하며, 부생물을 발생시키지 않기 때문에, 하이드로실릴화 반응 경화형의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 사용하는 오가노폴리실록산 경화물 필름이 범용되고 있다.

[0003] 특히, 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서, 액추에이터 등의 트랜스듀서 재료로서, 오가노폴리실록산 경화물 필름은 고도의 균일성에 더하여 100 μm 이하의 두께를 갖는 박막 필름으로서의 성형성이 요구되는 경향이 있다. 그러나, 오가노폴리실록산 경화물을 박막 필름으로 성형한 경우, 미소한 공극(보이드)이나 공기 중의 부유 먼지 등에서 유래하는 필름의 표면 및 내부에서의 결함이 발생하는 경우가 있다. 이들 결함을 다수 포함하는 오가노폴리실록산 경화물 필름을 높은 하전압(荷電壓)하에서 사용한 경우, 이들 결함에 있어서 절연 파괴가 발생하는 경우가 있으며, 오가노폴리실록산 경화물에 기대되는 높은 광학적 투명성, 전기 절연성, 내열성, 내한성 등의 제반 특성을 충분히 발휘할 수 없다는 문제가 있었다.

[0004] 한편, 본건 출원인들은 특허문헌 1에서, 균일성, 필름의 폭 방향으로의 평탄성이 우수한 고유전성 필름의 제공, 및 그의 용도 및 제조 방법을 제안하고 있다. 그러나, 당해 필름은 두께의 불균일이나 불규칙을 억제하여 평탄성이 우수한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 실현함에 있어서는 유효하지만, 미시적인 필름 표면 또는 필름 내부의 결함에 대해 여전히 개선의 여지를 남기고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) 특허문헌 1: 국제 특허공개공보 제WO2017/183541호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명은 상기 과제를 해결하기 위해 이루어진 것으로, 박막화가 가능하고, 필름의 표면 및 내부에서의 결함의 개수가 매우 적으며, 하전압에 대한 높은 절연 파괴 강도를 나타내는 오가노폴리실록산 경화물 필름, 그의 용도 및 제조 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0007] 상기 과제를 해결하기 위해 예의 검토한 결과, 본 발명자들은 단위 면적당 필름 표면의 결함의 개수, 적합하게는 단위 면적당 필름 내부의 결함의 개수가 일정값 이하로 억제되고 있으며, 그의 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있는 오가노폴리실록산 경화물 필름에 의해 상기 과제를 해결할 수 있다는 것을 밝혀내고 본 발명에 도달했다.

[0008] 즉, 본 발명의 목적은

- [0009] [1] 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있는 오가노폴리실록산 경화물 필름으로서, 필름의 임의의 개소에서 15 mm \times 15 mm를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그의 표면 결합의 개수를 측정한 경우, 표면 결합의 개수가 0~1개의 범위인 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0010] [2] 필름의 임의의 개소에서 15 mm \times 15 mm를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그의 내부 결합의 개수를 측정한 경우, 내부 결합의 개수가 0~20개의 범위인 [1]에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0011] 예 의해 달성된다.
- [0012] 적합하게는, 본 발명의 목적은 하기 오가노폴리실록산 경화물 필름에 의해 달성된다.
- [0013] [3] 실온에서 측정되는 절연 파괴 강도가 60 V/ μm ~200 V/ μm 의 범위에 있는 것을 특징으로 하는, [1] 또는 [2]에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0014] [4] 실질적으로 투명하고, 평균 두께가 1~150 μm 의 범위에 있는, [1] 내지 [3] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0015] 특히, 적합하게는, 본 발명의 목적은 압연 가공에 의해 얻어진 필름 또는 박리층을 마련한 세퍼레이터 사이에서의 경화에 의해 평탄화된 필름에 의해 해결된다. 또한, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름은 하이드로실릴화 반응 경화성의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는 것이 바람직하다. 즉, 본 발명의 목적은 하기 오가노폴리실록산 경화물 필름에 의해 달성된다.
- [0016] [5] 압연 가공되어 이루어지는 것을 특징으로 하는, [1] 내지 [4] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0017] [6] 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에서 경화됨으로써 표면이 평탄화되어 이루어지는, [1] 내지 [5] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0018] [7] (A) 분자 내에 적어도 2개의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산,
- [0019] (B) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠폴리실록산 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~2.5몰이 되는 양, 및
- [0020] (C) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매
- [0021] 를 함유하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는, [1] 내지 [6] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0022] [8] 상기 성분 (A)가
- [0023] (a1) 분자쇄 말단에만 알케닐기를 갖는 직쇄상 또는 분지쇄상의 오가노폴리실록산, 및
- [0024] (a2) 분자 내에 적어도 1개의 분자 실록산 단위를 가지며, 비닐(CH₂=CH-)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위 내에 있는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지
- [0025] 를 함유하는 오가노폴리실록산 혼합물인, [7]에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0026] 임의적이지만, 본 발명의 목적에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 액추에이터 등의 트랜스듀서에 이용하는 전기 활성 필름(예를 들어, 유전성 필름)으로서 이용하는 경우, 경화물에 고유전성 관능기를 도입할 수도 있다. 즉, 본 발명의 목적은 하기 오가노폴리실록산 경화물 필름에 의해 달성된다.
- [0027] [9] 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부가 고유전성 관능기를 갖는 오가노폴리실록산 또는 오가노하이드로젠폴리실록산인, [7] 또는 [8]에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0028] [10] 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부가, 분자 중에 (C_pF_{2p+1})_n-R-(R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며, p는 1 이상 8 이하의 정수이다)로 표시되는 플루오로알킬기를 갖는 오가노폴리실록산 또는 오가노하이드로젠폴리실록산인, [7] 내지 [9] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름.
- [0029] 또한, 본 발명의 목적은 상기 오가노폴리실록산 경화물 필름의 용도 및 당해 필름을 구비한 적층체 및 그의 용도며, 이하의 발명에 의해 달성된다.
- [0030] [11] [1] 내지 [10] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름의 전자 재료 또는 표시 장치용 부재로

서의 사용.

[0031] [12] [1] 내지 [10] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름이 박리층을 구비한 시트상 기재에 적층된 구조를 갖는 적층체.

[0032] [13] [1] 내지 [10] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 갖는, 전자 부품 또는 표시 장치.

[0033] 또한, 본 발명의 목적은 상기 오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법의 발명에 의해 달성된다.

[0034] [14] 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 전 혹은 경화 후에 압연 가공을 수행하는 것을 특징으로 하는, [1]~[10] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법.

[0035] [15] 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼워 넣은 상태에서 경화시키는 것을 특징으로 하는, [1] 내지 [10] 중 어느 1항에 기재한 오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법.

발명의 효과

[0036] 본 발명에 의하면, 박막화가 가능하고, 필름의 표면 및 내부에서의 결함의 개수가 매우 적으며, 하전압에 대한 높은 절연 파괴 강도를 나타내는 오가노폴리실록산 경화물 필름, 그의 용도 및 제조 방법을 제공할 수 있다. 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름은 취급 작업성 및 투명성, 내열성 등의 실리콘 재료에 기대되는 제반 특성이 우수하여, 전자 부품 등의 접착층 또는 유전층으로서 적합한 필름 내지 시트상 부재이며, 젤, 엘라스토머, 옵티컬 본딩 등의 기능을 가질 수도 있다. 더욱더 적합하게는, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박막화 및 고전압하에서의 절연 파괴 강도가 우수한 필름 내지 시트상 부재로서 전자 재료, 터치 패널 등의 표시 장치용 전자 부재, 액추에이터 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 적합하게 이용할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0037] 이하, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름에 대해 상세히 설명한다.

[두께, 균일성 및 평탄성]

[0039] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박막상이며, 필름의 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있는 것이고, 평균 두께가 1~150 μm 의 범위에 있는 것이 바람직하며, 평균 두께가 1~100 μm 의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다. 여기서, 필름의 평균 두께는 필름 중앙의 두께의 평균값이다. 적합하게는, 상기 오가노폴리실록산 경화물 필름은 균일하면서 평탄하고, 필름의 폭 방향에 대해 말단의 두께와 중앙의 두께의 차가 5.0% 이내이며, 필름 중앙의 두께의 평균값이 5~200 μm 의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다. 필름의 폭 방향이란 필름의 길이 방향과 직각 방향이며, 일반적으로는 원료가 되는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 방향에 대하여, 평면 방향에 직각인 방향을 의미한다. 또한, 필름의 권취가 수행되는 경우에는 권취되는 방향이 길이 방향이며, 필름의 폭 방향은 그에 직각 방향이다. 사변형 또는 대략 사변형의 필름에서는, 필름의 폭 방향은 장축 방향에 직각인 방향이며, 정방형 또는 대략 정방형 필름에 있어서는, 당해 정방형 필름 각 변에 직각 또는 평행한 방향 중 어느 것을 폭 방향으로 해도 무방하다.

[0040] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 필름의 폭 방향에 대해, 말단의 두께(μm)와 중앙의 두께(μm)의 차(절대값)가 5.0% 이내이며, 4.0% 이내인 것이 바람직하고, 3.5% 이내인 것이 특히 바람직하다. 또한, 당해 필름은 양단부의 용기를 포함하여, 실질적으로 면 위에 요철이 없는 평탄하면서 균일한 구조인 것이 바람직하고, 필름 폭 방향의 두께의 최대 변위(차)가 5.0% 이내인 것이 바람직하며, 필름 전체에서 두께의 최대 변위(차)가 5.0% 이내이고, 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 필름인 것이 특히 바람직하다. 특히, 평탄한 필름이면, 단층뿐만 아니라 복수의 필름층을 중첩시켜 균일한 두꺼운 필름층을 형성할 때, 필름 사이의 요철에서 유래하는 기포의 말려들어 감, 변형 및 결함을 발생시키기 어렵다는 이점을 갖는다.

[0041] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 1장당 평균 두께가 1~200 μm 의 범위에 있는 것이지만, 복수의 필름을 중첩시켜 200 μm 를 초과하는 적층 필름을 형성하여, 접착층이나 유전층을 형성하는 목적으로 이용하는 것이 가능하다. 특히, 당해 필름을 2층 이상 적층하여 이루어지는 유전층을 구성하는 유전성 필름은 본원 발명의 범위에 포함된다.

[필름의 크기]

[0043] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 일정한 크기(면적)를 갖는 것이 바람직하며, 필름 폭이 30 mm 이상

이고, 필름 면적이 900 mm^2 이상인 것이 바람직하다. 이러한 필름은, 예를 들어 사방(square) 30 mm 이상의 오가노폴리실록산 경화물 필름이다. 한편, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박리층 위라도 원료의 경화성 조성물을 균일하게 도포하여 경화시킨 구조를 가질 수도 있기 때문에, 길이 방향에 대해서는 롤 위에 권취가 가능한 길이라도 제한없이 이용할 수 있다. 또한 말할 필요도 없지만, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름은 소망의 크기, 형상으로 절단하여 이용할 수도 있다.

[필름의 표면 결함의 개수]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 당해 필름의 임의의 개소에서 동일 필름 표면의 결함의 필름 표면에서의 결함이 매우 적은 것을 특징으로 한다. 여기서, 필름 표면의 결함이란, 기포에서 유래하는 공극(보이드)이나 티끌, 부유 먼지 등의 부착에 의한 동일 필름 표면의 오염 부위이며, 이것이 다수 존재하면, 필름 표면의 균일성을 해쳐 미시적인 결함을 발생시키기 때문에, 특히 당해 필름에 고전압을 인가하여 통전(通電)한 경우에, 당해 부위에서 당해 필름의 절연 파괴를 발생시키는 원인이 된다. 또한, 표면 결함, 특히 직경 수~수십 μm 정도의 미소한 공극은 육안 확인이 곤란한 경우가 있다.

구체적으로는, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 당해 필름의 임의의 개소에서 $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ 를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그 표면 결함의 개수를 측정한 경우, 표면 결함의 개수가 0~1개의 범위에 있으며, 0~0.5개의 범위가 바람직하고, 0~0.1개의 범위가 보다 바람직하다. 표면 결함의 개수가 상기 상한을 초과하면, 당해 필름에 고전압을 인가하여 통전한 경우, 절연 파괴가 일어나기 쉬워져 필름 전체의 절연 파괴 강도가 현저하게 저하된다.

여기서, 광학적 수단을 이용하는 결함 개수의 측정이란, 일정한 조도를 갖는 광원으로부터 표면에 대해 일정한 입사각을 가지고 광조사를 수행하고, 그 반사광을 CCD 카메라 등의 광학적 수단으로 검출하고, 일정한 신호 임계값을 갖는 것을 표면 결함으로서 카운트하는 수법이다. 구체적으로는, 당해 필름으로부터 일정 거리(예를 들어, 50~300 mm)의 위치에 설치한 백색 LED 광원으로부터 특정 입사각(예를 들어, 10~60도)으로 필름 위치에서의 조도가 일정해지도록 조사하고, 그 정반사광(상기 입사각에 대응한 반사각의 반사광)을 필름으로부터의 일정 거리(예를 들어, 50~400 mm)의 위치에 설치한, 주사 속도가 10 m/분일 때의 분해능이 화소 사이즈 $10 \mu\text{m}$ 인 CCD 카메라로 검출하고, 검출한 신호를 주사 방향에 대해 미분 처리를 실시하고, 특정의 신호 임계값을 갖는 결함 개수를 필름 롤 전체에 걸쳐 카운트하고, 필름의 $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ 를 단위 면적으로 하는 범위당 결함수로 환산할 수 있다. 예를 들어, 가부시키가이샤 휴테크사(FUTEC INC.) 제품 MaxEye.Impact(라인 스피드 10 m/min, 폭 분해능 0.01 mm/pixel, 흐름 분해능 0.01 mm/scan의 CCD 카메라를 구비한다)를 이용하여, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름에 대해 일정한 표면 입사각을 갖는 백색 LED 광원으로부터 광조사를 수행하고 그 반사광을 검출함으로써, 필름 표면의 결함수를 특정할 수 있다.

[필름의 내부 결함의 개수]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박막상이기 때문에, 그 필름 내부에서의 결함의 개수도 억제되고 있는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 당해 필름의 임의의 개소에서 $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ 를 단위 면적으로 하는 범위에서, 광학적 수단을 이용하여 그 내부 결함의 개수를 측정한 경우, 내부 결함의 개수가 0~20개의 범위이며, 0~15개의 범위가 바람직하다. 내부 결함의 개수가 상기 상한을 초과하면, 당해 필름에 고전압을 인가하여 통전한 경우, 절연 파괴가 일어나기 쉬워져 필름 전체의 절연 파괴 강도가 현저하게 저하된다.

상기 필름 표면의 결함과 마찬가지로, 광학적 수단을 이용하는 결함 개수의 측정에 의해 내부 결함의 개수를 특정 가능하다. 이 경우, 표면 결함의 측정과 달리, 일정한 조도를 갖는 광원으로부터 필름 표면 하부에 대하여 수직한 광조사를 수행하고, 그 투과광을 CCD 카메라 등의 광학적 수단으로 검출하고, 일정한 신호 임계값을 갖는 것을 표면 결함으로서 카운트하는 수법을 이용할 수 있다. 예를 들어, 가부시키가이샤 휴테크사 제품 MaxEye.Impact(라인 스피드 10 m/min, 폭 분해능 0.01 mm/pixel, 흐름 분해능 0.01 mm/scan의 CCD 카메라를 구비한다)를 이용하여, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름의 하부로부터 수직(직상) 방향으로 필름을 관통하도록 백색 LED 광원으로부터 광조사를 수행하고 그 투과광을 검출함으로써, 필름 내부의 결함수를 특정할 수 있다.

[투명성]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 착색제나 입자 지름이 큰 필러 등을 배합하지 않는 경우에는, 실질적으로 투명하여 투명성/시인성이 요구되는 용도에서의 유전총 또는 접착총으로서 사용할 수 있다. 여기서, 실질적으로 투명이란, 평균 두께 1~200 μm 의 필름상의 경화물을 형성시킨 경우, 육안으로 투명한 것을 의미하는 것이며, 대체로 파장 450 nm의 광의 투과율이 공기의 값을 100%로 한 경우에 80% 이상이다. 본 발명에 있어서,

적합한 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박막상 및 고투명이며, 평균 두께가 1~150 μm 의 범위에 있는 것이 바람직하고, 평균 두께가 1~100 μm 의 범위에 있는 것이 보다 바람직하며, 또한 광투과율이 90% 이상인 것이 특히 바람직하다.

[0053] [절연 파괴 강도]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 상기한 바와 같이, 그 표면 및 내부에 결함이 매우 적기 때문에, 당해 필름에 고전압을 인가한 경우에도, 결함인 필름 내의 공극(보이드)이나 면지에 있어서 과전압을 발생시켜 필름의 절연 파괴 현상이 발생하는 것이 억제되고, 결과적으로 높은 절연 파괴 강도를 실현할 수 있다. 또한, 본 명세서에서 「절연 파괴 강도」란, 인가된 직류 또는 교류의 전압하에서의 본 필름의 절연 파괴 저항성의 척도이며, 절연 파괴 전의 인가 전압을 본 필름의 두께로 나눔으로써, 절연 파괴 강도값 또는 절연 파괴 전압값이 얻어진다. 즉, 본 발명에서의 절연 파괴 강도는 필름 두께의 단위에 대한 전위차의 단위(본 발명에서는 볼트/마이크로미터(V/ μm))로 측정된다. 이러한 절연 파괴 강도는 JIS 2101-82 등의 표준 규격에 준거한 프로그램을 갖는 전기 절연유 파괴 전압 시험 장치(예를 들어, 소肯 가부시키가이샤(SOKEN ELECTRIC CO., LTD.) 제품 포르타 테스트(PORTATEST) 100A-2 등)에 의해 측정 가능하다. 이 때, 필름 위의 임의의 개소에서의 절연 파괴 강도의 측정값의 불균일을 피하기 위해, 적어도 10점 이상의 필름 위의 임의의 개소에서 절연 파괴 강도의 측정을 수행하고, 그 표준 편차값이 충분히 작은 것이 바람직하다.

[0055] 구체적으로는, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 실온에서 측정되는 절연 파괴 강도가 60 V/ μm ~200 V/ μm 의 범위이며, 70 V/ μm ~100 V/ μm 의 범위인 것이 보다 바람직하다. 상기 필름 표면 및 내부의 결함의 개수가 상기 상한을 초과하면, 상기 절연 파괴 강도를 실현할 수 없는 경우가 있다. 또한, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 전체가 균일하고, 미시적인 결함을 거의 포함하지 않기 때문에, 절연 파괴 강도의 표준 편차값이 충분히 작으며, 0.1~10.0 V/ μm 의 범위이고, 0.1~5.0 V/ μm 의 범위인 것이 바람직하다. 상기 필름 표면 및 내부의 결함의 개수가 상기 상한을 초과하면, 필름 표면 및 내부에서의 결함의 개수의 불균일도 커져, 절연 파괴 강도의 표준 편차값이 10.0 V/ μm 를 초과하는 경우가 많아지고, 얻어지는 오가노폴리실록산 경화물 필름의 신뢰성이 저하된다.

[0056] [비유전율]

[0057] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 임의로 플루오로알킬기 등의 고유전성 관능기를 도입할 수도 있으며, 1 kHz, 25°C에서의 필름 전체의 비유전율을 용이하게 3 이상으로 설계할 수 있다. 당해 비유전율은 고유전성 관능기의 도입량 및 고유전성 필러의 사용 등에 의해 설계 가능하며, 비유전율 4 이상, 5 이상, 또는 6 이상의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 비교적 용이하게 얻을 수 있다.

[0058] [기계적 물성]

[0059] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 미시적인 표면 및 내부의 결함이 적은 것이 특징이며, 경도, 인열 강도, 인장 강도 등의 거시적인 기계적 물성은 동일한 화학적 조성, 필름의 두께 및 형상으로 설계된 오가노폴리실록산 경화물 필름에 대체로 준한다. 일 예로서, 오가노폴리실록산 경화물은 2.0 mm 두께의 시트상으로 가열 성형한 경우, JIS K 6249에 의거하여 측정되는 이하의 역학 물성을 갖도록 설계 가능하다.

[0060] (1) 영률(MPa)은 실온하에서 10 MPa 이하로 할 수 있으며, 특히 적합한 범위는 0.1~2.5 MPa이다.

[0061] (2) 인열 강도(N/mm)는 실온하에서 1 N/mm 이상으로 할 수 있으며, 특히 적합한 범위는 2 N/mm 이상이다.

[0062] (3) 인장 강도(MPa)는 실온하에서 1 MPa 이상으로 할 수 있으며, 특히 적합한 범위는 2 MPa 이상이다.

[0063] (4) 파단 신율(%)은 200% 이상으로 할 수 있으며, 특히 적합한 범위는 200~1000%의 범위이다.

[0064] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 이용하는 경우에는, 23°C에서의 전단 저장 탄성률이 10^3 ~ 10^5 Pa의 범위에 있는 것이 바람직하고, 1.0×10^3 ~ 5.0×10^4 Pa의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다.

[0065] 그 외 기계적 물성으로서는, 오가노폴리실록산 경화물 필름의 압축 잔류 변형(%)이 10% 미만인 것이 바람직하고, 5% 미만인 것이 보다 바람직하고, 4% 이하인 것이 특히 바람직하다. 단, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름에서는, 압축 잔류 변형(%)이 3% 미만인 재료도 설계 가능하다.

[0066] 마찬가지로, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 그 압축률(%)이 15% 이상인 것이 바람직하고, 18% 이상

인 것이 보다 바람직하고, 20% 이상인 것이 특히 바람직하다.

[0067] [접착력]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 접착제 또는 접착층으로서 이용하는 경우에는, 오가노폴리실록산 레진의 사용 등에 의해 소망의 접착력을 갖도록 설계할 수도 있다. 예를 들어, 두께 100 μm 의 오가노폴리실록산 경화물 필름의 양면에 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 기재(두께 50 μm)를 붙인 시험편에 대해 23°C, 습도 50%의 환경에서 수행하고, 속도 300 mm/min, 180도의 각도로 떼어 낸 경우, 그 접착력이 5 N/m 이상, 또는 10 N/m 이상으로 설계할 수 있다. 또한, 실용상, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 밀착시키는 기재 자체에 각종 처리에 기반하여 접착력을 부여할 수 있는 경우나 접착층으로서 사용하지 않는 경우에는, 실질적으로 접착력이 없게 되거나, 용이하게 박리 가능한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 이용할 수 있는 것은 말할 필요도 없다.

[0069] [오가노폴리실록산 경화물]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 상기 두께가 되도록 경화시켜 이루어진다. 그 경화 반응 메커니즘은 특별히 한정되는 것은 아니나, 예를 들어 알케닐기와 규소 원자 결합 수소 원자에 의한 하이드로실릴화 반응 경화형; 실라놀기 및/또는 규소 원자 결합 알콕시기에 의한 탈수 축합 반응 경화형, 탈알코올 축합 반응 경화형; 유기 과산화물의 사용에 의한 과산화물 경화 반응형; 및 메르캅토기 등에 대한 고에너지선 조사에 의한 라디칼 반응 경화형 등을 들 수 있으며, 비교적 신속하게 전체가 경화되고, 반응을 용이하게 컨트롤할 수 있는 것으로부터, 하이드로실릴화 반응 경화형, 과산화물 경화 반응형, 라디칼 반응 경화형 및 이들의 조합인 것이 바람직하다. 이를 경화 반응은 가열, 고에너지선의 조사 또는 이들의 조합에 대해 진행한다.

특히, 후술하는 제조 방법으로 필름 표면 및 내부의 결합이 매우 적은 오가노폴리실록산 경화물 필름이 얻어지는 것으로부터, 본 발명에 있어서 하이드로실릴화 반응 경화성의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 사용하는 것이 바람직하다.

적합하게는, (A) 분자 내에 적어도 2개의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산,

(B) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠폴리실록산 조성물 중의 알케닐기의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~2.5몰이 되는 양, 및

(C) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매

를 함유하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는 오가노폴리실록산 경화물 필름이며, 특히, 상기 성분 (A)가

[0076] (a1) 문자쇄 말단에만 알케닐기를 갖는 직쇄상 또는 분지쇄상의 오가노폴리실록산, 및

[0077] (a2) 문자 내에 적어도 1개의 분지 실록산 단위를 가지며, 비닐(CH₂=CH-)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위 내에 있는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지를 함유하는 오가노폴리실록산 혼합물인 것이 보다 바람직하다.

상기 성분 (A)는 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산이며, 비닐기, 알릴기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기, 노네닐기, 데세닐기, 운데세닐기, 도데세닐기 등의 탄소수 2~20의 알케닐기; 3-아크릴옥시프로필기, 4-아크릴옥시부틸기 등의 아크릴 함유기; 3-메타크릴옥시프로필기, 4-메타크릴옥시부틸기 등의 메타크릴 함유기로부터 선택되는 경화 반응성기를 문자 내에 함유하는 직쇄상, 분지쇄상, 환상 또는 수지상(네트워크상)의 오가노폴리실록산이 예시된다. 특히, 비닐기, 알릴기 또는 헥세닐기로부터 선택되는 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산이 바람직하다.

성분 (A)인 오가노폴리실록산은 문자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 알콕시기로부터 선택되는 기를 포함할 수도 있다. 또한, 1가 탄화수소기는 그 수소 원자의 일부가 할로겐 원자 또는 수산기로 치환되어 있을 수도 있다. 이러한 1가 탄화수소기의 예로서는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기, 운데실기, 도데실기 등의 알킬기; 페닐기, 톨릴기, 크실릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트릴기, 페레닐기 등의 아릴기; 벤질기, 페네틸기, 나프틸에틸기, 나프틸프로필기, 안트라세닐에틸기, 페난트릴에틸기, 페레닐에틸기 등의 아르알킬기; 및 이들 아릴기 또는 아르알킬기의 수소 원자를 메틸기, 에틸기 등의 알킬기; 메톡시기, 에톡시기 등의 알콕시기; 염소 원자, 브롬 원자 등의

할로겐 원자로 치환한 기를 들 수 있다. 또한, 성분 (A)가 수산기 등을 포함하는 경우, 당해 성분은 하이드로 실릴화 반응 경화성에 더하여 축합 반응성을 갖는다.

[0080] 적합하게는, 성분 (A)는 하기 평균 조성식:



[0082] 로 표시되는 오가노폴리실록산, 또는 그의 혼합물일 수 있다.

[0083] 식 중, R^1 은 상기 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기이고,

[0084] R^2 는 상기 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 알콕시기로부터 선택되는 기이고,

[0085] a 및 b는 다음 조건: $1 \leq a+b \leq 3$ 및 $0.001 \leq a/(a+b) \leq 0.33$ 을 만족하는 수이며, 바람직하게는 다음 조건: $1.5 \leq a+b \leq 2.5$ 및 $0.005 \leq a/(a+b) \leq 0.2$ 를 만족하는 수이다. 이는, $a+b$ 가 상기 범위의 하한 이상이면, 경화 물의 유연성이 높아지기 때문이며, 한편 상기 범위의 상한 이하이면, 경화물의 기계 강도가 높아지기 때문이며, $a/(a+b)$ 가 상기 범위의 하한 이상이면, 경화물의 기계 강도가 높아지기 때문이며, 한편 상기 범위의 상한 이하이면, 경화물의 유연성이 높아지기 때문이다.

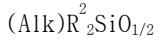
[0086] 본 발명에 관한 성분 (A)는 특히 적합하게는,

[0087] (a1) 분자쇄 말단에만 알케닐기를 갖는 직쇄상 또는 분지쇄상의 오가노폴리실록산 및

[0088] (a2) 분자 내에 적어도 1개의 분지 실록산 단위를 가지며, 비닐($CH_2=CH-$)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위 내에 있는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지

[0089] 를 포함하는 오가노폴리실록산 혼합물이다.

[0090] 성분 (a1)은 그의 분자쇄 말단에



[0092] (식 중, Alk는 탄소 원자수 2 이상의 알케닐기)로 표시되는 실록산 단위를 가지고, 그 외 실록산 단위가 실질적으로 $R_2^2 SiO_{2/2}$ 로 표시되는 실록산 단위만으로 이루어지는 직쇄상 또는 분지쇄상의 오가노폴리실록산이다. 또한,

R^2 는 상기 동일한 기를 나타낸다. 또한, 성분 (A1-1)의 실록산 중합도는 말단 실록산 단위를 포함하여 7~1002의 범위이며, 102~902의 범위일 수 있다. 이러한 성분 (A1-1)은 특히 적합하게는, 분자쇄의 양말단이 $(Alk)R_2^2 SiO_{1/2}$ 로 표시되는 실록산 단위로 봉쇄된 직쇄상의 오가노폴리실록산이다.

[0093] 성분 (a2)는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지이며, 평균 단위식:



[0095] 로 표시되는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지가 예시된다.

[0096] 상기 식 중, R은 알케닐기 및 상기 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기로부터 선택되는 기이며, X는 수소 원자 또는 탄소 원자수 1~3의 알킬기이다. 단, 모든 R 중, 적어도 당해 오가노폴리실록산 수지 중의 비닐($CH_2=CH-$)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위를 만족하는 범위에서 R은 알케닐기이며, 특히 $RSiO_{1/2}$ 로 표시되는 실록산 단위 상의 R의 적어도 일부는 알케닐기인 것이 바람직하다.

[0097] 상기 식 중, $(o+r)$ 은 양수이고, p는 0 또는 양수이고, q는 0 또는 양수이고, s는 0 또는 양수이며, 또한 $p/(o+r)$ 은 0~10의 범위 내의 수이고, $q/(o+r)$ 은 0~5의 범위 내의 수이고, $(o+r)/(o+p+q+r)$ 은 0.3~0.9의 범위 내의 수이고, $s/(o+p+q+r)$ 은 0~0.4의 범위 내의 수이다.

[0098] 성분 (a2)로서 특히 적합하게는,



- [0100] (식 중, Alk, R²는 상기 동일한 기이고, q1+q2+r은 50~500의 범위의 수이고, (q1+q2)/r은 0.1~2.0의 범위의 수이고, q2는 당해 오가노폴리실록산 수지 중의 비닐(CH₂=CH-)기의 함유량이 1.0~5.0질량%의 범위를 만족하는 범위의 수이다)
- [0101] 로 표시되는 알케닐기 함유 MQ 오가노폴리실록산 수지가 예시된다.
- [0102] 이들 분자쇄 말단에만 알케닐기를 갖는 성분 (a1) 및 오가노폴리실록산 수지로서 일정량의 알케닐기를 갖는 성분 (a2)를 병용함으로써, 조성물 전체로서 경화성이 우수하며, 또한 기계적 강도 및 유연성이 우수한 경화 반응물을 부여하여, 상기 전자 부품 등에서의 접착층 또는 유전층에 특히 적합한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 제공할 수 있다.
- [0103] 성분 (B)는 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠폴리실록산이며, 성분 (A)의 가교제로서 기능하는 성분이다.
- [0104] 이러한 성분 (B)로서, 1,1,3,3-테트라메틸디실록산, 1,3,5,7-테트라메틸사이클로테트라실록산, 트리스(디메틸하이드로겐실록시)메틸실란, 트리스(디메틸하이드로겐실록시)페닐실란, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 메틸하이드로젠폴리실록산, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 디메틸폴리실록산, 분자쇄 양말단 디메틸하이드로겐실록시기 봉쇄 디메틸실록산 · 메틸하이드로겐실록산 공중합체, 분자쇄 양말단 디메틸하이드로겐실록시기 봉쇄 디메틸실록산 · 메틸하이드로겐실록산 공중합체, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 메틸하이드로겐실록산 · 디페닐실록산 공중합체, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 메틸하이드로겐실록산 · 디페닐실록산 · 디메틸실록산 공중합체, 트리메톡시실란의 가수 분해 축합물, (CH₃)₂HSiO_{1/2} 단위와 SiO_{4/2} 단위로 이루어지는 공중합체, (CH₃)₂HSiO_{1/2} 단위와 SiO_{4/2} 단위와 (C₆H₅)SiO_{3/2} 단위로 이루어지는 공중합체, 및 이들의 2종 이상의 혼합물이 예시된다.
- [0105] 성분 (B)의 사용량은 조성물 중의, 적합하게는 성분 (A) 중의 탄소-탄소 이중 결합 1몰에 대하여, 규소 결합 수소 원자가 0.1~10몰의 범위가 되는 양이며, 적합하게는 0.1~5.0몰의 범위가 되는 양이고, 특히 적합하게는 0.1~2.5몰의 범위가 되는 양이다. 성분 (B)의 사용량이 상기 하한 이하이면 경화 불량의 원인이 되는 경우가 있으며, 성분 (B)의 함유량이 상기 상한을 초과하면 경화물의 기계적 강도가 너무 높아져 접착층 또는 유전층으로서 적합한 물성을 얻을 수 없게 되는 경우가 있다. 단, 본 발명에 따른 오가노폴리실록산 경화물 필름의 유리 등의 피착체에 대한 접착 강도의 향상 등을 목적으로 하는 경우, 성분 (A) 중의 탄소-탄소 이중 결합 1몰에 대하여 규소 결합 수소 원자가 20몰을 초과하는 범위로 사용하는 것을 방해하는 것은 아니다.
- [0106] 성분 (C)는 성분 (A) 및 성분 (B)의 하이드로실릴화 반응을 촉진하는 촉매이며, 백금계 촉매, 로듐계 촉매, 팔라듐계 촉매, 니켈계 촉매, 이리듐계 촉매, 루테늄계 촉매 및 철계 촉매가 예시되고, 바람직하게는 백금계 촉매이다. 이 백금계 촉매로서는, 백금 미분말, 백금흑, 백금 담지 실리카 미분말, 백금 담지 활성탄, 염화백금산, 염화백금산의 알코올 용액, 백금의 올레핀 착체, 백금의 알케닐실록산 착체 등의 백금계 화합물이 예시되며, 특히 백금의 알케닐실록산 착체가 바람직하다. 이 알케닐실록산으로서는, 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산, 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라비닐사이클로테트라실록산, 이들의 알케닐실록산의 메틸기의 일부를 에틸기, 페닐기 등으로 치환한 알케닐실록산, 이들 알케닐실록산의 비닐기를 알릴기, 헥세닐기 등으로 치환한 알케닐실록산이 예시된다. 특히, 이 백금-알케닐실록산 착체의 안정성이 양호한 것으로부터, 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산이 바람직하다. 또한, 이 백금-알케닐실록산 착체의 안정성을 향상시킬 수 있는 것으로부터, 이 착체에 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산, 1,3-디알릴-1,1,3,3-테트라메틸디실록산, 1,3-디비닐-1,3-디메틸-1,3-디페닐디실록산, 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라페닐디실록산, 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라비닐사이클로테트라실록산 등의 알케닐실록산이나 디메틸실록산 올리고머 등의 오가노실록산 올리고머를 첨가하는 것이 바람직하고, 특히 알케닐실록산을 첨가하는 것이 바람직하다.
- [0107] 성분 (C)의 사용량은 유효량이며, 특별히 제한되는 것은 아니나, 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 경화를 촉진하는 양이면 특별히 한정되지 않는다. 구체적으로는, (A)~(C) 성분의 합(전체를 100질량%로 한다)에 대하여, 이 촉매 중의 금속 원자가 질량 단위로 0.01~1,000 ppm, 적합하게는 (C) 성분 중의 백금 금속 원자가 0.1~500 ppm의 범위 내가 되는 양이다. 이는, (C) 성분의 함유량이 상기 범위의 하한 미만이면, 경화가 불충분해지는 경우가 있으며, 상기 범위의 상한을 초과하면, 경제적이지 않는 것 외에 얻어지는 경화물의 착색 등, 투명성에 악영향을 미치는 경우가 있다.
- [0108] [(D) 용매]

- [0109] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 그대로 경화 반응에 제공할 수 있으나, 한편, 당해 조성물 또는 그 성분의 일부(예를 들어, 오가노폴리실록산 레진)가 고형상인 경우나 점조액상(粘稠液狀)인 경우에는, 그의 혼화성 및 취급성을 향상시키기 위해 필요에 따라 유기 용매를 사용할 수도 있다. 특히, 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 도공하는 경우, 전체 점도가 100~50,000 mPa·s가 되는 범위로 용매를 사용하여 점도 조정을 할 수도 있으며, 용매로 희석하는 경우, 상기 (A)~(C) 성분의 합(100질량부)에 대하여 0~2000질량부의 범위로 사용할 수 있다. 즉, 본 발명 조성물에 있어서, (D) 용매는 0질량부일 수도 있으며 바람직하다. 특히, 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 저중합도의 폴리머를 선택함으로써 용매 프리로 하는 설계가 가능하며, 경화하여 얻어지는 필름 중에 불소계 용매, 유기 용매 등이 잔류하지 않고, 환경 부하의 문제 및 전자 디바이스에 대한 용매의 영향을 해소할 수 있는 이점이 있다.
- [0110] 여기서 사용하는 유기 용매로서는, 조성물 중의 전체 구성 성분 또는 일부 구성 성분을 용해시킬 수 있는 화합물이면 그의 종류는 특별히 한정되지 않으며, 끓는점이 80°C 이상 200°C 미만인 것이 바람직하게 사용된다. 예를 들어, i-프로필 알코올, t-부틸 알코올, 사이클로헥산올, 사이클로헥사논, 메틸 에틸 케톤, 메틸 이소부틸 케톤, 툴루엔, 크실렌, 메시틸렌, 1,4-디옥산, 디부틸 에테르, 아니솔, 4-메틸 아니솔, 에틸벤젠, 에톡시벤젠, 에틸렌 글리콜, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르, 에틸렌 글리콜 디에틸 에테르, 2-메톡시에탄올(에틸렌 글리콜 모노메틸 에테르), 디에틸렌 글리콜 디메틸 에테르, 디에틸렌 글리콜 모노메틸 에테르, 1-메톡시-2-프로필 아세테이트, 1-에톡시-2-프로필 아세테이트, 옥타메틸사이클로테트라실록산 및 헥사메틸디실록산 등의 비할로겐계 용매, 트리플루오로메틸벤젠, 1,2-비스(트리플루오로메틸)벤젠, 1,3-비스(트리플루오로메틸)벤젠, 1,4-비스(트리플루오로메틸)벤zen, 트리플루오로메틸클로로벤젠, 트리플루오로메틸플루오로벤젠, 하이드로플루오로 에테르 등의 할로겐계 용매를 들 수 있다. 이들 유기 용매는 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 혼합하여 사용할 수도 있다. 또한, 경화성 조성물 중의 플루오로알킬기 함유량이 많을수록, 상기 할로겐계 용매의 사용 비율을 높일 필요가 있다.
- [0111] 여기서 사용하는 유기 용매의 양은 상기 (A)~(C) 성분의 합을 100질량부로 했을 때, 0~2,000질량부의 범위가 바람직하고, 5~500질량부, 10~300질량부가 보다 바람직하다. 또한, 본 발명의 경화물 필름의 용도에 따라, 유기 용매의 양은 실질적으로 0질량부이며, 용매 프리로 하는 것이 바람직하다.
- [0112] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 25°C에서의 점도는 특별히 한정되지 않으나, 바람직하게는 100~500,000 mPa·s의 범위 내, 더욱더 바람직하게는 300~100,000 mPa·s, 특히 바람직하게는 1,000~10,000 mPa·s의 범위 내이다. 바람직한 점도 범위로 설정할 목적으로, 상기 유기 용매의 사용량을 조정하는 것도 가능하다.
- [0113] [유전성 관능기의 도입]
- [0114] 본 발명에 따른 오가노폴리실록산 경화물 필름을 액추에이터 등의 트랜스듀서에 이용하는 전기 활성 필름(예를 들어, 유전성 필름)으로서 이용하는 경우, 경화물에 고유전성 관능기를 도입할 수도 있다. 단, 고유전성 관능기를 포함하지 않는 오가노폴리실록산 경화물 필름이더라도, 전기 활성 필름으로서 이용하는 것은 가능하다. 또한, 이들 고유전성 관능기의 도입 및 비유전율의 향상에 대해서는, 예를 들어 본건 출원인들의 국제 특허공개 공보 제W02014/105959호 등에 제안되어 있다.
- [0115] 고유전성 관능기의 도입은 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부로서 고유전성 관능기를 갖는 오가노폴리실록산 또는 오가노하이드로젠플리실록산을 이용하는 것이나, 고유전성 관능기를 갖는 유기 첨가제, 고유전성 관능기를 갖는 비반응성의 유기 규소 화합물 등을 상기 경화성 조성물에 첨가함으로써 수행할 수 있다. 경화성 조성물에 대한 혼화성 및 경화물의 비유전율의 향상의 견지에서, 상기 성분 (A) 또는 성분 (B)인 오가노폴리실록산 또는 오가노하이드로젠플리실록산에 있어서, 그 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상, 적합하게는 20몰% 이상, 보다 적합하게는 40몰% 이상이 고유전성 관능기에 의해 치환되어 있는 것이 바람직하다.
- [0116] 오가노폴리실록산 경화물 필름에 도입되는 고유전성 관능기의 종류는 특별히 제한되는 것은 아니라, a) 3,3,3-트리플루오로프로필기 등으로 대표되는 할로겐 원자 및 할로겐 원자 함유기, b) 시아노프로필기 등으로 대표되는 질소 원자 함유기, c) 카보닐기 등으로 대표되는 산소 원자 함유기, d) 이미다졸기 등의 복소환기, e) 보레이트 에스테르기 등의 불소 함유기, f) 포스핀기 등의 인 함유기 및 g) 티올기 등의 유황 함유기가 예시되며, 적합하게는 불소 원자를 포함하는 할로겐 원자 및 할로겐 원자 함유기의 사용이 바람직하다.
- [0117] 본 발명에서는 성분 (A) 또는 성분 (B)의 일부 또는 전부에, 고유전성 관능기는 $(C_pF_{2p+1})-R$ -(R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며, p는 1 이상 8 이하의 정수이다)로 표시되는 플루오로알킬기가 도입되어 있는 것이 바람직

하다. 이러한 플루오로알킬기는 비유전율이 우수한 경화물을 부여하며, 또한 각 성분이 불소 원자를 가짐으로써 각 성분의 상용성을 개선하고, 투명성이 우수한 경화물을 부여한다. 이러한 플루오로알킬기의 구체예로서는, 트리플루오로프로필기, 웬타플루오로부틸기, 헵타플루오로펜틸기, 노나플루오로헥실기, 운데카플루오로헵틸기, 트리데카플루오로옥틸기, 웬타데카플루오로노닐기, 헵타데카플루오로데실기이다. 이 중에서는, 유전 특성, 경제성, 제조 용이성, 얻어지는 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 성형 가공성의 관점에서 $p=1$ 인 기, 즉 트리플루오로프로필기가 바람직한 기이다.

[0118] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물에는 상기 성분 외에, 본 발명의 목적을 해치지 않는 한 필요에 따라 이들 이외의 성분을 첨가 배합할 수 있다. 다른 성분으로서는, 하이드로실릴화 반응 억제제, 이형제, 절연성 첨가제, 접착성 향상제, 내열성 향상제, 충전제, 안료, 그 외 종래 공지의 각종 첨가제가 예시된다. 예를 들어, 전체의 점도 조정이나 유전성 향상 등의 기능성 개선을 목적으로, 무기 충전제를 배합할 수도 있다.

[0119] [하이드로실릴화 반응 억제제]

[0120] 하이드로실릴화 반응 억제제는 성분 (A) 및 성분 (B)의 사이에서 일어나는 가교 반응을 억제하고, 상온에서의 사용 가능 시간을 연장하여 보존 안정성을 향상시키기 위해 배합하는 것이다. 따라서, 본 발명의 경화성 조성물에 있어서 실용상, 필연적으로 배합되는 성분이다.

[0121] 하이드로실릴화 반응 억제제로서, 아세틸렌계 화합물, 엔인 화합물, 유기 질소 화합물, 유기 인 화합물, 옥심화합물이 예시된다. 구체적으로는, 3-메틸-1-부틴-3-올, 3,5-디메틸-1-헥신-3-올, 3-메틸-1-펜틴-3-올, 1-에티닐-1-사이클로헥산올, 페닐부틴올 등의 알킨 알코올; 3-메틸-3-펜텐-1-인, 3,5-디메틸-1-헥신-3-인 등의 엔인 화합물; 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라비닐사이클로테트라실록산, 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라헥세닐사이클로테트라실록산 등의 메틸알케닐사이클로실록산; 벤조트리아졸이 예시된다.

[0122] 하이드로실릴화 반응 억제제의 배합량은 본 발명에 관한 상온에서의 가사 시간을 연장하여 보존 안정성을 향상하는데 유효한 양이다. 통상, 성분 (A) 100질량%당 0.001~5질량%의 범위 내이며, 바람직하게는 0.01~2질량%의 범위 내이지만, 본 성분의 종류, 백금계 촉매의 성능과 함유량, 성분 (A) 중의 알케닐기 양, 성분 (B) 중의 규소 원자 결합 수소 원자량 등에 따라 적절히 선정할 수 있다.

[0123] [충전제]

[0124] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 있어서, 충전제는 소망에 따라 이용할 수도 사용하지 않을 수도 있다. 충전제를 사용하는 경우에는 무기 충전제 및 유기 충전제 중 어느 하나 또는 둘다를 사용할 수 있다. 사용하는 충전제의 종류는 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 고유전성 충전제, 도전성 충전제, 절연성 충전제 및 보강성 충전제를 들 수 있으며, 이들의 1종 이상을 사용할 수 있다. 특히, 본 발명의 조성물에는 그 투명성, 도공성 및 취급 작업성을 해치지 않는 범위에서, 점도 조정 또는 기능성 부여를 목적으로, 고유전성 충전제, 도전성 충전제, 절연성 충전제 및 보강성 충전제로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 충전제를 함유할 수 있으며, 특히 기계적 강도 향상의 견지에서, 적어도 1종류 이상의 보강성 충전제를 배합하는 것이 바람직하다. 특히, 충전제의 일부 또는 전부는 1종류 이상의 표면 처리제에 의해 표면 처리되어 있을 수도 있다.

[0125] 충전제는 1종류 또는 2종류 이상일 수 있으며, 그 형상은 특별히 한정되는 것은 아니고, 입자상, 판상, 침상, 섬유상 등의 임의의 형상의 것을 사용할 수 있다. 필러의 형상이 입자인 경우, 필러의 입자 지름은 특별히 한정되는 것은 아니나, 예를 들어 레이저 광 회절법이나 동적 광산란법으로 측정한 경우, 그 부피 평균 입자 지름은, 예를 들어 0.001~500 μm 의 범위로 할 수 있다. 또한, 필러의 사용 목적에 따라, 필러의 부피 평균 입자 지름은 300 μm 이하, 200 μm 이하, 100 μm 이하, 10 μm 이하, 혹은 0.01 μm 이상, 0.1 μm 이상, 1 μm 이상으로 할 수 있다. 필러의 형상이 판상, 침상, 섬유상 등의 이방성인 경우, 필러의 종횡비는 1.5 이상, 5 이상 또는 10 이상일 수 있다. 부피 평균 입자 지름이 0.01 μm 이하인 동시에, 최대 입자의 입자 지름이 0.02 μm 이하인 미립자를 이용하면, 실질적으로 투명성이 높은 경화물, 특히 접착제 필름 또는 전기 활성 필름을 제조할 수 있는 경우가 있다.

[0126] [보강성 충전제]

[0127] 본 발명에 있어서, 바람직한 충전제는 경화물의 기계적 강도의 견지에서, 평균 일차 입자 지름이 50 nm 미만인 1종 이상의 보강성 무기 미립자이며, 흄드 실리카, 습식 실리카, 분쇄 실리카, 탄산 칼슘, 규조토, 미분쇄 석영, 알루미나·산화아연 이외의 각종 금속 산화물 분말, 유리 섬유, 탄소 섬유 등이 예시된다. 또한, 이들을 후술하는 각종 표면 처리제로 처리한 것일 수도 있다. 그 중에서도 실리카가 권장된다.

- [0128] 바람직한 예로서는 기계적 강도의 향상의 관점에서, 평균 일차 입자 지름이 10 nm 이하이고, 부분적으로 응집하여, 그 비표면적이 $50 \text{ m}^2/\text{g}$ 이상, $300 \text{ m}^2/\text{g}$ 이하인 친수성 또는 소수성의 흡드 실리카를 들 수 있다. 또한, 분산성 향상의 점에서, 흡드 실리카를 실라잔 또는 후술하는 실란커플링제로 처리한 것이 바람직하다. 이를 보강성 무기 입자는 1종을 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 조합하여 사용할 수도 있다.
- [0129] 보강성 무기 미립자를 조성물 중에 배합함으로써, 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 이루어지는 오가노폴리실록산 경화물(이하, 단순히 「경화물」)의 역학 강도, 절연 파괴 강도를 증가시키는 것이 가능해진다. 이를 보강성 무기 미립자의 배합량은 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 대하여 0.1~30질량%의 범위가 바람직하고, 0.1~10질량%의 범위가 보다 바람직하다. 배합량이 상기 바람직한 범위를 벗어나면 무기 입자를 배합함에 따른 효과가 얻어지지 않거나, 혹은 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 성형 가공성이 저하되는 경우가 있다.
- [0130] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물 중에서 사용되는 무기 미립자(입자 지름, 기능 등을 막론하고)의 일부 또는 전부는 1종류 이상의 표면 처리제에 의해 표면 처리될 수 있다. 표면 처리의 종류는 특별히 한정되는 것은 아니며, 친수화 처리 또는 소수화 처리를 들 수 있지만, 소수화 처리가 바람직하다. 소수화 처리된 무기 미립자를 사용하면, 오가노폴리실록산 조성물 중에 고충전율로 분산시킬 수 있다. 또한, 조성물의 점도의 증대가 억제되어 성형 가공성이 향상된다.
- [0131] 상기 표면 처리는 표면 처리제로 무기 미립자를 처리(또는 피복 처리)함으로써 수행할 수 있다. 소수화용 표면 처리제로서는 유기 티탄 화합물, 유기 규소 화합물, 유기 지르코늄 화합물, 유기 알루미늄 화합물 및 유기 인화합물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 표면 처리제를 들 수 있다. 표면 처리제는 단독으로 또는 2종 이상을 조합할 수도 있다. 이를 표면 처리제 중, 유기 규소 화합물, 그 중에서도 실라잔, 실란류, 실록산류, 폴리실록산류가 바람직하고, 실라잔, 알킬트리알콕시실란류, 편말단 트리알콕시실릴폴리디메틸실록산류가 가장 바람직하게 사용된다.
- [0132] 상기 무기 미립자 총량에 대한 표면 처리제의 비율은 0.1질량% 이상, 10질량% 이하의 범위가 바람직하고, 0.3질량% 이상, 5질량% 이하의 범위가 보다 바람직하다. 또한, 처리량에 대해서는 무기 입자와 표면 처리제의 투입비이며, 처리 후에 잉여 처리제를 제거하는 것이 바람직하다.
- [0133] [그 외 기능성 충전재]
- [0134] 그 외 기능성 충전재로서, 유전성 무기 미립자, 도전성 무기 미립자, 절연성 무기 미립자 및 열전도성 무기 미립자가 예시된다. 이를 미립자로부터 선택되는 1종 이상을 본 발명의 조성물에 사용할 수 있다. 또한, 이를 무기 미립자는 보강성 충전재로서의 기능 등, 2종류 이상의 기능을 함께 갖는 경우가 있다.
- [0135] 바람직한 유전성 무기 미립자의 예로서, 산화티탄, 티탄산 바륨, 티탄산 스트론튬, 티탄산 지르콘산납 및 티탄산 바륨의 바륨 및 티탄 부위의 일부를 칼슘, 스트론튬, 이트륨, 네오디뮴, 사마륨, 디스프로이트 등의 알칼리 토류 금속, 지르코늄 또는 희토류 금속으로 치환한 복합 금속 산화물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 무기 미립자를 들 수 있으며, 산화티탄, 티탄산 바륨, 티탄산 지르콘산 바륨 칼슘 및 티탄산 스트론튬이 보다 바람직하고, 산화티탄, 티탄산 바륨이 더욱더 바람직하다.
- [0136] 특히, 유전성 무기 미립자는 그 적어도 일부가 실온, 1 kHz에서의 비유전율이 10 이상인 유전성 무기 미립자인 것이 특히 바람직하다. 또한, 당해 무기 미립자의 바람직한 크기(평균 일차 입자 지름)의 상한은 20,000 nm($20 \mu\text{m}$)이지만, 후술하는 트랜스듀서용 박막으로의 가공성을 고려하면, 10,000 nm($10 \mu\text{m}$)가 보다 바람직하다. 당해 유전성 무기 미립자의 사용에 의해, 오가노폴리실록산 경화물에 대해 기계 특성 및/또는 전기적 특성, 특히 그 비유전율을 더욱더 개선할 수 있는 경우가 있다.
- [0137] 도전성 무기 미립자로서는 오가노폴리실록산 경화물에 도전성을 부여할 수 있는 것이면 특별히 제한은 없다. 구체적으로는, 도전성 카본 블랙, 그래파이트, 기상 성장 카본(VGCF) 등의 도전성 카본; 백금, 금, 은, 구리, 니켈, 주석, 아연, 철, 알루미늄 등의 금속 분말을 들 수 있으며, 또한 안티몬이 도핑된 산화주석, 인이 도핑된 산화주석, 산화주석/안티몬으로 표면 피복된 침상 산화티탄, 산화주석, 산화인듐, 산화안티몬, 안티몬산 아연, 카본이나 그래파이트의 위스커 표면에 산화주석 등을 피복한 안료; 주석 도핑 산화인듐(ITO), 불소 도핑 산화주석(FTO), 인 도핑 산화주석 및 산화니켈로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 도전성 금속 산화물을 피복한 안료; 이산화티탄 입자 표면에 산화주석 및 인을 포함하는 도전성을 갖는 안료 등을 들 수 있으며, 또한 이들은 후술하는 각종 표면 처리제로 처리한 것일 수도 있다. 이들은 각각 단독으로 또는 2종 이상 조합하여

사용할 수 있다.

[0138] 또한, 도전성 무기 미립자는 유리 섬유, 실리카 알루미나 섬유, 알루미나 섬유, 탄소 섬유 등의 섬유, 및 봉산 알루미늄 위스커, 티탄산 칼륨 위스커 등의 침상 보강재, 글라스 비즈, 탈크, 마이카, 그래파이트, 월라스토나이트, 돌로마이트 등의 무기 충전재의 표면에 금속 등의 도전성 물질을 피복한 것일 수도 있다.

[0139] 본 발명에서 사용 가능한 절연성 무기 미립자로서는, 일반적으로 알려진 절연형 무기 재료, 즉 부피 저항률이 $10^{10} \sim 10^{18} \Omega \cdot \text{cm}$ 인 무기 재료의 입자이면 제한이 없으며, 입자상, 플레이크상, 파이버(위스커를 포함한다)상 중 어느 형상이든 사용할 수 있다. 구체적으로는, 세라믹의 구상 입자, 판상 입자 또는 파이버를 들 수 있으며, 알루미나, 산화철, 산화구리, 마이카나 탈크 등의 금속 실리케이트, 석영, 비정질 실리카, 유리 등의 입자를 바람직한 사용예로서 들 수 있다. 또한, 이들을 후술하는 각종 표면 처리제로 처리한 것일 수도 있다. 이들은 각각 단독으로 또는 2종 이상 조합하여 사용할 수 있다. 절연성 무기 미립자를 조성물 중에 배합함으로써, 오가노폴리실록산 경화물의 역학 강도, 절연 파괴 강도를 증가시키는 것이 가능해지고, 비유전율의 증가도 보이는 경우가 있다.

[0140] 이들 절연성 무기 입자의 배합량은 그 용도에 따라 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 대하여 0.1~20질량%의 범위가 바람직하고, 0.1~5질량%의 범위가 보다 바람직하다. 배합량이 상기 바람직한 범위를 벗어나면, 배합에 의한 효과가 얻어지지 않거나, 혹은 오가노폴리실록산 경화물의 역학 강도가 저하되는 경우가 있다.

[0141] 본 발명에서 사용 가능한 열전도성 무기 미립자로서는 산화마그네슘, 산화아연, 산화니켈, 산화바나듐, 산화구리, 산화철, 산화은 등의 금속 산화물 입자, 및 질화알루미늄, 질화붕소, 탄화규소, 질화규소, 탄화붕소, 탄화티탄, 다이아몬드, 다이아몬드 라이크 카본 등의 무기 화합물 입자를 들 수 있으며, 산화아연, 질화붕소, 탄화규소 및 질화규소가 바람직하다. 이들 열전도성 무기 미립자의 1종 이상을 조성물 중에 배합함으로써, 오가노폴리실록산 경화물의 열전도율을 증가시키는 것이 가능해진다.

[0142] 이들 무기 입자의 평균 입자 지름의 측정은 당해 분야에서 통상의 측정 방법에 의해 수행할 수 있다. 예를 들어, 평균 입자 지름이 50 nm 이상, 500 nm 정도 이하인 경우에는, 투과형 전자 현미경(TEM), 전계 방사형 투과전자 현미경(FE-TEM), 주사형 전자 현미경(SEM), 전계 방사형 주사 전자 현미경(FE-SEM) 등의 현미경 관찰에 의해 입자 지름을 측정하고, 평균값을 구함으로써 평균 일차 입자 지름의 측정을 할 수 있다. 한편, 평균 입자 지름이 500 nm 정도 이상인 경우에는, 레이저 회절·산란식 입도 분포 측정 장치 등에 의해 평균 일차 입자 지름의 값을 직접 구할 수 있다.

[그 외 입의 성분]

[0144] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 추가로 이형성 또는 절연 파괴 특성의 개선을 위한 첨가제, 접착성 향상제 등을 함유할 수 있다.

[0145] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 박막상으로 경화하여 얻어지는 필름상 또는 시트상의 경화물은 접착제 필름, 트랜스듀서를 구성하는 전기 활성 필름(유전층 또는 전극층)에 적합하게 이용할 수 있는 것이지만, 박막 형성 시에 경화층의 이형성이 나쁘면, 특히 고속으로 오가노폴리실록산 경화물 필름을 제조한 경우에, 형 이탈(die releasing)에서 기인하여 필름이 파손되는 경우가 있다. 또한, 액추에이터, 터치 패널 등에 이용하는 유전층으로서는, 저압하에서의 감도 향상을 위해 접착성의 저감이 요구되는 경우가 있다. 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 필름에 테미지를 주지 않고 필름의 제조 속도를 향상시킬 수 있으며, 또한 그 외 이형제의 첨가에 의해 더욱더 접착성을 저감할 수 있는 경우가 있다.

[0146] 본 발명에 따른 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 적용 가능한 이형성 향상 첨가제(=이형제)로서는, 예를 들어 카복실산계 이형제, 에스테르계 이형제, 에테르계 이형제, 케톤계 이형제, 알코올계 이형제 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 조합하여 사용할 수도 있다. 또한, 상기 이형제로서는 규소 원자를 포함하지 않는 것, 규소 원자를 포함하는 것 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다. 이들의 구체 예는, 예를 들어 상기 국제 특허공개공보 제W02014/105959호에서 제안된 것과 동일하다.

[0147] 절연 파괴 특성 향상제는 전기 절연성 향상제인 것이 바람직하며, 알루미늄 또는 마그네슘의 수산화물 또는 염, 점토 광물 및 이들의 혼합물, 구체적으로는 규산 알루미늄, 황산 알루미늄, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 소성 클레이, 몬모릴로나이트, 하이드로탈사이트, 탈크 및 이들의 혼합물로 이루어지는 군으로부터 선택할 수 있다. 또한, 당해 절연성 향상제는 공지의 표면 처리 방법으로 처리되어 있을 수도 있다. 이들의 구체 예는, 예를 들어 상기 국제 특허공개공보 제W02014/105959호에서 제안된 것과 동일하다.

- [0148] 접착성 향상제는 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 경화 도중에 접촉하고 있는 기재에의 접착성 향상을 위한 것이다. 당해 조성물의 경화물인 유전총을 재박리하지 않는 경우에 유효한 첨가제이다. 접착성 향상제로서, 비닐트리에톡시실란, 알릴트리메톡시실란, 알릴트리에톡시실란, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란 등의 유기 관능성 알콕시실란 화합물, 그의 실록산 유도체, 특히 불소 함유 유기기로 치환된 쇄상 또는 삼차원 수지상의 실록산 유도체가 예시된다. 특히 적합한 접착성 향상제로서,
- [0149] (g1) 아미노기 함유 오가노알콕시실란과 에폭시기 함유 오가노알콕시실란의 반응 혼합물
- [0150] (g2) 1분자 중에 적어도 2개의 알콕시실릴기를 가지며, 또한 그들 실릴기 사이에 규소-산소 결합 이외의 결합이 포함되어 있는 유기 화합물,
- [0151] (g3) 일반식:
- [0152] $R_n^a Si(OR^b)_{4-n}$
- [0153] (식 중, R^a 는 1가의 에폭시기 함유 유기기이고, R^b 는 탄소 원자수 1~6의 알킬기 또는 수소 원자이다. n 은 1~3의 범위의 수이다)
- [0154] 으로 표시되는 에폭시기 함유 실란 또는 그의 부분 가수 분해 축합물
- [0155] (g4) 알콕시실란(에폭시기 함유 유기기를 갖는 것을 제외한다) 또는 그의 부분 가수 분해 축합물
- [0156] 등으로부터 선택되는 1종류 또는 2종류 이상이 예시된다.
- [0157] 그 외 임의 성분으로서, 본 발명의 기술적 효과를 해치지 않는 한, 폐놀계, 퀴논계, 아민계, 인계, 포스파이트계, 황계, 티오에테르계 등의 산화방지제; 트리아졸계, 벤조페논계 등의 광안정제; 인산 에스테르계, 할로겐계, 인계, 안티몬계 등의 난연제; 양이온계 계면활성제, 음이온계 계면활성제, 비이온계 계면활성제 등으로 이루어지는 1종류 이상의 대전 방지제; 염료, 안료 등이 예시된다.
- [0158] 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 경화성 오가노폴리실록산 및 경화 반응의 촉진 성분, 적합하게는 상기 성분 (A)~(C)를 균일하게 혼합함으로써, 또한 필요에 따라 그 외 임의의 성분을 첨가하고 균일하게 혼합함으로써 조제할 수 있다. 각종 교반기 혹은 혼련기를 이용하여 상온에서 혼합하면 무방하나, 혼합 중에 경화하지 않는 성분의 조합이라면 가열하에서 혼합할 수도 있다.
- [0159] 혼합 중에 경화하지 않으면, 각 성분의 배합 순서는 특별히 제한되는 것은 아니다. 혼합 후 즉시 사용하지 않을 때는, 가교제(예를 들어, 성분 (B))와 경화 반응의 촉진 성분(예를 들어, 성분 (C))이 동일한 용기 내에 존재하지 않도록 복수의 용기로 나누어 보관해 두고, 사용 직전에 전체 용기 내의 성분을 혼합할 수도 있다.
- [0160] 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 경화 반응은 탈수, 탈알코올 등의 축합 반응을 기초로 하는 경화 반응에서는 실온에서 진행하지만, 오가노폴리실록산 경화물 필름을 공업적 생산 프로세스로 생산하는 경우, 통상, 당해 조성물을 가열 혹은 활성 에너지선에 노출시킴으로써 달성된다. 열에 의한 경화 반응 온도는 특별히 한정되지 않으나, 50°C 이상 200°C 이하가 바람직하고, 60°C 이상 200°C 이하가 보다 바람직하고, 80°C 이상 180°C 이하가 더욱더 바람직하다. 또한, 경화 반응에 들이는 시간은 상기 (A), (B), (C) 성분의 구조에 의존하지만, 통상 1초 이상 3시간 이하이다. 일반적으로는, 90~180°C의 범위 내에서 10초~30분 유지함으로써 경화물을 얻을 수 있다. 또한, 필름의 제조법 및 압연 가공 등에 대해서는 후술한다.
- [0161] 경화 반응에 사용될 수 있는 활성 에너지선으로서는, 자외선, 전자선 및 방사선 등을 들 수 있는데, 실용성의 점에서 자외선이 바람직하다. 자외선에 의해 경화 반응을 수행하는 경우는, 사용하는 자외선에 대해 높은 활성을 갖는 하이드로실릴화 반응용 촉매, 예를 들어 비스(2,4-펜탄디오나토) 백금 착체, (메틸사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금 착체를 첨가하는 것이 바람직하다. 자외선 발생원으로서는 고압 수은 램프, 중압 수은 램프, Xe-Hg 램프 및 딥 UV 램프 등이 적합하며, 이 때의 조사량은 100~8,000 mJ/cm²가 바람직하다.
- [0162] [오가노폴리실록산 경화물 필름의 제조 방법]
- [0163] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 표면 및 내부에 미소한 결함을 거의 포함하지 않는 고정밀도의 기능성 필름이며, 거시적으로는 실질적으로 요철을 갖지 않는 평坦한 필름이다. 이러한 오가노폴리실록산 경화물 필름은 공기 중의 부유 먼지 등의 표면 및 내부에의 부착을 피하기 위해, 클린 투에서 제조하는 것이 바람직하다.

- [0164] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 위에서 설명한 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼워 넣은 상태에서 경화함으로써 적합하게 얻을 수 있다. 마찬가지로, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 위에서 설명한 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 도공하고, 압연 가공 후에 가열 등에 의해 필름상으로 경화시킴으로써 적합하게 실현 가능하다. 또한, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름 그 자체를 더 압연 가공할 수도 있고, 박리층을 마련한 세퍼레이터 사이에서 도공 내지 경화된 필름을 더 압연 가공할 수도 있다. 이하, 이들의 구조 및 제조 방법에 대하여 설명한다.
- [0165] 본 발명에 따른 오가노폴리실록산 경화물 필름은 상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상 기재, 테이프상 기재 또는 시트상 기재(이하, 「필름상 기재」라고 한다)에 도공한 후, 그 경화 메커니즘에 대응한 방법으로 경화시킴으로써, 상기 기재의 표면에 형성할 수 있다.
- [0166] 상기 기재는 특히 박리면을 갖는 평면상의 기재이며, 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 박리면 위에 도포되는 것이 바람직하다. 이러한 기재는 세퍼레이터로서 기능하므로, 기재 위에 적층된 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 약간의 힘으로 원활하게 박리층으로부터 떼어 내 목적으로 하는 전자 기기 등에 부착 내지 접착 시킬 수 있기 때문에, 취급 작업성이 우수하다는 이점을 갖는다.
- [0167] 기재의 종류로서, 판지, 골판지, 클레이 코트지, 폴리올레핀 라미네이트지, 특히 폴리에틸렌 라미네이트지, 합성 수지 필름·시트, 천연 섬유포, 합성 섬유포, 인공 괴혁포, 금속박이 예시된다. 특히, 합성 수지 필름·시트가 바람직하며, 합성 수지로서, 폴리이미드, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 폴리염화비닐, 폴리염화비닐리덴, 폴리카보네이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 나일론이 예시된다. 특히 내열성이 요구되는 경우에는, 폴리이미드, 폴리에테르 에테르 케톤, 폴리에틸렌 나프탈레이트(PEN), 액정 폴리아릴레이트, 폴리아미드 이미드, 폴리에테르설폰 등의 내열성 합성 수지의 필름이 적합하다. 한편, 표시 디바이스 등 시인성이 요구되는 용도에서는, 투명 기재, 구체적으로는 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 폴리염화비닐리덴, 폴리카보네이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, PEN 등의 투명 재료가 아주 알맞다.
- [0168] 상기 기재는 필름상 또는 시트상인 것이 바람직하다. 그 두께는 특별히 제한되지 않으나, 통상 5~300 μm 정도이다. 또한, 지지 필름과 감압 접착층의 밀착성을 향상시키기 위해, 프라이머 처리, 코로나 처리, 애칭 처리, 플라즈마 처리된 지지 필름을 이용할 수도 있다. 또한, 필름상 기재의 감압 접착층면과 반대면에는, 흡집방지, 오염 방지, 지문 부착 방지, 눈부심, 반사 방지, 대전 방지 등의 처리 등의 표면 처리된 것일 수도 있다.
- [0169] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 부여하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재에 도공하는 방법으로서는, 그라비아 코팅, 오프셋 코팅, 오프셋 그라비아, 오프셋 전사 롤 코터 등을 이용한 롤 코팅, 리버스 롤 코팅, 에어나이프 코팅, 커튼 플로 코터(curtain flow coater) 등을 이용한 커튼 코팅, 콤마 코팅, 메이어바, 그 외 공자의 경화층을 형성하는 목적으로 사용되는 방법을 제한없이 사용할 수 있다.
- [0170] 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름이 접착제층(감압 접착제층을 포함한다) 또는 전기 활성 필름(유전층 등의 유전성 필름 포함한다)인 경우, 당해 경화층은 박리 코팅능을 갖는 박리층을 구비한 필름 기재 위에, 박리 가능한 상태로 적층한 적층체 필름으로서 취급하는 것이 바람직하다.
- [0171] [압연 가공을 이용한 제법]
- [0172] 본 발명의 고유전성 필름은 상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 반응 전 혹은 경화 반응 후에 압연 가공을 수행함으로써 얻는 것이 특히 바람직하다. 압연 가공은 경화 내지 반경화 상태의 오가노폴리실록산 경화물에 대해 수행할 수도 있지만, 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 압연 가공한 후, 가열 등에 의해 경화시켜 평탄하면서 균일한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 것이 바람직하다. 또한, 압연 가공을 수행하는 경우, 후술하는 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도공한 적층체 전체를 압연 가공한 후, 가열 등에 의해 경화시켜 평탄하면서 균일한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 것이 특히 바람직하다.
- [0173] 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하는 양은, 경화 후의 필름의 평균 두께가 1~200 μm 이며, 압연 가공이 가능한 두께인 것이 필요하다.
- [0174] 압연 가공은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하고, 롤 압연 등의 공자의 압연 방법을 이용하여 수행할 수 있다. 또한, 경화 내지 반경화 상태의 오가노폴리실록산 경화물을 필요에 따라 대략 시트상으로 성형한 후, 압연 가공을 수행할 수도 있다. 압연 가공 후의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 필름의 평균 두께가 1~200 μm 의 범위인 것이 필요하다. 특히, 롤 압연의 경우, 롤 사이의 틈을 조정함으로써 소망 두께의 오가

노폴리실록산 경화물 필름을 설계할 수 있는 이점이 있으며, 예를 들어 평균 두께가 1~200 μm 인 범위에서 를 사이의 틈을 일정하게 조정하여 압연함으로써, 평탄성이 우수하며, 또한 상기 필름 표면 및 필름 내부에서의 결함이 매우 적은 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻을 수 있다. 보다 상세하게는, 를 압연의 경우, 목적으로 하는 오가노폴리실록산 경화물 필름의 평균 두께에 대해 2.0~4.0배의 범위에서 를 사이의 틈이 조정되어 있는 것이 특히 바람직하다. 예를 들어, 50 μm 의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 경우, 박리층의 두께가 100~200 μm 의 범위인 것이 특히 바람직하다. 당해 간극이 상기 상한보다 넓으면, 특히 기포에서 유래하는 공극(보이드)이 충분히 해소되지 않아, 필름 표면 및 내부에서의 결함이 증가하는 경우가 있다.

[0175] 상기한 바와 같이, 압연 가공은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하고, 미경화 상태에서 수행하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 원료인 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 적합하게는 박리층을 구비한 시트상 기재 위에 도포하고, 를 압연 등으로 압연 가공한 후에, 평탄화된 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 가열 등에 의해 경화시켜 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻을 수 있다.

[0176] 압연 가공 전의 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 기재에의 도공 방법, 기재 등은 상기와 동일하며, 상기 프라이머층 및 평탄화층을 갖는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물에 대해 추가로 를 압연 등의 압연 가공을 수행할 수도 있다.

[0177] [박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에서의 경화를 이용한 제법]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 도포면에 대해 박리층을 갖는 기재를 적용하고, 미경화의 도포면을 각각의 기재(세퍼레이터) 사이에 끼워 넣고, 물리적으로 균일화된 평탄화층을 형성함으로써 적합하게 얻을 수 있다. 또한, 상기 평탄화층의 형성에 있어서는, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 도포되어 이루어지는 적층체를 상기 를 압연 등의 공지의 압연 방법을 이용해 압연 가공하는 것이 바람직하다. 특히, 세퍼레이터 위의 박리층의 두께가, 목적으로 하는 오가노폴리실록산 경화물 필름의 평균 두께에 대해 0.1~1.5배의 범위인 것이 특히 바람직하다. 예를 들어, 50 μm 의 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 경우, 박리층의 두께가 5~75 μm 의 범위인 것이 특히 바람직하다. 당해 박리층이 상기 상한보다 두꺼우면, 필름에 대한 박리력이 크고, 특히 기포에서 유래하는 공극(보이드)이 발생하기 쉬워져 필름 표면 및 내부에서의 결함이 증가하는 경우가 있다.

[0179] [오가노폴리실록산 경화물 필름의 사용]

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 그 필름 표면 및 필름 내부에 미세한 결함(기포에서 유래하는 공극(보이드), 티끌 또는 부유 먼지에 의한 오염 부위)이 매우 적기 때문에, 당해 필름에 고전압을 인가하여 통전한 경우에 당해 결함에서의 절연 파괴가 발생하기 어려워, 필름 전체적으로 높은 절연 파괴 강도를 실현할 수 있는 동시에, 투명성 및 평탄성에 더하여 소망에 따라 접착성/접착성을 실현할 수 있다. 때문에, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 전자 재료, 표시 장치용 부재 또는 트랜스듀서용 부재(센서, 스피커, 액추에이터 및 제너레이터용을 포함한다)로서 유용하며, 특히 접착제/접착제 필름, 전기 활성 필름(고유전성 필름을 포함한다)으로서, 전자 부품 또는 표시 장치의 부재로서 적합하게 사용 가능하다. 특히, 투명한 접착제 필름 또는 전기 활성 필름은 표시 패널 또는 디스플레이용 부재로서 적합하며, 화면을 손가락 끝 등으로 접촉함으로써 기기, 특히 전자 기기를 조작 가능한 소위 터치 패널 용도로 특히 유용하다. 마찬가지로, 절연 파괴 강도가 높은 전기 활성 필름은 단층 또는 적층 필름의 형태로 하여 액추에이터 등의 트랜스듀서용 부재에 적합하며, 고전압에서 기동하는 액추에이터 용도로 특히 유용하다.

[0181] 산업상 이용 가능성

본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름의 용도로서는, 상기에 개시한 외에 아무런 제약이 없으며, 텔레비전 수상기, 컴퓨터용 모니터, 휴대 정보 단말용 모니터, 감시용 모니터, 비디오 카메라, 디지털 카메라, 휴대 전화, 휴대 정보 단말, 자동차 등의 계기반용 디스플레이, 다양한 설비·장치·기기의 계기반용 디스플레이, 자동 발매기, 현금 자동 입출금기 등, 문자나 기호, 화상을 표시하기 위한 다양한 평판 디스플레이(FPD)에 사용할 수 있다. 장치로서는, CRT 디스플레이, 액정 디스플레이, 플라즈마 디스플레이, 유기 EL 디스플레이, 무기 EL 디스플레이, LED 디스플레이, 표면 전해 디스플레이(SED), 전계 방출형 디스플레이(FED) 등의 표시 장치나, 이들을 이용한 터치 패널에 응용이 가능하다. 마찬가지로, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 절연 파괴 강도를 포함하는 전기적 특성 및 기계적 특성이 우수한 필름상 또는 시트상 부재이며, 필요에 따라 높은 비유전율 및 기계적 강도(구체적으로는, 인장 강도, 인열 강도, 신율 등)를 갖는다. 때문에, 당해 오가노폴리실록산 경화물 필름은 전자 재료, 표시 장치용 부재 또는 트랜스듀서용 부재(센서, 스피커, 액추에이터 및 제너레이터

용을 포함한다)로서 사용할 수 있으며, 특히 트랜스듀서를 구성하는 전기 활성 필름(유전층 또는 전극층)으로서 적합하게 이용할 수 있다. 그 구체적인 사용 방법은 유전층 또는 감압 접착층의 공지의 사용 방법을 특별히 제한없이 이용할 수 있다.

[0183] 실시예

[0184] 이하, 본 발명에 관하여 실시예를 들어 설명하지만, 본 발명이 이들에 의해 한정되는 것은 아니다. 이하에 나타내는 실시예 및 비교예에서는 하기 화합물을 이용했다.

[0185] · 성분 (a1): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 폴리머(비닐기의 함유량(질량%)이 0.09, 실록산 중합도 835)

[0186] · 성분 (a2): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 폴리머(비닐기의 함유량(중량%)이 0.22, 실록산 중합도 약 335)

[0187] · 성분 (a3): $\text{CH}_2=\text{CH}(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{0.5}$ 로 표시되는 비닐디메틸실록시 단위(M^{vi} 단위), $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{0.5}$ 로 표시되는 트리메틸 실록시 단위(M 단위) 및

[0188] $\text{SiO}_{2.0}$ 으로 표시되는 실록시 단위(Q 단위)로 이루어지고, 비닐기의 함유량(질량%)이 2.40인 실록산 레진

[0189] · 성분 (a4): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3,3,3-트리플루오로프로필메틸, 디메틸실록산 코폴리머(비닐기 함유량: 0.26질량%, 실록산 중합도 193)

[0190] · 성분 (a5): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3,3,3-트리플루오로프로필메틸, 디메틸실록산 코폴리머(비닐기 함유량: 0.21질량%, 실록산 중합도 246)

[0191] · 성분 (b): 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 · 메틸하이드로겐실록산 코폴리머(규소 결합 수소의 함유량(중량%)이 약 0.78)

[0192] · 성분 (b2): 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 · 3,3,3-트리플루오로프로필메틸실록산 · 메틸하이드로겐실록산 코폴리머(규소 결합 수소의 함유량(질량%)이 약 0.22)

[0193] · 성분 (b3): 양말단 디메틸하이드로실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 · 3,3,3-트리플루오로프로필메틸실록산 코폴리머(규소 결합 수소의 함유량(질량%)이 약 0.015)

[0194] · 성분 (c): 백금-1,3-디비닐 1,1,3,3-테트라메틸디실록산 착체의 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄 디메틸실록산 폴리머 용액(백금 농도로 약 0.6중량%)

[0195] · 성분 (d): 헥사메틸디실라잔 처리 흡드 실리카(제품명: RDX200, 에보닉(Evonik)사 제품)

[0196] · 성분 (d2): 헥사메틸디실라잔과 1,3-비스(3,3,3-트리플루오로프로필)-1,1,3,3-테트라메틸디실라잔으로 처리한 흡드 실리카(처리 전 제품명: 에어로질 200)

[0197] · 성분 (d3): 헥사메틸디실라잔과 1,3-비스(3,3,3-트리플루오로프로필)-1,1,3,3-테트라메틸디실라잔으로 처리한 흡드 실리카(처리 전 제품명: 에어로질 50)

[0198] · 성분 (e): 접착 향상제(=양말단 하이드록시디메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산-메틸비닐실록산 코폴리머와 글리시독시프로필트리메톡시실란의 반응물(비닐기의 함유량(질량%)이 약 5.6))

[0199] <하이드로실릴화 반응 억제제>

[0200] · 성분 (f): 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라비닐-사이클로테트라실록산

[0201] [실시예 1]

[0202] 액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물 1로서, 상기 성분 (a1)을 66.48중량%, 성분 (a2)를 15.41중량%, 성분 (a3)을 5.08중량%, 성분 (b)를 2.46중량%, 성분 (c)를 0.21중량%, 성분 (d)를 9.18중량%, 성분 (e)를 1.18중량%가 되도록 배합하여 조제했다. 그 때, 조성물 중의 비닐기 1몰당, 성분 (b)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 1.6몰이 되는 양으로 사용했다.

[0203] 또한, 상기 액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물 1을, 클린 룸에서 두께 50 μm 의 박리층을 구비한 폴리에틸렌 테레프탈레이트 필름의 사이에 도포하여 끼우고, 클리어런스를 150 μm 로 조정한 스테인리스로 제조된 2개의

롤에 통과시켜 압연 가공한 후, 95°C의 열풍 순환식 오븐에서 약 3분간 가열함으로써 경화시켰다. 얻어진 경화물의 두께는 50 μm 였으며, 평탄화된 필름상 경화물(=오가노폴리실록산 경화물 필름 1)을 얻었다.

[0204] [실시예 2]

액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물로서, 상기 성분 (a4)를 65.44중량%, 성분 (a5)를 2.63중량%, 성분 (b2)를 5.21중량%, 성분 (b3)을 5.21중량%, 성분 (c)를 0.10중량%, 성분 (d2)를 18.80중량%, 성분 (d3)을 2.33중량%, 성분 (f)를 0.28중량%가 되도록 배합하여 조제했다. 그 때, 조성물 중의 비닐기 1몰당, 성분 (b)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 1.2몰이 되는 양으로 사용했다.

또한, 상기 액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물 2를, 클린한 조건하, 245 μm 두께의 박리층을 구비한 2매의 폴리에틸렌 테레프탈레이트 필름 사이에 도포하여 끼우고, 클리어렌스를 590 μm 로 조정한 스테인리스로 제조된 2개 롤에 통과시켜 압연 가공한 후, 110°C의 열풍 순환식 오븐에서 약 60분간 가열함으로써 경화시켰다. 얻어진 경화물의 두께는 100 μm 였으며, 평탄화된 필름상 경화물(=오가노폴리실록산 경화물 필름 2)을 얻었다.

[0207] [비교예 1]

실시예 1과 동일하게 액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물 1을 조제하고, 클린 룸 밖에서, 두께 100 μm 의 박리층을 구비한 폴리에틸렌 테레프탈레이트 필름 사이에 당해 조성물을 도포하여 끼우고, 클리어レン스를 250 μm 로 조정한 스테인리스로 제조된 2개 롤에 통과시켜 압연 가공한 후, 100°C의 열풍 순환식 오븐에서 약 30분간 가열함으로써 경화시켰다. 얻어진 경화물의 두께는 50 μm 였으며, 평탄화된 필름상 경화물(=오가노폴리실록산 경화물 필름 C1)을 얻었다.

[0209] [평가]

이하의 방법으로, 실시예 및 비교예에서의 오가노폴리실록산 경화물 필름의 절연 파괴 강도 및 필름 표면/필름 내부의 결함수를 측정하여, 결과를 표 1에 나타냈다.

[0211] <절연 파괴 강도의 측정>

[0212] 전기 절연유 파괴 전압 시험 장치 소肯덴키 가부시키가이샤 제품 PORTATEST 100A-2를 이용하여 측정했다. 그 때, 경화성 오가노폴리실록산 조성물 1을 사용한 실시예 1 및 비교예 1 모두 합계 40개소를 측정하여, 그 평균값과 표준 편차를 표 1에 나타냈다. 또한, 경화성 오가노폴리실록산 조성물 2를 이용한 실시예 2에 관해서는 합계 16개소를 측정하여, 그 평균값과 표준 편차를 표 1에 나타냈다.

[0213] <결함수의 측정>

[0214] 가부시키가이샤 휴테크사 제품 MaxEye.Impact를 이용하여 측정했다. 광원에는 백색 LED를 사용했다. 렌즈는 Nikon F4.0/f95, 라인 스피드를 10 m/min , 폭 분해능 0.01 mm/pixel , 흐름 분해능 0.01 mm/scan 의 조건으로 수행했다.

[0215] · 내부 결함 측정에는 필름 하부부터 투과 조건으로 수행했다. 그 때, 광원과 필름의 투광 거리는 100 mm 로 하였으며, 필름과 카메라의 수광 거리는 367 mm 로 했다.

[0216] · 표면 결함 측정에는 필름 표면 비스듬히 상부부터 반사 조건으로 각각 광원을 조사하여 측정을 수행했다. 그 때, 투광 거리와 수광 거리는 내부 결함 측정과 동일하게 하였으며, 투광각과 수광각을 각각 60°로 했다.

[0217] 내부 결함 및 표면 결함 모두 베이스 레벨을 256으로 설정하고, 임계값을 내부 결함은 35로, 표면 결함은 40으로 하여 측정했다. 상기에서 제작한 필름의 면 내 15 $\text{mm} \times 15 \text{ mm}$ 의 결함수를 이하에 나타낸다.

표 1

필름	내부 결함수 / 개	표면 결함수 / 개	절연 파괴 강도 / V / μm	표준 편차 / V / μm
실시예 1	13	0	73.9	4.4
실시예 2	18	0	64.0	3.0
비교예 1	98	6	59.4	13.5

[0218]

[0219] 표 1에 명시하는 바와 같이, (i) 클린 룸에서, (ii) 50 μm 의 얇은 박리층을 갖는 기재 필름 사이에 경화성 오

가노폴리실록산 조성물을 도포하여 끼워 넣고, (iii) 클리어런스를 조정한 뒤 사이에서 압연 가공을 수행한 후에 가열 경화시킨 실시예 1에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름 1은, 통상의 방법(비교예)으로 얻은 필름 C1에 비해 필름 표면 및 내부의 결함수가 매우 적고, 그 절연 파괴 강도 및 불균일도 현저하게 개선되어 있었다. 양 필름은 동일한 경화성 오가노폴리실록산 조성물에서 유래하고, 평균 두께도 50 μm (공통)이므로, 이들의 전기적 성질 등의 개선은 실시예에서의 필름 표면 및 내부의 결함수가 적은 것에서 기인하는 것으로 생각된다.

[0220] 또한, 실시예 2에 관한 유전성 관능기를 갖는 오가노폴리실록산 경화물 필름 2에 관해서도, 필름 표면 및 내부의 결함수가 매우 적고, 그 절연 파괴 강도 및 그 불균일도 작았다. 따라서, 필름 표면 및 내부의 결함수는 유전성 관능기를 갖는 오가노폴리실록산 경화물 필름에 대해서도 전기적 성질 등에 크게 영향을 미치는 것으로 생각된다.