(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0076591
(43) 공개일자 2025년05월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/04 (2006.01) *B32B 27/18* (2006.01)
B32B 27/28 (2006.01) *C08G 77/00* (2006.01)
C08G 77/12 (2006.01) *C08G 77/20* (2006.01)
C08K 3/04 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08L 83/04 (2013.01)
B32B 27/18 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2025-7013395
(22) 출원일자(국제) 2023년09월26일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2025년04월23일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2023/035045
(87) 국제공개번호 WO 2024/071152
국제공개일자 2024년04월04일
(30) 우선권주장
JP-P-2022-156904 2022년09월29일 일본(JP)

(71) 출원인
다우 도레이 캄파니 리미티드
일본 1408617 도쿄 시나가와-구 히가시-시나가와 2-초메 2-24
(72) 발명자
후쿠이 히로시
일본 2990108 치바 이치하라시 치구사카이간 2-2 다우 도레이 캄파니 리미티드 씨/오
(74) 대리인
장훈

전체 청구항 수 : 총 14 항

(54) 발명의 명칭 **전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물, 전극층을 구비한 적층체, 그의 용도 및 그의 제조 방법**

(57) 요 약

[과제] 실질적으로 무용매 프로세스에서 이용할 수 있으며, 전극 프린트 공정(프린팅)을 포함하는 다양한 공정에 적용 가능하며, 또한 얻어지는 전극층에서 용매 프리를 실현할 수 있고, 또한 유전층에 대한 접착성, 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 트랜스듀서에 이용한 경우에도 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어렵고, 실용상 충분한 점탄 특성을 구비하는 전극층을 형성할 수 있는 전극층 형성성 조성물, 적층체, 그의 용도 및 제조 방법을 제공한다. [해결 수단] 경화 반응성 오가노폴리실록산 및 (E) 도전성 미립자를 포함하여 이루어지며, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량의 합이 0.1 질량% 미만인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물 및 그의 사용.

(52) CPC특허분류
B32B 27/283 (2013.01)
C08G 77/12 (2013.01)
C08G 77/20 (2013.01)
C08G 77/70 (2013.01)
C08K 3/04 (2013.01)
C08K 3/041 (2017.05)
C08K 2201/001 (2013.01)
C08L 2203/20 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

경화 반응성 오가노폴리실록산, 및 (E) 도전성 미립자

를 포함하여 이루어지며, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량의 합이 0.1 질량% 미만인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량의 합이 10 ppm 미만인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 3

제1항에 있어서, 경화 반응성 오가노폴리실록산의 적어도 일부가 하이드로실릴화 반응 경화성 오가노폴리실록산이며,

(A1) 적어도 분자쇄의 양말단에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성의 관능기를 갖는 직쇄상 오가노폴리실록산,

(C) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로겐폴리실록산, 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~1.5몰이 되는 량, 및

(D) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매

를 함유하는, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 4

제1항에 있어서, 도전성 미립자가 카본 나노튜브(CNT), 도전성 카본 블랙, 그래파이트 및 기상 성장 카본(VGCF)으로부터 선택되는 적어도 1종의 도전성 카본을 포함하는 미립자인 것을 특징으로 하는, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 5

제1항에 있어서, 도전성 미립자가 단층 카본 나노튜브(SWCNT)를 포함하는 미립자인 것을 특징으로 하는, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서, 조성물 전체에 대한 도전성 미립자의 부피 분율이 0.005~0.50의 범위이며, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 부피 저항률이 10^{2} Ω·cm 이하인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 7

제3항에 있어서, 성분 (C)의 적어도 일부가 (C1) 분자쇄의 양말단에만 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로겐폴리실록산이며, 또한 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 성분 (C) 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~1.00몰이 되는 량인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 8

제3항에 있어서, 성분 (D)의 적어도 일부가 (D1) 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자인, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물.

청구항 9

서로 조성이 상이한 오가노폴리실록산 경화물 필름을 2층 이상 적층한 구조를 가지며, 또한,

(L1) 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름의 적어도 한쪽 면에, (L2) 제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 기재된 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어진 전극층이 적층된 구조를 갖는, 적층체.

청구항 10

제9항에 기재된 적층체로 이루어지는 트랜스듀서용 부재.

청구항 11

제9항에 기재된 적층체를 포함하는, 트랜스듀서.

청구항 12

제9항에 기재된 적층체를 포함하는, 전자 부품 또는 표시 장치.

청구항 13

공정 I: 경화에 의해 유전층을 부여하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 경화시킴으로써, 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 공정,

공정 II: 공정 I과 동시 또는 공정 I 후, 공정 I에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름 상 또는 그의 전구체 상에, 제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 기재된 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도포하여, 전극층을 형성하는 공정

을 구비하는, 제9항에 기재된 적층체의 제조 방법.

청구항 14

제13항에 기재된 적층체의 제조 방법을 포함하는, 트랜스듀서용 부재에서의 전극층의 형성 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 실질적으로 용제의 사용이 불필요하고, 용매 프리의 조성 설계 및 프로세스 설계에 이용 가능하며, 경화에 의해 양호한 도전성과 유전층에 대한 추종성을 구비한 전극층을 형성 가능한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물, 이를 사용하여 형성된 전극층을 구비하는 적층체, 그의 용도, 그의 제조 방법 및 제조 장치에 관한 것이다.

배 경 기 술

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

[0003] 한편, 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서, 액추에이터 등의 트랜스듀서 재료로서 오가노폴리실록산 경화물 필름을 사용하는 경우, 유전층으로서의 전기 활성 필름 상에는 전극층을 마련할 필요가 있다. 예를 들어, 비특허문헌 1, 2에는, 유연성이 우수한 실리콘 엘라스토머 매트릭스 중에 도전성 충전제를 첨가한 전극층을 형성함으로써, 유전층에 대한 추종성이 우수한 전극층을 형성하는 것이 제안되어 있다.

[0004] 그러나, 전기 활성 필름인 오가노폴리실록산 경화물 필름 상에 도전성 충전제를 첨가한 전극층을 형성하고자 하는 경우, 특히 유전층의 변위(예를 들어, 액추에이터 등의 신축)에 수반하여, 유전층과 전극층의 계면 박리가 발생하고, 통전 불량 및 액추에이터로서의 신뢰성 저하로 이어지는 경우가 있다. 본건 출원인들은 특허문헌 1

등에서, 전기 활성 필름인 오가노폴리실록산 경화물 필름 상에 도전성 충전제를 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도포함으로써, 상기 전기 활성 필름(=유전층) 상에 오가노폴리실록산 경화물 필름인 전극층을 형성하는 것, 및 액추에이터 등의 트랜스듀서 재료로서 전극면의 추종성을 향상시키기 위해, 계면에서의 화학 결합을 형성시키기 위해 공통되는 경화 반응에 관여하는 관능기를 유전층/전극층 형성성 오가노폴리실록산 조성물에 사용한 적층체(특허문헌 2)를 제안하고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) 특허문헌 1: 국제 특허공개공보 제WO2014/105959호

(특허문헌 0002) 특허문헌 2: 국제 특허공개공보 제WO2022/004462호

비특허문헌

[0006] (비특허문헌 0001) 비특허문헌 1: Kujawski, M.; Pearse, J.D.; Smela, E.Carbon 2010, 48, 2409-2417.

(비특허문헌 0002) 비특허문헌 2: Rosset, S.; Shea, H.R.Appl.Phys.A 2013, 110, 281-307.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 그러나, 발명자들은 이들 공정에서의 잠재적인 과제를 밝혀냈다. 즉, 공지의 전극 형성성 조성물은 모두 액상 내지 용매를 사용하는 도공 프로세스에 적용되는 것으로, 최근의 환경 부하 저감 및 액추에이터 등의 성능 향상을 목적으로 한 무용제 공정이나 전극 프린트 공정에는 적용할 수 없어, 적용 가능한 공정이 제한되기 때문에 그의 공업적 전개에 있어서 잠재적인 과제를 안고 있다. 또한, 경화에 의해 얻어지는 전극층에 대한 유기 용제의 폭로/잔류에 의한 절연 파괴 등의 특성 저하, 또는 성능 저하가 염려된다.

[0008] 다른 한편, 종래의 전극 형성성 조성물은 용매를 사용하는 도공 프로세스에 의해 적용되기 때문에, 형성되는 전극의 균일성, 실용상 허용 가능한 기재에 대한 추종성 등은 어느 정도 담보된다. 그러나, 전극 형성성 조성물로서 무용매 내지 비유동성의 형태를 취한 경우, 가령 유전층 상에 전극층을 배치하였다고 하더라도, 도공 시에 불균일한 상태가 되거나 얻어지는 전극층에 충분한 점탄성을 실현할 수 없게 되며, 특히 물리적 변위가 큰 트랜스듀서에 적용한 경우, 전극으로서의 형상을 유지하지 못하고, 그의 성능을 충분히 발휘할 수 없다는 것이 강하게 염려된다.

[0009] 본 발명은 상기 과제를 해결하기 위해 이루어진 것으로, 실질적으로 무용매 프로세스에서 이용할 수 있으며, 전극 프린트 공정(프린팅)을 포함하는 다양한 공정에 적용 가능하고, 핸들링성 및 보존 안정성이 우수하여, 가열 용융(핫멜트) 공정 등을 이용함으로써 균일하게 도포할 수 있고, 또한 얻어지는 전극층에서 용매 프리를 실현할 수 있고, 내열성, 내구성, 유전층에 대한 접착성, 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 액추에이터와 같이 고도의 물리적 변위를 전제로 한 트랜스듀서에 이용한 경우에도 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어렵고, 실용상 충분한 점탄 특성을 구비하는 전극층을 형성할 수 있는 전극층 형성성 조성물, 이를 사용하는 적층체, 그의 용도 및 제조 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0010] 예의 검토한 결과, 본 발명자들은 경화 반응성 오가노폴리실록산 및 (E) 도전성 미립자를 포함하여 이루어지며, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량이 0.1 질량% 미만인 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 의해, 상기 과제를 해결할 수 있다는 것을 밝혀내고 본 발명에 도달했다.

[0011] 과제 해결의 견지에서, 본 발명에 관한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 실질적으로 무용매형이며, 검출 가능한 량의 용매를 포함하지 않는 것이 바람직하다. 또한, 얻어지는 전극층의 점탄성 및 우수한 도전성을 실현할 수 있기 때문에, (E) 도전성 미립자가 카본 나노튜브(CNT), 도전성 카본 블랙, 그래파이트 및

기상 성장 카본(VGCF)으로부터 선택되는 적어도 1종의 도전성 카본을 포함하는 미립자인 것이 바람직하며, 단층 카본 나노튜브(SWCNT)와 같은 섬유상의 도전성 카본을 일정량 사용하는 것이 특히 바람직하다.

[0012] 또한, 상기 과제는 (L1) 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름의 적어도 한쪽 면에, (L2) 상기 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어진 전극층이 적층된 구조를 갖는 적층체 및 그의 용도(트랜스듀서용 부재, 트랜스듀서, 전자 부품 또는 표시 장치를 포함한다)에 의해 해결된다.

[0013] 추가로, 상기 과제는 공정 I: 경화에 의해 유전층을 부여하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 경화시킴으로써, 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 공정, 공정 II: 공정 I과 동시 또는 공정 I 후, 공정 I에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름 상 또는 그의 전구체 상에, 상기 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도포하여, 전극층을 형성하는 공정을 구비하는 적층체의 제조 방법 및 당해 제조법을 포함하는 트랜스듀서용 부재에서의 전극층의 형성 방법에 의해 해결된다.

발명의 효과

[0014] 본 발명에 따라, 실질적으로 무용매 프로세스에서 이용할 수 있으며, 프린팅을 포함하는 다양한 공정에 적용 가능하고, 조성물 자체가 비유동성~고체상이기 때문에 핸들링성 및 보존 안정성이 우수하고, 또한 얻어지는 전극이 내열성, 내구성, 유전층에 대한 접착성, 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 액추에이터와 같이 고도의 물리적 변위를 전제로 한 트랜스듀서에 이용한 경우에도 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어렵고, 실용상 충분한 점탄 특성을 구비하는 전극층을 형성할 수 있는 전극층 형성성 조성물, 이를 사용하는 적층체, 그의 용도 및 제조 방법을 제공할 수 있다. 특히, 본 발명에 따라, 무용매 프로세스를 포함하는 유연한 프로세스 설계가 가능하게 되며, 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름과의 계면 박리가 발생하기 어렵고, 통전 불량 및 액추에이터 등으로서의 용도에서의 신뢰성이 우수한 적층체 및 그의 제조 방법을 제공할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0015] [전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물]

[0016] 본 발명에 관한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물(이하, 「본 조성물」이라고 하는 경우가 있다)은 경화 반응성 오가노폴리실록산 및 (E) 도전성 미립자를 포함하여 이루어지며, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량이 0.1 질량% 미만인 것을 특징으로 한다.

[0017] [경화 반응성 오가노폴리실록산]

[0018] 본 조성물은 경화 반응에 의해 전극층인 경화물(2차 경화 반응성을 남긴 반경화물을 포함한다)을 형성하기 때문에, 경화 반응성 오가노폴리실록산을 포함한다. 경화 반응 경화 반응성 오가노폴리실록산의 경화 반응 메커니즘은 실록산 분자간의 가교 반응에 의해 경화 반응물을 생성하는 한 특별히 한정되지 않으며, 하이드로실릴화 반응 경화형(가열 경화 반응 및 광활성형 하이드로실릴화 반응 촉매에 의한 하이드로실릴화 반응을 포함한다), 축합 반응 경화형, 퍼옥사이드 경화형, 자외선 등의 고에너지선 경화형 및 라디칼 중합 반응 경화형으로부터 선택되는 1종류 이상을 선택할 수 있고, 각각의 경화 반응 메커니즘에 따라, 필요한 경화 반응성 관능기, 경화제(가교제 및 경화 반응 촉매를 포함한다)를 사용할 수 있다. 후술하는 바와 같이, 비교적 저온이면서도 단시간에 경화 반응을 수행할 수 있고, 또한 반응의 컨트롤이 용이하기 때문에, 경화 반응성 오가노폴리실록산의 적어도 일부는 하이드로실릴화 반응성인 것이 바람직하다.

[0019] [유기 용매의 함유량: 저용제형 내지 무용제형 조성물]

[0020] 본 발명에 관한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 본 발명에 관한 조성물에 대해서는, 헤드 스페이스 가스 크로마토그래피(GC) 등의 공지의 검출 수단을 사용하여, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량의 합이 0.1 질량%(=1000 ppm) 미만이고, 아주 적합하게는 0.05 질량%(=500 ppm) 미만이고, 보다 아주 적합하게는 0.01 질량%(=100 ppm) 미만이고, 특히 아주 적합하게는 유기 용제의 함유량의 합이 0.001 질량%(=10 ppm) 미만이다. 특히, 본 조성물은 헤드 스페이스 가스 크로마토그래피(GC)에 의해, 유기 용제의 함유량의 합이 10 ppm 미만, 5 ppm 미만인 것으로 평가되는 것이 바람직하며, 각 성분에 대하여 그의 함유량이 5 ppm 미만 또는 검출 한계 이하(0.1 ppm 미만)가 되는 것이 특히 바람직하다. 또한, 본 발명에서, 조성물 전체에 대한 유기 용제의 함유량의 합이 0.1 질량%(=1000 ppm) 미만인 경우에는 「저용제형」, 0.001 질량%(=10 ppm) 미만인 경우에는 실질적으로 용매 프리라고 평가할 수 있기 때문에 「무용제형」이라고 부르는 경우가 있다.

[0021] 본 발명에서의 유기 용매는 구체적으로는, 본 조성물 중의 전체 구성 성분 또는 일부 구성 성분을 용해시킬 수

있는 화합물이며, 그의 종류는 특별히 한정되지 않고, 비점이 80℃ 이상 200℃ 미만인 것이 바람직하게 사용된다. 보다 구체적으로는, i-프로필 알코올, t-부틸 알코올, 사이클로헥산올, 사이클로헥사논, 메틸 에틸 케톤, 메틸 이소부틸 케톤, 톨루엔, 크실렌, 메시틸렌, 1,4-디옥산, 디부틸 에테르, 아니솔, 4-메틸 아니솔, 벤젠, 에틸벤젠, 에톡시벤젠, 에틸렌 글리콜, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르, 에틸렌 글리콜 디에틸 에테르, 2-메톡시 에탄올(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)벤젠, 트리플루오로메틸클로로벤젠, 트리플루오로메틸플루오로벤젠, 하이드로플루오로 에테르 등의 할로겐계 용매를 들 수 있으며, 이들 중 1종류 또는 2종류 이상의 유기 용매의 함유량의 합이 0.1 질량%(=1000 ppm) 미만이고, 특히 벤젠, 톨루엔, 에틸벤젠 및 크실렌으로부터 선택되는 1종류 이상의 유기 용매의 함유량의 합이 0.1 질량%(=1000 ppm) 미만인 것이 실용상 특히 바람직하다.

[0022] 본 발명에 관한 조성물에 대하여, 상기 유기 용매를 그의 제조 공정에서 배합하지 않는 것 외에, 그의 원료 성분 등에 불가피적으로 혼입되는 유기 용제에 대해서도, 실용상 각 원료를 사전에 스트리핑 등 하여 그의 유기 용매의 함유량을 저감하거나 본 조성물을 고온에서 혼련함으로써, 휘발성 유기 용매의 함유량을 저감하여, 최종적인 유기 용매의 함유량의 합이 상기 하한 미만이 되도록 조제하는 것이 바람직하다.

[0023] 본 조성물은 유기 용매를 실질적으로 함유하지 않는 구성이며, 경화하여 얻어지는 전극층 중에 불소계 용매, 유기 용매 등이 잔류하지 않아, 전자 디바이스에 대한 잔존하는 유기 용매에서 유래하는 영향을 해소할 수 있다는 이점이 있기 때문에, 본 조성물은 환경 부하 저감 및 액추에이터 등의 성능 향상을 목적으로 한 무용제 공정이나 전극 프린트 공정에도 특별히 제한없이 적용할 수 있다.

[0024] 본 조성물은 실질적으로 용매 프리이기 때문에, 전극층 형성 시의 균일 도포성의 견지에서, 각 구성 성분의 점도 및 배합량을 조정하여, 특히 실온(25℃)에서 액상 또는 유동성의 조성물을 설계할 수도 있다. 예를 들어, 비교적 저점도 내지 유동성의 경화 반응성 오가노폴리실록산을 선택하며, 또한 (E) 도전성 미립자를 포함하는 그 외 성분의 배합량을, 조성물 전체가 실온(25℃)에서 액상 또는 유동성을 유지할 수 있는 범위(예를 들어, 회전 점도계 등을 이용하여 측정되는 조성물의 전체 점도가 1000 Pa·s 미만, 바람직하게는 100 Pa·s 미만, 보다 바람직하게는 50 Pa·s 미만이 되는 범위)로 조정함으로써, 본 발명에 관한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 조제할 수도 있다.

[0025] 다른 한편, 본 조성물은 적용되는 도포 프로세스, 도전성, 기계적 강도, 가공성 등의 전극층의 성능상의 요구, 및 경화에 의해 얻어지는 전극층의 점탄성의 온도 의존성에 관한 요구에 따라, (E) 도전성 미립자나 후술하는 오가노폴리실록산 수지, 고체 입자인 보강성 충전제 등을 일정량 이상 배합하여, 25℃에서 비유동성의 조성물로서 설계할 수도 있다. 예를 들어, 본 조성물은 저용매형 또는 무용매형인 동시에, 임의로 핫멜트형의 조성물로서 설계할 수 있다.

[0026] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 조성물은 25℃에서 비유동성(고체 또는 반고체)이면서도, 가열 용융성을 갖는다. 구체적으로는, 「가열 용융성을 갖는다」란 조성물 전체의 연화점이 50℃ 이상이고, 150℃에서 용융 점도(아주 적합하게는 1000 Pa·s 미만의 용융 점도)를 가지며, 유동하는 성질을 갖는 것을 말한다. 한편, 연화점이 200℃ 이상인 경우, 성형 용도 등의 일반적인 사용 온도 이상이기 때문에, 「가열 용융성은 갖지 않는다」라고 정의한다. 또한, 본문 중에서 가열 용융성을 「핫멜트성」이라고 하는 경우가 있다.

[0027] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 25℃에서 비유동성이다. 여기서, 비유동성이란, 무부하 상태에서 변형·유동하지 않는 것을 의미하며, 아주 적합하게는 펠렛 또는 타블렛 등으로 성형한 경우에, 25℃ 및 무부하 상태에서 변형·유동하지 않는 것이다. 이러한 비유동성은 예를 들어 25℃의 핫 플레이트 상에 성형한 본 조성물을 놓고, 무부하 또는 일정하게 가중시켜도 실질적으로 변형·유동하지 않는 것에 의해 평가 가능하다. 25℃에서 비유동성이면, 당해 온도에서의 형상 유지성이 양호하고, 표면 점착성이 낮기 때문이다.

[0028] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 본 조성물의 연화점은 100℃ 이하인 것이 바람직하다. 이러한 연화점은 핫 플레이트 상에서 100 그램중(gram weight)의 하중으로 위에서 10초간 계속해서 누르고, 하중을 없앤 후, 조성물의 변형량을 측정한 경우, 높이 방향의 변형량이 1 ㎜ 이상이 되는 온도를 의미한다.

[0029] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 점탄성 및 가열 용융성을 기초로 하는 균일 도포성의 견지에서, 전극 형성 전(특히, 경화 반응 전을 포함한다)의 조성물의 25℃에서의 전단

저장 탄성률(G'$_{25℃}$)에 대한 100℃에서의 전단 저장 탄성률(G'$_{100℃}$)의 값의 비(G'$_{100℃}$/G'$_{25℃}$)가 0.5 이하인 것이 바람직하며, 0.01~0.50의 범위가 보다 바람직하고, 0.02~0.45의 범위인 것이 특히 바람직하다. 또한, 전극 형성 후(특히, 경화 반응 후를 포함한다)의 조성물의 (G'$_{100℃}$/G'$_{25℃}$)의 값에 대해서도, 0.5 이하인 것이 바람직하며, 0.05~0.45의 범위이어도 좋고 또한 바람직하다. 한편, 전극 형성 전 또는 전극 형성 후(특히 경화 후)의 조성물의 (G'$_{100℃}$/G'$_{25℃}$)의 값이 0.5를 초과하면, 전극층의 점탄성의 온도 의존성이 작은 것을 의미하며, 가열에 의한 가공성의 향상이나 전극층의 형상 유지를 도모할 수 없는 등의 성능상의 문제가 발생하는 경우가 있다.

[0030] 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 점탄성은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 전극층을 형성한 후, 25℃에서의 전단 저장 탄성률(G'$_{25℃}$)이 1.0×10^{5}~7.5×10^{6} Pa의 범위일 수 있으며, 상기 온도 의존성에 더하여, 전극층에서의 실용상 충분한 점탄성을 실현 가능하다. 또한, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 점탄성의 견지에서, 전극 형성 전 또는 전극 형성 후(특히 경화 후)의, 25℃에서의 조성물의 tanδ의 값은 0.30 이상인 것이 특히 바람직하고, 특히 전극 형성 전의 조성물의 tanδ의 값이 0.35~0.99의 범위에 있는 것이 바람직하다. 본 조성물 또는 그의 경화물인 전극층의 점탄성이 상기 조건을 만족하는 경우, 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어렵고, 실용상 충분한 점탄 특성을 구비하는 전극층을 형성할 수 있기 때문이다.

[0031] [성분 (E)]

[0032] 성분 (E)는 도전성 미립자이며, 본 발명에 관한 조성물을 사용하여 형성되는 전극층에 도전성을 부여할 수 있는 것이면 특별히 제한은 없다. 또한, 도전성 미립자를 포함하는 전극층에 대해서는, 예를 들어 본건 출원인들의 국제 특허공개공보 제WO2014/105959호 등에 제안되어 있으나, 특히 카본 나노튜브(CNT)에 대해서는 전혀 개시되어 있지 않다.

[0033] 구체적으로는, 성분 (E)는 카본 나노튜브(CNT), 도전성 카본 블랙, 그래파이트(본 발명에서, 니켈 그래파이트와 같은 금속 등의 도전성 물질로 코팅된 그래파이트도 포함한다), 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 산화티타늄, 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; 이산화티타늄 입자 표면에 산화주석 및 인을 포함하는 도전성을 갖는 안료 등을 들 수 있으며, 또한 이들은 각종 표면 처리제로 처리한 것일 수도 있다. 이들은 각각 단독으로 또는 2종 이상 조합하여 사용할 수 있다. 또한, 이들 도전성 미립자를 조성물 중에 균일하게 분산하기 위해, 당해 조성물에 사용하는 성분 (A)~성분 (C)의 일부 또는 전부와 사전에 혼련하여, 컴파운드의 형태로 조성물 중에 배합할 수도 있다.

[0034] 추가로, 도전성 무기 미립자는 유리 섬유, 실리카 알루미나 섬유, 알루미나 섬유, 탄소 섬유 등의 섬유, 및 붕산 알루미늄 위스커, 티탄산칼륨 위스커 등의 침상의 보강재, 글라스 비즈, 탈크, 마이카, 그래파이트, 월라스토나이트, 돌로마이트 등의 무기 충전재의 표면에 금속 등의 도전성 물질을 피복한 것일 수도 있다.

[0035] 본 발명에 관한 조성물에서는, 성분 (E)의 적어도 일부가 카본 나노튜브(CNT), 도전성 카본 블랙, 그래파이트 및 기상 성장 카본(VGCF)으로부터 선택되는 적어도 1종의 도전성 카본을 포함하는 미립자인 것이 바람직하며, 이들 도전성 미립자는 오가노폴리실록산 조성물 중에서의 균일 분산성이 우수하고, 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 점탄성에 대해 우수한 온도 의존성을 부여하며, 또한 유전층에 대한 전극층의 추종성과 형상 유지성을 효과적으로 개선할 수 있는 이점이 있다.

[0036] 본 발명에 관한 조성물에 있어서, 성분 (E)의 적어도 일부 또는 전부가 카본 나노튜브(CNT)인 것이 바람직하다. CNT는 단층, 2층, 다층 중 어느 것일 수도 있으며, 그의 입자 지름도 특별히 제한되지 않으나, 특히 (E1) 단층 카본 나노튜브(SWCNT)를 포함하는 도전성 미립자가 아주 적합하다.

[0037] 단층 카본 나노튜브(SWCNT)는 일차원 재료로서 알려진 특별한 종류의 탄소 재료이다. 단층 카본 나노튜브는 그래핀의 시트로 이루어지며, 1원자분의 두께의 벽을 갖는 중공의 관을 형성하도록 감겨져 있다. 이러한 화학 구조 및 크기를 가짐으로써, 아세틸렌 블랙 등의 다른 도전성 카본 중에서도, 단층 카본 나노튜브는 특히 우수한 기계적, 전기적, 열적 및 광학적 특성을 나타내는 경향이 있으며, 특히 소량의 사용으로도 얻어지는 전극층의 부피 저항률을 효과적으로 저감하며, 또한 전극층의 파단 시 신율이나 인장 강도 등의 기계적 강도를 해치지 않

기 때문에, 전극층의 에너지 밀도의 향상을 포함하는 고성능화, 고강도화에 더하여, 유전층에 대한 전극층의 추종성과 형상 유지성을 특히 효과적으로 개선할 수 있다는 이점이 있다.

[0038] 단층 카본 나노튜브의 평균 외경은 특별히 제한되지 않으나, 2.5 nm 이하인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 1.0~2.5 nm이며, 더욱 바람직하게는 1.1~2.0 nm이고, 특히 바람직하게는 1.2~1.8 nm이다. 단층 카본 나노튜브의 평균 외경은 자외 가시 근적외 분광법(UV-Vis-NIR)에 의해 얻어진 단층 카본 나노튜브의 광 흡수 스펙트럼, 라만 스펙트럼 또는 투과형 전자 현미경(TEM) 화상으로부터 구할 수 있다.

[0039] 단층 카본 나노튜브의 평균 섬유 길이는 100 μm 미만인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 0.1~50 μm이며, 더욱 바람직하게는 0.5~20 μm이고, 특히 바람직하게는 1~10 μm이다. 단층 카본 나노튜브의 평균 섬유 길이는 원자간힘 현미경(AFM)을 이용하여 단층 카본 나노튜브의 AFM 화상을 얻고, 또는 투과형 전자 현미경(TEM)을 이용하여 단층 카본 나노튜브의 TEM 화상을 얻고, 각 단층 카본 나노튜브의 길이를 측정하여, 길이의 합계값을, 측정한 단층 카본 나노튜브의 개수로 나눔으로써 구할 수 있다.

[0040] 단층 카본 나노튜브의 라만 분광 분석(파장 532 nm)에 의해 측정되는 G/D비는 2 이상인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 2~250이며, 더욱 바람직하게는 5~250이고, 특히 바람직하게는 10~220이고, 가장 바람직하게는 40~180이다. G/D비란, 단층 카본 나노튜브의 라만 스펙트럼의 G 밴드와 D 밴드의 강도비(G/D)이다. 단층 카본 나노튜브의 G/D비가 높을수록, 단층 카본 나노튜브의 결정성이 높고, 불순물 카본이나 결함이 있는 카본 나노튜브가 적은 것을 의미한다.

[0041] 단층 카본 나노튜브(SWCNT)는 시판품으로서 입수 가능하며, 본 발명에서는, 예를 들어 TUBALL(TM) MATRIX 601(단층 카본 나노튜브 10 질량% 함유 폴리디메틸실록산), TUBALL(TM) MATRIX 602(단층 카본 나노튜브 10 질량% 함유 비닐 에테르 말단 폴리디메틸실록산), TUBALL(TM) MATRIX 201(단층 카본 나노튜브 10 질량% 함유 지방산 글리시딜 에스테르), TUBALL(TM) MATRIX 202(단층 카본 나노튜브 10질량% 함유 지방족 카복실산 에스테르 유도체), TUBALL(TM) MATRIX 204(단층 카본 나노튜브 10 질량% 함유 메타크릴산 에스테르 유도체), TUBALL(TM) MATRIX 301(단층 카본 나노튜브 10 질량% 함유 에톡시화 알코올)(모두 구스모토카세이 가부시키가이샤(Kusumoto Chemicals, Ltd.) 제품) 등을 들 수 있다.

[0042] 상기 도전성 미립자는 그의 일부 또는 전부가 유기 규소 화합물에 의해 그 표면의 일부 또는 전부가 처리된 것일 수도 있다. 유기 규소 화합물의 예는 실란, 실라잔, 실록산 또는 동동물 등의 저분자량 유기 규소 화합물, 및 폴리실록산, 폴리카보실록산 또는 동등물 등의 유기 규소 폴리머 또는 올리고머이다. 바람직한 실란의 예는 이른바 실란 커플링제이다. 이러한 실란 커플링제의 대표예로서는, 알킬트리알콕시실란(메틸트리메톡시실란, 비닐트리메톡시실란, 헥실트리메톡시실란, 옥틸트리메톡시실란 또는 동등물 등), 유기 관능기 함유 트리알콕시실란(글리시독시프로필트리메톡시실란, 에폭시사이클로헥실에틸트리메톡시실란, 메타크릴옥시프로필트리메톡시실란, 아미노프로필트리메톡시실란 또는 동등물 등)이다. 바람직한 실록산 및 폴리실록산으로서는, 헥사메틸디실록산, 1,3-디헥실-테트라메틸디실록산, 트리알콕시실릴 단말단화(single-terminated) 폴리디메틸실록산, 트리알콕시실릴 단말단화 디메틸비닐 단말단화 폴리디메틸실록산, 트리알콕시실릴 단말단화 유기 관능기 단말단화 폴리디메틸실록산, 트리알콕시실릴 양말단화(doubly terminated) 폴리디메틸실록산, 유기 관능기 양말단화 폴리디메틸실록산 또는 동일물을 들 수 있다. 실록산을 사용할 때, 실록산 결합의 수 n은 바람직하게는 2~150의 범위이다. 또한, 실록산은 반드시 주쇄일 필요는 없고, 유기 폴리머를 실록산 변성한 것일 수도 있으며, 실리콘 변성 아크릴 폴리머를 예로서 들 수 있다. 바람직한 실라잔의 예는 헥사메틸디실라잔, 1,3-디헥실-테트라메틸디실라잔 또는 동등물이다. 바람직한 폴리카보실록산의 예는 폴리머 주쇄 내에 Si-C-C-Si 결합을 갖는 폴리머이다.

[0043] 성분 (E)의 배합량은 얻어지는 전극층의 도전성(즉, 부피 저항률), 기계적 강도 및 형상 유지성 등에 따라 적절히 설계 가능하지만, 실용적으로는 조성물 전체에 대한 (E) 도전성 미립자의 부피 분율이 0.005~0.50의 범위가 되는 량인 것이 바람직하고, 0.005~0.25의 범위가 되는 량이 보다 바람직하다. 당해 성분 (E)의 배합량의 범위 내에서는, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 부피 저항률이 10^2 Ω·cm 이하, 아주 적합하게는, 10~10^2 Ω·cm의 범위 내에 있고, 우수한 도전성을 나타내는 전극층을 설계할 수 있다는 이점이 있으며, 특히 성분 (E)의 일부가 도전성 카본을 포함하는 미립자인 경우, 특히 성분 (E)의 일부가 단층 카본 나노튜브(SWCNT)인 경우에, 전극층의 부피 저항률을 효과적으로 저감하고 우수한 도전성을 실현하며, 또한 전극층의 파단 시 신율이나 인장 강도 등의 기계적 강도를 해치지 않고, 그의 점탄성에 대해 우수한 온도 의존성을 실현할 수 있다는 이점이 있다. 특히, 조성물 전체에 대한 단층 카본 나노튜브(SWCNT)의 부피 분율이 0.005~0.25의 범위인 것이 바람직하다.

[0044] 본 조성물은 저용제형 또는 무용제형의 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물이며, 특히 무용제형이고, 경화 반응성 오가노폴리실록산의 적어도 일부는 하이드로실릴화 반응성이며, 또한 성분 (E)인 도전성 미립자의 적어도 일부가 카본 나노튜브(CNT), 도전성 카본 블랙, 그래파이트 및 기상 성장 카본(VGCF)으로부터 선택되는 적어도 1종의 도전성 카본을 포함하는 미립자인 것이 바람직한 것이다. 또한, 본 조성물은 비핫멜트형일 수도 상기 핫멜트형 조성물 중 어느 하나일 수도 있으나, 특히 그의 경화에 의해 얻어지는 전극층의 점탄성에 온도 의존성이 요구되는 경우에는 핫멜트형의 조성물로 하는 것이 바람직하다.

[0045] 특히 아주 적합하게는, 본 조성물은 (A1) 적어도 분자쇄의 양말단에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성의 관능기를 갖는 직쇄상 오가노폴리실록산, (C) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로겐폴리실록산, 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~1.5몰이 되는 량, 및 (D) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매

[0046] 를 함유할 수 있다. 이들 성분의 상세는 후술한다.

[0047] 추가로, 본 조성물은 임의로,

[0048] (B) GPC(겔 침투 크로마토그래피)로 측정한 표준 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량이 5000 이상이고, 또한 분자 내에 M 단위 및 Q 단위를 갖는 오가노폴리실록산 수지, 및

[0049] (BX) GPC로 측정한 표준 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량이 5000 미만이고, 또한 분자 내에 M 단위 및 Q 단위를 갖는 오가노폴리실록산 수지

[0050] 로부터 선택되는 1종류 이상을 포함할 수도 있다. 또한, 특히 조성물 중의 성분 (B)의 함유량이 조성물 전체에 대하여 45 질량% 이상이면, 핫멜트형이며, 경화에 의해 얻어지는 전극층의 점탄성의 온도 의존성이 향상되는 이점이 있고, 성분 (B)의 함유량이 조성물 전체에 대하여 0~45 질량% 미만으로 설계하면, 전극층의 점탄성의 온도 의존성이 저하되고, 특히 100℃ 이상의 고온에서도 점탄성이 변화하기 어렵게 되는 경우가 있다. 이 때문에, 성분 (B) 또는 성분 (BX)의 사용 유무 및 사용량은 조성물의 물성, 전극층에 요구되는 요구 특성 및 공정에 따라 적절히 조성 설계가 가능하다.

[0051] [성분 (A1)]

[0052] 성분 (A1)은 적어도 분자쇄의 양말단에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성의 관능기를 갖는 직쇄상 오가노폴리실록산이며, 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성의 관능기는 비닐기 등의 탄소수 2~20의 알케닐기; 3-아크릴옥시프로필기, 3-메타크릴옥시프로필기 등의 (메타)아크릴 함유기로부터 선택되는 경화 반응성기이고, 탄소수 2~6의 알케닐기가 특히 바람직하다.

[0053] 성분 (A1)인 쇄상 오가노폴리실록산에는, 분자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 탄소 원자수 1~3의 알콕시기로부터 선택되는 기를 포함할 수도 있다. 또한, 1가 탄화수소기는 그 수소 원자의 일부가 할로겐 원자 또는 수산기로 치환되어 있을 수도 있다. 공업적으로는, 공업적으로는, 메틸기, 페닐기, 수산기, 알콕시기가 바람직하다.

[0054] 아주 적합한 성분 (A1)은 그의 분자쇄의 양말단에

[0055] $(Alk)R^{2}{}_{2}SiO_{1/2}$

[0056] (식 중, Alk는 탄소 원자수 2 이상의 알케닐기)로 표시되는 실록산 단위를 가지며, 그 외 실록산 단위가 실질적으로 $R^{2}{}_{2}SiO_{2/2}$로 표시되는 실록산 단위만으로 이루어진 직쇄상 오가노폴리실록산이다. 식 중, R^{2}는 상기 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 알콕시기로부터 선택되는 기이고, 공업적으로는, 메틸기, 페닐기, 수산기, 알콕시기가 바람직하고, 모두 메틸기일 수 있다. 또한, 성분 (A1)의 실록산 중합도는 말단 실록산 단위를 포함하여, 7~1002의 범위이며, 102~902의 범위일 수 있다.

[0057] [성분 (B)]

[0058] 성분 (B)는 본 발명에서의 임의의 구성이며, 조성물 전체로서 핫멜트성을 부여하며, 또한 상기 성분 (A)와 함께 일정한 양적 범위로 사용함으로써, 본 조성물에서의 실용상 충분한 핫멜트성을 부여하며, 또한 얻어지는 전극이 내열성, 내구성, 유전층에 대한 접착성, 추종성과 형상 유지성이 우수한 것이다. 구체적으로는, 성분 (B)는 톨루엔, 크실렌 등의 유기 용매를 사용하여, GPC(겔 침투 크로마토그래피)로 측정한 표준 폴리스티렌 환산의 중량

평균 분자량이 5000 이상이면서, 분자 내에 M 단위 및 Q 단위를 갖는 오가노폴리실록산 수지이다.

[0059] 성분 (B)의 사용량은 임의이며, 본 조성물에서 성분 (B)를 포함하지 않거나, 후술하는 저분자량의 성분 (BX)를 사용할 수도 있으나, 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 조성물 중의 성분 (B)의 함유량이 조성물 전체에 대하여 45 질량% 이상인 것이 바람직하다.

[0060] 성분 (B)는 중량 평균 분자량이 5000 이상인 고분자량의 오가노폴리실록산 수지인 것을 첫번째 특징으로 한다. 핫멜트성 및 얻어지는 전극의 형상 유지성 등의 견지에서, 성분 (B)의 중량 평균 분자량은 5500 이상, 6000 이상인 것이 바람직하며, 공업적으로는 5500~100,000, 6000~50,000의 범위인 것이 특히 바람직하다. 한편, 성분 (B)의 중량 평균 분자량이 상기 하한 미만(즉, 저분자량의 오가노폴리실록산 수지; 후술하는 성분 (BX))이면, 가령 일정량 이상 및 M/Q 단위를 포함하는 성분 (B)를 배합하더라도, 조성물 전체로서 충분한 점탄성의 온도 의존성, 핫멜트성 및 전극의 형상 유지성을 실현할 수 없는 경우가 있다.

[0061] 성분 (B)는 $R_3SiO_{1/2}$(식 중, R은 서로 독립적으로 1가 유기기를 나타낸다)로 표시되는 실록산 단위(M 단위), 및 $SiO_{4/2}$로 표시되는 실록산 단위(Q 단위)를 분자 내에 가지며, 임의로 $R_2SiO_{2/2}$(D 단위) 및 $RSiO_{3/2}$(T 단위)로부터 선택되는 실록산 단위를 포함할 수도 있고, 다음 평균 단위식:

[0062] $(R_3SiO_{1/2})p(R_2SiO_{2/2})q(RSiO_{3/2})r(SiO_{4/2})s(XO_{1/2})t$

[0063] 으로 표시되는 오가노폴리실록산 수지이다.

[0064] R은 1가 유기기이며, 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기일 수도 있고, 분자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기, 수산기 및 알콕시기로부터 선택되는 기일 수도 있다.

[0065] 구체적으로는, R인 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기는 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 반응성기가 예시된다.

[0066] 마찬가지로, R인 탄소-탄소 이중 결합을 갖지 않는 1가 탄화수소기는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기, 운데실기, 도데실기 등의 알킬기; 페닐기, 톨릴기, 크실릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트릴기, 피레닐기 등의 아릴기; 벤질기, 페네틸기, 나프틸에틸기, 나프틸프로필기, 안트라세닐에틸기, 페난트릴에틸기, 피레닐에틸기 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.

[0067] 상기 평균 단위식 중의 X는 수소 원자 또는 탄소 원자수 1~3의 알킬기이며, OX는 수산기 또는 탄소 원자수 1~3의 알콕시기이다. 이러한 가수 분해성 관능기는 오가노폴리실록산 수지의 합성 과정에서 수지 중에 잔존하는 수산기일 수 있으며, 합성 시의 실라잔 화합물 등에 의한 처리에 의해 수지 중의 수산기가 봉지(封止)된 구조일 수 있다.

[0068] 여기서, p는 정수이고, q 및 r은 0 또는 정수이고, s는 정수이고, t/(p+q+r+s)는 0~0.4의 범위 내의 수이고, (p+q)/(r+s)는 0.5~2.0의 범위 내인 것이 바람직하며, q 및 r이 0이고, M 단위 및 Q 단위만으로 이루어진 오가노폴리실록산 수지가 특히 바람직하다.

[0069] 본 발명에서의 성분 (B)는

[0070] (B1) 분자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖는 오가노폴리실록산 수지, 및

[0071] (B2) 분자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖지 않는 오가노폴리실록산 수지

[0072] 로부터 선택되는 1종류 이상의 오가노폴리실록산 수지일 수 있으나, 경화 반응성 및 얻어지는 전극층의 점탄성의 온도 의존성이나, 유전층에 대한 형상 유지성 등의 개선의 견지에서, 이들 성분 (B1) 및 성분 (B2)를 함께 포함하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 성분 (B1)과 성분 (B2)를 질량비 5:95~95:5의 범위로 병용할 수 있으며, 질량비 5:95~50:50의 범위로 병용하는 것이 바람직하다.

[0073] 성분 (B1)인 오가노폴리실록산 수지는 아주 적합하게는 상기 중량 평균 분자량을 가지며, 상기 M 단위 및 Q 단위를 가지며, 또한 R의 적어도 일부가 비닐기, 헥세닐기 등의 알케닐기이고, 그 비닐(CH2=CH-)기의 함유량이 1.0~5.0 질량%, 바람직하게는 1.2~3.5 질량%의 범위 내에 있는 알케닐기 함유 오가노폴리실록산 수지를 들 수

있다. 또한, 알케닐기 이외의 R은 특별히 한정되지 않으나, 공업적으로는 그 외 R이 메틸기 등의 알킬기 및 페닐기 등의 아릴기일 수 있다. 또한, M 단위, Q 단위 및 임의로 포함되는 ($XO_{1/2}$) 단위의 바람직한 비율 및 함유량은 상기와 같다.

[0074] 성분 (B2)인 오가노폴리실록산 수지는 아주 적합하게는 상기 중량 평균 분자량을 가지며, 상기 M 단위 및 Q 단위를 가지며, 또한 R이 메틸기 등의 알킬기 및 페닐기 등의 아릴기로부터 선택되는 기이고, 분자 내에 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기를 갖지 않는 오가노폴리실록산 수지이다. 또한, M 단위, Q 단위 및 임의로 포함되는 ($XO_{1/2}$) 단위의 바람직한 비율 및 함유량은 상기와 같다.

[0075] [성분 (BX)]

[0076] 본 발명에 관한 조성물은 임의로 (BX) 표준 폴리스티렌 환산으로의 중량 평균 분자량이 5000 미만인 분자 내에 $R_3SiO_{1/2}$(식 중, R은 서로 독립적으로 1가 유기기를 나타낸다)로 표시되는 실록산 단위(M 단위), 및 $SiO_{4/2}$로 표시되는 실록산 단위(Q 단위)를 포함하는 오가노폴리실록산 수지를 함유할 수도 있다. 그의 중량 평균 분자량은 5000 미만이며, 바람직하게는 500~4500의 범위, 1000~4000의 범위이다. 또한, 분자량 이외의 점에서는, 성분 (B)와 동일한 오가노폴리실록산 수지일 수 있다.

[0077] 본 조성물의 경화 반응에 의해 얻어지는 전극층의 점탄성을 조정하고, 내구성, 유전층에 대한 접착성, 추종성과 형상 유지성이 우수하기 때문에, 조성물 전체에서의 성분 (A), 성분 (B) 및 성분 (BX)의 함유량의 합은 50~95 질량%, 바람직하게는 55~90 질량%, 보다 바람직하게는 60~90 질량%의 범위일 수 있다.

[0078] [성분 (C)]

[0079] 성분 (C)는 성분 (A) 또는 성분 (B)/(BX) 중의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기와, 성분 (D)의 존재하에서 하이드로실릴화 반응에 의해 경화물을 형성할 수 있는 가교제이다.

[0080] 이러한 성분 (C)로서, 1,1,3,3-테트라메틸디실록산, 1,3,5,7-테트라메틸사이클로테트라실록산, 트리스(디메틸하이드로겐실록시)메틸실란, 트리스(디메틸하이드로겐실록시)페닐실란, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 메틸하이드로겐폴리실록산, 분자쇄 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 디메틸실록산·메틸하이드로겐실록산 공중합체, 분자쇄 양말단 디메틸하이드로겐실록시기 봉쇄 디메틸폴리실록산, 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, $(CH_3)_2HSiO_{1/2}$ 단위와 $SiO_{4/2}$ 단위로 이루어진 공중합체, $(CH_3)_2HSiO_{1/2}$ 단위와 $SiO_{4/2}$ 단위와 $(C_6H_5)SiO_{3/2}$ 단위로 이루어진 공중합체, 및 이들의 2종 이상의 혼합물이 예시된다.

[0081] 성분 (C)의 사용량은 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합 1몰에 대하여, 규소 결합 수소 원자가 0.1~5.0몰, 0.1~1.5몰, 0.1~1.20몰의 범위가 되는 량일 수 있다. 특히 성분 (C)의 사용량이 상기 상한 이하이면, 경화물의 기계적 강도 및 온도 의존성이 실용상 적절한 범위 내로 설계하기 쉽고, 유전층에 대한 전극층의 추종성과 형상 유지성이 보다 우수한 전극을 얻기 쉽다는 이점이 있다.

[0082] [성분 (D)]

[0083] 성분 (D)는 본 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화 반응성기와 성분 (C)의 하이드로실릴화 반응을 촉진하는 촉매이고, 백금계 촉매, 로듐계 촉매, 팔라듐계 촉매, 니켈계 촉매, 이리듐계 촉매, 루테늄계 촉매 및 철계 촉매가 예시되며, 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-테트라비닐 사이클로테트라실록산, 이들 알케닐실록산의 메틸기의 일부를 에틸기, 페닐기 등으로 치환한 알케닐실록산, 이들 알케닐실록산의 비닐기를 알릴기, 헥세닐기 등으로 치환한 알케닐실록산이 예시된다. 특히, 이 백금-알케닐실록산 착체의 안정성이 양호하기 때문에, 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산이 바람직하다. 또한, 이 백금-알케닐실록산 착체의 안정성을 향상시킬 수 있기 때문에, 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-테트라비닐 사이클로테트라실록산 등의 알케닐실록산이나 디메틸실록산 올

리고머 등의 오가노실록산 올리고머를 첨가하는 것이 바람직하고, 특히 알케닐실록산을 첨가하는 것이 바람직하다. 덧붙여, 취급 작업성 및 조성물의 가사 시간(pot life) 개선의 견지에서, 이들 하이드로실릴화 반응 촉매는 실리콘 수지, 폴리카보네이트 수지, 아크릴 수지 등의 열가소성 수지 중에 분산 혹은 캡슐화한 촉매인 하이드로실릴화 반응 촉매 함유 열가소성 수지 미립자, 특히 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자일 수도 있다. 또한, 하이드로실릴화 반응을 촉진하는 촉매로서는, 철, 루테늄, 철/코발트 등의 비백금계 금속 촉매를 사용할 수도 있다.

[0084] 특히, 본 발명에 관한 조성물이 경화에 의해 전극을 형성하는 조성물이며, 조성물의 생산 시의 안정성, 취급 작업성 및 조성물의 가사 시간 개선의 견지에서, 성분 (D)의 적어도 일부가, (D1) 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자일 수 있고, 또한 바람직하다. 이러한 성분 (D1)은 백금계 하이드로실릴화 반응 촉매가 열가소성 수지 중에 용해 또는 분산해 있는 미립자, 혹은 열가소성 수지의 외각 중에 백금계 촉매가 핵으로서 함유되어 있는 구조의 마이크로캡슐 미립자 중 어느 것일 수도 있다. 백금계 촉매로서는, 상기와 동일한 백금의 알케닐실록산 착체 등이 예시된다. 또한, 열가소성 수지는 백금계 촉매를 적어도 본 조성물의 생산 중 및 저장 중에는 실질적으로 투과시키지 않고, 또한 본 조성물의 주성분인 오가노폴리실록산에 실질적으로 용해되지 않으면 특별히 한정되지 않으나, 이 열가소성 수지는 연화점 혹은 유리 전이점이 80℃ 이상이 바람직하고, 120℃ 이상인 것이 보다 바람직하다. 구체적으로는, 실리콘 수지, 폴리실란 수지, 에폭시 수지, 아크릴 수지, 메틸 셀룰로오스 폴리카보네이트 수지를 아주 적합하게 사용할 수 있다. 이 연화점은 수지가 자중 또는 자신의 표면 장력으로 유동 개시하는 온도이며, 일정 속도로 승온하면서 현미경으로 분쇄 입자를 관찰하는 방법에 의해 측정할 수 있다. 또한, 이 유리 전이점은 DSC(differential scanning calorimeter)에 의해 측정할 수 있다. 본 발명에서는, 연화점과 유리 전이점 중 어느 것이 120℃ 이상인 것이 바람직하다. 이는, 열가소성 수지의 연화점 혹은 유리 전이점이 120℃ 미만이면, 후술하는 본 조성물을 균일 혼합하는 공정에서 백금 성분이 용출되기 시작할 염려가 있기 때문이다. 또한, 이 백금계 촉매 함유 열가소성 미립자의 평균 입자 지름은 한정되지 않으나, 바람직하게는 0.1~500 μm의 범위 내이며, 보다 바람직하게는 0.3~100 μm의 범위 내이다. 이는, 평균 입자 지름이 상기 범위의 하한 미만인 백금계 촉매 함유 열가소성 수지 미립자를 조제하는 것이 곤란하기 때문이며, 한편 상기 범위의 상한을 초과하면, 본 조성물 중에 분산성이 저하되기 때문이다.

[0085] 이러한 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자를 조제하는 방법은 한정되지 않으며, 종래 공지의 계면 중합법이나 in-situ 중합법 등의 화학적 방법, 코아세르베이션법(coacervation)이나 액중 건조법 등의 물리적·기계적 방법이 예시된다. 특히, 좁은 입경 분포의 마이크로캡슐 미립자가 비교적 용이하게 얻어지기 때문에, 액 중 건조법과, 스프레이 드라이어 등을 이용하는 기상 건조법이 바람직하다. 이들 방법에 의해 얻어진 미립자는 그대로 사용할 수도 있으나, 이를 적절한 세정 용제에 의해 세정하여 그의 표면에 부착된 백금계 촉매를 제거하는 것이 저장 안정성이 우수한 조성물을 얻기 위해서는 바람직하다. 여기서 적절한 세정 용제란, 열가소성 수지를 용해하지 않지만, 백금계 촉매를 용해하는 성질을 갖는 것이다. 이러한 세정 용제로서, 예를 들어 메틸 알코올, 에틸 알코올 등의 알코올류, 헥사메틸디실록산 등의 저분자량 오가노폴리실록산류 등을 들 수 있다. 하이드로실릴화 반응용 촉매의 열가소성 수지에 대한 비율은 입상물의 제조 방법에 따라 크게 바뀌기 때문에 특별히 한정할 수는 없으나, 열가소성 수지에 대한 백금계 촉매의 함유량이 0.01 질량% 이상이 되는 것이 바람직하다. 이는, 백금계 촉매의 함유량이 0.01 질량% 미만이면, 본 조성물에서 차지하는 백금계 촉매 함유 열가소성 수지 미립자를 다량으로 함유하지 않으면 본 조성물에 의해 경화물의 물성이 손상되기 때문이다.

[0086] 성분 (D)인 하이드로실릴화 반응용 촉매의 첨가량은 촉매량이며, 조성물 전체에 대하여, 금속 원자가 질량 단위로 0.01~500 ppm의 범위 내가 되는 량, 0.01~100 ppm의 범위 내가 되는 량, 혹은 0.01~50 ppm의 범위 내가 되는 량인 것이 바람직하다.

[0087] 성분 (D)는 그의 일부 또는 전부가 고에너지선의 조사가 없으면 활성을 나타내지 않지만, 고에너지선의 조사에 의해 조성물 중에서 활성을 나타내는 하이드로실릴화 반응용 촉매, 이른바 고에너지선 활성화 촉매 또는 광활성화 촉매일 수도 있다. 이러한 성분 (D)를 사용함으로써, 조성물 전체로서 고에너지선의 조사를 트리거로 하여 저온에서도 경화가 가능하고, 보존 안정성이 우수하며, 또한 반응의 컨트롤이 용이하기 때문에, 취급 작업성이 우수하다는 특성을 실현할 수 있다.

[0088] 고에너지선은 자외선, 감마선, X선, α선, 전자선 등을 들 수 있다. 특히, 자외선, X선 및 시판의 전자선 조사 장치로부터 조사되는 전자선을 들 수 있으며, 이들 중에서도 자외선이 촉매 활성화 효율의 점에서 바람직하고, 파장 280~380 nm의 범위의 자외선이 공업적 이용의 견지에서 바람직하다. 또한, 조사량은 고에너지선 활성형

촉매의 종류에 따라 상이하지만, 자외선의 경우에는 파장 365 nm에서의 적산 조사량이 100 mJ/cm^2~100 J/cm^{2}의 범위 내인 것이 바람직하다.

[0089] 성분 (D)의 구체예로서는, (메틸사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV), (사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV), (1,2,3,4,5-펜타메틸사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV), (사이클로펜타디에닐)디메틸에틸 백금(IV), (사이클로펜타디에닐)디메틸아세틸 백금(IV), (트리메틸실릴사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV), (메톡시카보닐사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV), (디메틸페닐실릴사이클로펜타디에닐)트리메틸사이클로펜타디에닐 백금(IV), 트리메틸(아세틸아세토나토) 백금(IV), 트리메틸(3,5-헵탄디오네이트) 백금(IV), 트리메틸(메틸아세토아세테이트) 백금(IV), 비스(2, 4-펜탄디오나토) 백금(II), 비스(2,4-헥산디오나토) 백금(II), 비스(2,4-헵탄디오나토) 백금(II), 비스(3,5-헵탄디오나토) 백금(II), 비스(1-페닐-1,3-부탄디오나토) 백금(II), 비스(1,3-디페닐-1,3-프로판디오나토) 백금(II), 비스(헥사플루오로아세틸아세토나토) 백금(II)을 들 수 있으며, 이들 중에서도 (메틸사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금(IV)과 비스(2,4-펜탄디오나토) 백금(II)이 범용성과 입수 용이성의 점에서 바람직하다.

[0090] 성분 (D)인 고에너지선 활성화 촉매의 사용량은 유효량이며, 특별히 제한되는 것은 아니지만, 본 발명의 조성물의 경화를 촉진하는 량이면 특별히 한정되지 않는다. 구체적으로는, (A)~(C) 성분의 합(전체를 100 질량%로 한다)에 대하여, 이 촉매 중의 금속 원자가 질량 단위로 0.01~1,000 ppm, 아주 적합하게는 성분 (D) 중의 백금 금속 원자가 0.1~500 ppm의 범위 내가 되는 량이다.

[0091] 본 조성물에는 본 발명의 목적을 해치지 않는 한, 그 외 임의의 성분으로서, (F) 보강성 충전제, (G) 경화 지연제, (H) 접착 부여제 및 (I) 유기계 왁스를 함유할 수도 있다. 다만, 상기와 같이, 본 조성물은 저용매형 또는 무용매형의 조성물이기 때문에, 가령 이들 임의의 성분을 배합하는 경우이더라도, 유기 용매를 사용하지 않거나, 배합 후에 가열 혼련이나 스트립핑 등의 수단에 의해 조성물 중의 유기 용매의 함유량을 저감하는 것이 바람직하다.

[0092] [성분 (F)]

[0093] 성분 (F)는 보강성 충전제이며, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 기계적 강도를 향상시킬 수 있는 경우가 있다. 구체적으로는, 평균 일차 입자 지름이 50 nm 미만인 1종 이상의 보강성 무기 미립자인 것이 바람직하고, 흄드 실리카, 습식 실리카, 분쇄 실리카, 탄산 칼슘, 규조토, 미분쇄 석영, 알루미나·산화아연 이외의 각종 금속 산화물 분말, 유리 섬유, 탄소 섬유 등이 예시되고, 이들을 후술하는 1종류 이상의 유기 규소 화합물로 처리한 것이 사용된다. 그 형상은 특별히 한정되는 것은 아니며, 입자상, 판상, 침상, 섬유상 등의 임의의 형상의 것을 사용할 수 있다.

[0094] 성분 (F)의 아주 적합한 예로서, 평균 일차 입자 지름이 10 nm 이하이고, 부분적으로 응집해 있을 수도 있는 친수성 또는 소수성의 흄드 실리카 혹은 그의 금속 산화물 복합체를 들 수 있다. 또한, 분산성 향상의 점에서, 흄드 실리카 혹은 그의 금속 산화물 복합체를 상기 유기 규소 화합물로 처리한 것이 바람직하다. 이들 보강성 무기 입자는 2종 이상을 조합하여 사용할 수도 있다.

[0095] 성분 (F)의 BET 비표면적은 적절히 선택 가능하지만, 10 m^2/g 이상일 수 있고, 10~1000 m^2/g의 범위일 수 있다. 또한, 성분 (F)로서, BET 비표면적이 서로 상이한 2종류 이상의 보강성 충전제를 병용할 수도 있다. 예를 들어, (F1) 1종류 이상의 유기 규소 화합물에 의해 표면 처리된, 평균 BET 비표면적이 100 m^2/g을 초과하는 보강성 미립자 또는 그의 복합체와, (F2) 1종류 이상의 유기 규소 화합물에 의해 표면 처리된, 평균 BET 비표면적이 10~100 m^2/g의 범위에 있는 보강성 미립자 또는 그의 복합체를 각각 단독으로 성분 (F)로서 사용할 수도 있으며, (F1) 성분과 (F2) 성분의 질량비를 임의의 비율로 병용할 수도 있다.

[0096] 성분 (F)는 상기 유기 규소 화합물에 의해 표면 처리되어 있는 것이 바람직하며, 아주 적합한 유기 규소 화합물로서, 헥사메틸디실라잔 및 1,3-비스(3,3,3-트리플루오로프로필)-1,1,3,3-테트라메틸디실라잔으로부터 선택되는 1종류 이상이 예시된다. 또한, 본 발명의 기술적 효과를 방해하지 않는 범위에서, 유기 규소 화합물 이외의 표면 처리제를 사용하는 표면 처리를 병용할 수도 있다.

[0097] 상기 표면 처리에 있어서, 충전제 총량에 대한 표면 처리제의 비율은 0.1 질량% 이상, 50 질량% 이하의 범위가 바람직하며, 0.3 질량% 이상, 40 질량% 이하의 범위가 보다 바람직하다. 또한, 처리량에 대해서는 충전제와 표면 처리제의 투입비이며, 처리 후에 잉여 처리제를 제거하는 것이 바람직하다. 또한, 필요에 따라 처리할 때에

는 반응을 촉진 혹은 보조하는 첨가제 등을 사용해도 문제없다.

[0098] [성분 (G)]

[0099] 성분 (G)는 경화 지연제이며, 특히 본 조성물을 하이드로실릴화 반응에 의해 경화시키는 경우, 부반응을 효과적으로 억제하여, 본 발명에 관한 조성물의 보존 안정성 및 가열 용융 시의 가사 시간 등을 더욱 개선할 수 있는 경우가 있다.

[0100] 이용 가능한 경화 지연제는 특별히 그의 구조 및 종류에 있어서 한정되지 않으며, 공지의 하이드로실릴화 반응 억제제로부터 선택 가능하고, 예를 들어 2-메틸-3-부틴-2-올, 3,5-디메틸-1-헥신-3-올, 2-페닐-3-부틴-2-올, 1-에티닐-1-사이클로헥산올 등의 알킨 알코올; 3-메틸-3-펜텐-1-인, 3,5-디메틸-3-헥센-1-인 등의 엔인 화합물; 테트라메틸 테트라비닐사이클로테트라실록산, 테트라메틸 테트라헥세닐사이클로테트라실록산 등의 알케닐기 함유 저분자량 실록산; 메틸-트리스(1,1-디메틸-2-프로피닐옥시)실란, 비닐-트리스(1,1-디메틸프로피닐옥시)실란 등의 알키닐옥시실란이 예시된다. 또한, 본 조성물의 용융 혼련 등의 가열을 수반하는 프로세스를 거쳐 제조하는 경우, 성분 (G)로서, 대기압하에서 비점이 200℃ 이상인 화합물을 사용할 수도 있다.

[0101] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 성분 (G)는 대기압하에서 비점이 200℃ 이상인 화합물을 사용하는 것이 특히 바람직하다. 본 발명에 관한 조성물은 조성적인 균일화의 견지에서, 비점이 낮은 화합물을 지연 경화제로서 사용하면, 용융 혼련 등의 공정에서 경화 지연제의 일부 또는 전부가 휘발되어, 최종적인 경화성 실리콘 조성물에 대한 목표로 한 경화 지연 효과가 얻어지지 않게 될 우려가 있기 때문이다. 또한, 메틸-트리스(1,1-디메틸-2-프로피닐옥시)실란은 대기압하에서의 비점이 245℃이며, 아주 적합한 성분 (G)의 일 예로서 들 수 있다.

[0102] 성분 (G)의 사용량은 임의이지만, 조성물 전체에 대하여, 질량 단위로 1~10000 ppm의 범위 내인 것이 바람직하다.

[0103] [성분 (H)]

[0104] 성분 (H)는 접착 부여제이며, 규소 원자에 결합한 알콕시기를 1분자 중에 적어도 1개 갖는 유기 규소 화합물이 예시된다. 이 알콕시기로서는, 메톡시기, 에톡시기, 프로폭시기, 부톡시기, 메톡시에톡시기가 예시되며, 특히 메톡시기가 바람직하다. 또한, 유기 규소 화합물 중의 알콕시기 이외의 규소 원자에 결합하는 기로서는, 알킬기, 알케닐기, 아릴기, 아르알킬기, 할로겐화 알킬기 등의 할로겐 치환 혹은 비치환의 1가 탄화수소기; 3-글리시독시프로필기, 4-글리시독시부틸기 등의 글리시독시알킬기; 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸기, 3-(3,4-에폭시사이클로헥실)프로필기 등의 에폭시사이클로헥실알킬기; 3,4-에폭시부틸기, 7,8-에폭시옥틸기 등의 에폭시알킬기; 3-메타크릴옥시프로필기 등의 아크릴기 함유 1가 유기기; 수소 원자가 예시된다. 이 유기 규소 화합물은 본 조성물 중의 알케닐기 또는 규소 원자 결합 수소 원자와 반응할 수 있는 기를 갖는 것이 바람직하며, 구체적으로는 규소 원자 결합 수소 원자 또는 알케닐기를 갖는 것이 바람직하다. 또한, 각종 기재에 대해 양호한 접착성을 부여할 수 있기 때문에, 이 유기 규소 화합물은 1분자 중에 적어도 1개의 에폭시기 함유 1가 유기기를 갖는 것이 바람직하다. 이러한 유기 규소 화합물로서는, 오가노실란 화합물, 오가노실록산 올리고머, 알킬 실리케이트가 예시된다. 이 오가노실록산 올리고머 혹은 알킬 실리케이트의 분자 구조로서는, 직쇄상, 일부 분지를 갖는 직쇄상, 분지쇄상, 환상, 망상이 예시되며, 특히 직쇄상, 분지쇄상, 망상인 것이 바람직하다. 유기 규소 화합물로서는, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸트리메톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란 등의 실란 화합물; 1분자 중에 규소 원자 결합 알케닐기 혹은 규소 원자 결합 수소 원자, 및 규소 원자 결합 알콕시기를 각각 적어도 1개씩 갖는 실록산 화합물, 규소 원자 결합 알콕시기를 적어도 1개 갖는 실란 화합물 또는 실록산 화합물과 1분자 중에 규소 원자 결합 하이드록시기와 규소 원자 결합 알케닐기를 각각 적어도 1개씩 갖는 실록산 화합물의 혼합물, 아미노기 함유 오가노알콕시실란과 에폭시기 함유 오가노알콕시실란의 반응 혼합물, 1분자 중에 적어도 2개의 알콕시실릴기를 가지며, 또한 이들 실릴기의 사이에 규소-산소 결합 이외의 결합이 포함되어 있는 유기 화합물, 일반식: $R^{a}_{n}Si(OR^{b})_{4-n}$

[0105] (식 중, R^{a}는 1가의 에폭시기 함유 유기기이고, R^{b}는 탄소 원자수 1~6의 알킬기 또는 수소 원자이다. n은 1~3의 범위의 수이다)

[0106] 으로 표시되는 에폭시기 함유 실란 또는 그의 부분 가수 분해 축합물, 비닐기 함유 실록산 올리고머(쇄상 또는 환상 구조인 것을 포함한다)와 에폭시기 함유 트리알콕시실란의 반응 혼합물, 메틸 폴리실리케이트, 에틸 폴리실리케이트, 에폭시기 함유 에틸 폴리실리케이트가 예시된다. 이 접착성 부여제는 저점도 액상인 것이 바람직하며, 그의 점도는 한정되지 않으나, 25℃에서 1~500 mPa·s의 범위 내인 것이 바람직하다. 또한, 이 접착성

부여제의 함유량은 한정되지 않으나, 본 조성물의 합계 100 질량부에 대하여 0.01~10 질량부의 범위 내인 것이 바람직하다.

[0107] 본 발명에 있어서, 특히 아주 적합한 접착성 부여제로서 아미노기 함유 오가노알콕시실란과 에폭시기 함유 오가노알콕시실란의 반응 혼합물이 예시된다. 이러한 성분은 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층의 형성 중(가열 용융 후 및 경화 도중)에 접촉하고 있는 각종 기재에 대한 초기 접착성, 특히 미세정 피착체에 대해서도 저온 접착성을 개선하는 성분이다. 이러한 반응 혼합물은 일본 공고특허공보 제(소)52-8854호나 일본 공개특허공보 제(평)10-195085호에 개시되어 있다.

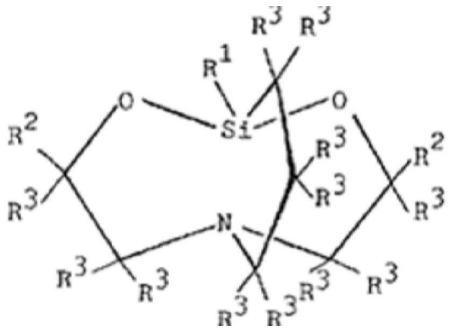
[0108] 이러한 성분을 구성하는 아미노기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란으로서는, 아미노메틸 트리에톡시실란, 3-아미노프로필 트리메톡시실란, 3-아미노프로필 트리에톡시실란, 3-아미노프로필 메틸디메톡시실란, N-(2-아미노에틸)아미노메틸 트리부톡시실란, N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필 트리메톡시실란, N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필 메틸디메톡시실란, 3-아닐리노프로필 트리에톡시실란이 예시된다.

[0109] 또한, 에폭시기 함유 오가노알콕시실란으로서는, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란, 3-글리시독시프로필메틸디메톡시실란, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸트리메톡시실란, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸메틸디메톡시실란이 예시된다.

[0110] 이들 아미노기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란과 에폭시기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란의 비율은 몰비로 (1:1.5)~(1:5)의 범위 내에 있는 것이 바람직하고, (1:2)~(1:4)의 범위 내에 있는 것이 특히 바람직하다. 이 성분은 상기와 같은 아미노기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란과 에폭시기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란을 혼합하고, 실온하 혹은 가열하에서 반응시킴으로써 용이하게 합성할 수 있다.

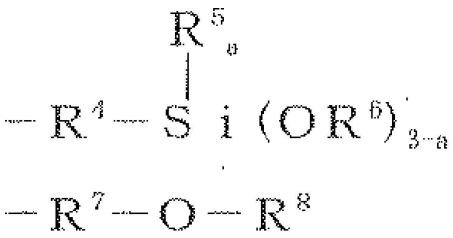
[0111] 특히, 본 발명에 관한 조성물에서는, 일본 공개특허공보 제(평)10-195085호에 기재된 방법에 의해, 아미노기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란과 에폭시기 함유 유기기를 갖는 알콕시실란을 반응시킬 때, 특히 알코올 교환 반응에 의해 환화(環化)시켜 이루어지는, 일반식:

[0112] [화 1]

[0113] 

[0114] {식 중, R^1은 알킬기, 알케닐기 또는 알콕시기이고, R^2는 동일하거나 또는 상이한 일반식:

[0115] [화 2]

[0116] 

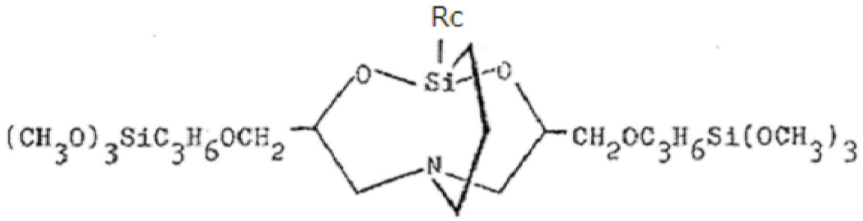
[0117] (식 중, R^4는 알킬렌기 또는 알킬렌옥시알킬렌기이고, R^5는 1가 탄화수소기이고, R^6은 알킬기이고, R^7은 알킬렌기이고, R^8은 알킬기, 알케닐기 또는 아실기이고, a는 0, 1 또는 2이다.)

[0118] 으로 표시되는 기로 이루어지는 군으로부터 선택되는 기이고, R^3은 동일하거나 또는 상이한 수소 원자 혹은 알킬기이다.}

[0119] 으로 표시되는 카바실라트란 유도체를 함유하는 것이 특히 바람직하다. 이러한 카바실라트란 유도체로서, 이하

의 구조로 표시되는 1분자 중에 규소 원자 결합 알콕시기 또는 규소 원자 결합 알케닐기를 갖는 카바실라트란 유도체가 예시된다.

[0120] [화 3]

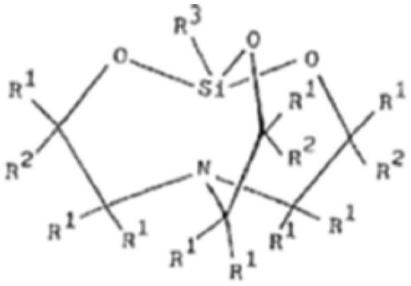


[0121]

[0122] (식 중, Rc는 메톡시기, 에톡시기, 비닐기, 알릴기 및 헥세닐기로부터 선택되는 기이다.)

[0123] 또한, 본 발명에서는, 하기 구조식으로 표시되는 실라트란 유도체를 접착성 부여제로서 사용할 수도 있다.

[0124] [화 4]



[0125]

[0126] 식 중의 R^1은 동일하거나 또는 상이한 수소 원자 혹은 알킬기이며, 특히 R^1로서는, 수소 원자 또는 메틸기가 바람직하다. 또한, 상기 식 중의 R^2는 수소 원자, 알킬기 및 일반식: $-R^4-Si(OR^5)_xR^6_{(3-x)}$로 표시되는 알콕시실릴기 함유 유기기로 이루어진 군으로부터 선택되는 동일하거나 또는 상이한 기이며, 다만 R^2의 적어도 1개는 이 알콕시실릴기 함유 유기기이다. R^2의 알킬기로서는 메틸기 등이 예시된다. 또한, R^2의 알콕시실릴기 함유 유기기에 있어서, 식 중의 R^4는 2가 유기기이며, 알킬렌기 또는 알킬렌옥시알킬렌기가 예시되고, 특히 에틸렌기, 프로필렌기, 부틸렌기, 메틸렌옥시프로필렌기, 메틸렌옥시펜틸렌기인 것이 바람직하다. 또한, 식 중의 R^5는 탄소 원자수 1~10의 알킬기이며, 바람직하게는 메틸기, 에틸기이다. 또한, 식 중의 R^6은 치환 혹은 비치환의 1가 탄화수소기이며, 바람직하게는 메틸기이다. 또한, 식 중의 x는 1,2 또는 3이며, 바람직하게는 3이다.

[0127] 이러한 R^2의 알콕시실릴기 함유 유기기로서는, 다음과 같은 기가 예시된다.

[0128] $-(CH_2)_2Si(OCH_3)_2(CH_2)_2Si(OCH_3)_2CH_3$

[0129] $-(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_2(CH_2)_3Si(OC_2H_5)(CH_3)_2$

[0130] $-CH_2O(CH_2)_3Si(OCH_3)_3$

[0131] $-CH_2O(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_3$

[0132] $-CH_2O(CH_2)_3Si(OCH_3)_2CH_3$

[0133] $-CH_2O(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_2CH_3$

[0134] $-CH_2OCH_2Si(OCH_3)_2CH_2OCH_2Si(OCH_3)(CH_3)_2$

[0135] 상기 식 중의 R^3은 치환 혹은 비치환의 1가 탄화수소기, 탄소 원자수 1~10의 알콕시기, 글리시독시알킬기, 옥시

라닐알킬기 및 아실옥시알킬기로 이루어진 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 기이며, R^3의 1가 탄화수소기로서는 메틸기 등의 알킬기가 예시되고, R^3의 알콕시기로서는 메톡시기, 에톡시기, 프로폭시기가 예시되고, R^3의 글리시독시알킬기로서는 3-글리시독시프로필기가 예시되고, R^3의 옥시라닐알킬기로서는 4-옥시라닐부틸기, 8-옥시라닐옥틸기가 예시되고, R^3의 아실옥시알킬기로서는 아세톡시프로필기, 3-메타크릴옥시프로필기가 예시된다. 특히, R^3으로서는, 알킬기, 알케닐기, 알콕시기인 것이 바람직하며, 나아가서는 알킬기 또는 알케닐기인 것이 바람직하고, 메틸기, 비닐기, 알릴기 및 헥세닐기로부터 선택되는 기가 특히 아주 적합하게 예시된다.

[0136] 성분 (H)의 사용량은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 유전층 등에의 접착성 개선의 견지에서, 아주 적합하게는 조성물 전체의 0.1~1.0 질량%의 범위이며, 0.2~1.0 질량%의 범위가 보다 바람직하다.

[0137] [성분 (I)]

[0138] 성분 (I)은 유기계 왁스이며, 구체적으로는 융점이 30~160℃의 범위 내인 유기계 왁스이다. 이러한 성분 (I)은 각종 핫멜트성의 합성 수지, 왁스류, 지방산 금속염 등으로부터 선택되는 1종류 이상이 예시된다. 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 당해 왁스 성분은 고온(150℃)에서 낮은 동점도를 나타내며, 유동성이 우수한 용융물을 형성한다. 또한, 상기 성분 (A), (B), (E)와 병용함으로써, 본 조성물로 이루어진 용융물 내의 왁스 성분은 고온하에서 조성물 전체에 신속하게 퍼짐으로써, 용융한 조성물이 적용된 기재면과 조성물 전체의 점도를 저하시키며, 또한 기재 및 용융 조성물의 표면 마찰을 급격하게 저하시켜, 조성물 전체의 유동성을 큰폭으로 상승시키는 효과를 나타낸다. 이 때문에, 다른 성분의 총량에 대해, 매우 소량 첨가하는 것만으로 용융 조성물의 점도 및 유동성을 크게 개선할 수 있는 경우가 있다.

[0139] 성분 (I)은 상기 적점(drop point) 및 용융 시의 동점도의 조건을 만족하는 한, 파라핀 등의 석유계 왁스류, 카르나우바 왁스 등의 천연 왁스, 몬탄산 에스테르 왁스 등의 합성 왁스일 수도 있으나, 본 발명의 기술적 효과의 견지에서, 지방산 금속염이나 에리트리톨 유도체의 지방산 에스테르로 이루어진 핫멜트 성분인 것이 바람직하며, 스테아르산, 팔미트산, 올레산, 이소노난산 등의 고급 지방산의 금속염이나 펜타에리트리톨 테트라스테아레이트, 디펜타에리트리톨 아디프산 스테아르산 에스테르, 글리세린 트리-18-하이드록시스테아레이트, 펜타에리트리톨 풀스테아레이트가 특히 바람직하다. 여기서, 상기 지방산 금속염의 종류도 특별히 제한되는 것은 아니지만, 리튬, 나트륨, 칼륨 등의 알칼리 금속염; 마그네슘, 칼슘, 바륨 등의 알칼리 토류 금속염; 또는 아연염이 아주 적합하게 예시된다.

[0140] 성분 (I)의 사용량은 조성물 전체를 100 질량부로 한 경우, 그의 함유량이 0.01~5.0 질량부의 범위이며, 0.01~3.5 질량부, 0.01~3.0 질량부일 수 있다. 왁스 성분의 사용량이 상기 상한을 초과하면, 본 발명의 조성물로부터 얻어지는 전극층의 접착성 및 기계적 강도가 불충분해지는 경우가 있다. 또한, 사용량이 상기 하한 미만이면, 가열 용융 시의 충분한 유동성 개선을 실현할 수 없는 경우가 있다.

[0141] 추가로, 본 조성물에는 본 발명의 목적을 해치지 않는 한, 기타 임의의 성분으로서 산화철(벵갈라), 산화세륨, 세륨디메틸실라놀레이트, 지방산 세륨염, 수산화세륨, 지르코늄 화합물 등의 내열제; 그 외, 염료, 백색 이외의 안료, 난연성 부여제, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 붕산 아연, 몰리브덴산 아연 및 포스파젠 등의 서열제, 하이드로탈사이트, 비스무트 산화물이나 이트륨 산화물 등의 이온 포착제 · pH 조정제, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 붕산 아연, 몰리브덴산 아연, 포스파젠 등의 난연제, 힌더드 페놀 화합물, 힌더드 아민 화합물, 티오에테르 화합물 등의 산화방지제, 순철, 규소강, 철-코발트 합금, 철-니켈 합금, 철-크롬 합금, 철-알루미늄 합금, 카보닐철, 스테인리스강, 또는 이들 중 1종 혹은 2종 이상을 포함하는 복합 재료 등의 연자성 입자, 무기계 난연제(예를 들어 수산화알루미늄 등의 수화 금속계 화합물), 할로겐계 난연제, 인계 난연제, 유기 금속염계 난연제, 실리콘 오일, 실리콘 고무, 폴리이소프렌, 1,2-폴리부타디엔, 1,4-폴리부타디엔 등의 폴리부타디엔, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 카복실기 말단 부타디엔 아크릴로니트릴 고무, 폴리클로로프렌, 폴리(옥시프로필렌), 폴리(옥시테트라메틸렌) 글리콜, 폴리올레핀 글리콜, 폴리-ε-카프로락톤 등의 열가소성 엘라스토머, 폴리설파이드 고무, 불소 고무 등의 저응력화제, 티탄산 바륨($BaTiO_3$), 티탄산 스트론튬($SrTiO_3$), 지르콘산 티탄산 납(Pb(Zr, Ti)O_3, 별명: PZT), 알루미나(Al_2O_3, 별명: 산화알루미늄), 지르코니아(ZrO_2, 별명: 이산화지르코늄), 마그네시아(MgO, 별명: 산화마그네슘), 실리카(SiO_2, 별명: 이산화규소), 티타니아(TiO_2, 별명; 이산화티타늄), 질화알루미늄(AlN), 질화규소(Si_3N_4), 탄화규소(SiC), 티탄산 지르콘산 바륨 칼슘(별명: BCTZ), 폴리불화비닐리덴 등의 유전체 세라믹, 염화구리, 요오드화제I구리, 아세트산 구리, 스테아르

산 세륨 등의 금속염 안정제; 힌더드 아민계, 힌더드 페놀계, 함황 화합물계, 아크릴레이트계, 인계 유기 화합물 등의 산화방지제나 내열 안정제; 벤조페논계, 살리실레이트계, 벤조트리아졸계 등의 자외선 흡수제나 내후제, 광안정제 등을 함유할 수도 있다.

[0142] [본 조성물의 사용: 전극층의 형성]

[0143] 본 조성물의 형태는 특별히 제한되는 것은 아니며, 그의 제조 공정에 따라, 액상일 수도 있고, 괴상, 고체~반고체 왁스상, 입상, 과립상, 펠렛상(타블렛상), 시트상의 어느 형태를 취할 수도 있다. 또한, 괴상, 고체~반고체 페이스트상, 입상, 과립상의 조성물을 공지의 방법에 의해 타정 성형함으로써, 펠렛상 성형물 또는 타블렛상 성형물의 형태로 하여 사용할 수도 있다. 마찬가지로, 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 단축 또는 다축(2축 등) 압출기 등을 이용하여 원료를 용융 혼련하고, 토출한 용융 혼련물을 예를 들어 플루오로 실리콘 등의 공지의 박리층을 구비한 박리 필름 사이에 적층하는 등 하여 얻은 시트상 성형물일 수도 있고, 토출구의 형상에 따라 용융 혼련물을 직접 펠렛/타블렛의 형상으로 성형할 수도 있다. 특히, 본 조성물은 그 자체가 비유동성~고체상이기 때문에, 핸들링성 및 보존 안정성이 우수하다는 이점을 갖는다.

[0144] 본 조성물은 저용제형 또는 무용제형이며, 조성물 전체로서 경화 반응성을 갖기 때문에, 액상 또는 임의의 가열 용융 공정에 의해 유동하여, 전극층을 형성하고자 하는 개소에 균일하게 도포할 수 있고, 또한 당해 도포와 동시 또는 도포 후에 경화 반응을 진행시켜, 경화물로 이루어진 전극층을 형성할 수 있다. 이 때문에, 환경 부하 저감 및 액추에이터 등의 성능 향상을 목적으로 한 무용제 공정이나 전극 프린트 공정에서도 제한없이 이용 가능하다. 또한, 본 조성물은 가열 용융 시의 성형성, 갭필(gap-fill)성 및 점착력이 우수하며, 또한 얻어지는 전극층의 내열성, 내구성, 접착성에 더하여, 점탄 특성이 우수하기 때문에, 특히 유전성 엘라스토머 시트 상에 본 조성물을 사용하여 이루어진 전극층을 형성시킨 경우, 그의 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 액추에이터와 같이 고도의 물리적 변위를 전제로 한 트랜스듀서에 사용한 경우에도 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어려운, 실용상 충분한 점탄 특성을 구비하는 것이다.

[0145] 본 조성물이 핫멜트형의 조성물인 경우, 가열 용융에 의해, 전극층을 형성하고자 하는 개소에 도포하여 사용할 수 있다. 구체적으로는, 80℃ 이상으로 가열하여 용융하는 공정을 거쳐, 핫 디스펜스 등에 의해 전극층을 형성하고자 하는 개소에 도포할 수도 있고, 시트상 등의 성형물을 전극층을 형성하고자 하는 개소에 배치하고 80℃ 이상으로 가열하여, 당해 개소에 액상화한 조성물을 도포할 수도 있다. 또한, 가열 용융 온도는 충분한 유동성, 도포성 및 갭필성을 실현할 수 있는 한 특별히 제한되지 않으나, 80~150℃의 범위일 수 있으며, 경화 반응성을 갖는 경우에는, 특히 성분 (D)의 종류에 따라 가열 용융 온도를 선택하는 것이 바람직하다. 예를 들어, 성분 (D)로서 연화점 또는 유리 전이점이 120℃인 열가소성 수지를 이용한 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자이면, 80~120℃의 범위에서는 하이드로실릴화 반응 활성이 억제되기 때문에, 당해 온도 범위 내이면, 의도하지 않은 경화 반응을 수반하지 않고, 본 조성물을 가열 용융에 의해 전극층을 형성하고자 하는 개소에 도포할 수 있는 이점이 있다.

[0146] 본 조성물은 경화 반응성의 조성물이며, 임의의 가열 용융 후에 전극층을 형성하고자 하는 개소에 도포(시트 등의 성형물인 경우에는 전극층 형성 개소에의 배치 후의 가열 용융에 의한 도포를 포함한다)하고, 당해 도포와 동시 또는 도포 후에 경화 반응을 진행시켜, 경화물로 이루어진 전극층을 형성할 수 있다. 성분 (C), (D)를 사용하는 경우, 경화 반응은 하이드로실릴화 반응이며, 성분 (D)의 종류에 따라, 가열 경화 반응, 고에너지선의 조사에 의한 경화 반응 및 이들의 조합을 선택할 수 있다.

[0147] 가열 경화 반응의 온도는 특별히 한정되지 않으나, 50℃ 이상 200℃ 이하가 바람직하고, 60℃ 이상 200℃ 이하가 보다 바람직하고, 80℃ 이상 180℃ 이하가 더욱 바람직하다. 또한, 경화 반응에 들이는 시간은 통상 1초 이상 3시간 이하이다. 일반적으로는, 90~180℃의 범위 내에서 10초~30분 유지함으로써 경화물을 얻을 수 있다. 또한, 상기와 같이 특정 연화점 또는 유리 전이점을 갖는 열가소성 수지를 이용한 백금 함유 하이드로실릴화 반응 촉매를 포함하는 열가소성 수지 미립자를 성분 (D)로서 선택한 경우, 당해 열가소성 수지(벽재)의 연화점 또는 유리 전이점 이하의 온도에서는 경화 반응이 진행되지 않고, 그 이상의 온도에서 가열함으로써 경화 반응이 신속하게 진행되기 때문에, 경화 반응의 온도에 따른 컨트롤이 용이하다는 이점을 갖는다.

[0148] 성분 (D)의 적어도 일부가 상기 고에너지선 활성화 촉매인 경우, 본 조성물은 고에너지선의 조사를 트리거로 하여 경화 반응이 진행된다. 경화 반응에 사용될 수 있는 활성 에너지선으로서는, 자외선, 전자선 및 방사선 등을 들 수 있으나, 실용성의 점에서 자외선이 바람직하다. 자외선에 의해 경화 반응을 수행하는 경우에는, 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 아주 적합하며, 그 때의 조사량은 100~8,000 mJ/cm^{2}가 바람직하다.

[0149] 전극층의 두께나 형상은 소망에 따라 적절히 설계 가능하지만, 상기 부피 저항값(도전성)을 갖는 경우, 박막상이며, 그의 평균 두께가 아주 적합하게는 1~100 μm의 범위에 있을 수 있다.

[0150] 상기 경화 반응에 의해 얻어진 전극층은 점탄 특성이 우수하며, 또한 경화물이기 때문에 전극층 자체의 기계적 강도 및 기재에 대한 밀착성 및 추종성 등이 더욱 향상되는 경향이 있으며, 당해 경화물인 전극층을 이용함으로써, 그 추종성과 형상 유지성이 특히 우수하다는 이점을 갖는다. 또한, 경화 반응의 컨트롤이 용이하기 때문에, 무용매 프로세스를 포함하는 유연한 프로세스 설계가 가능하다.

[0151] [본 조성물의 사용: 적층체 및 유전층]

[0152] 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층은 원하는 반도체용 부재 및 전자 부품 등에 사용할 수 있고, 반도체 칩, 전자 회로나 반도체(광반도체를 포함한다) 장치 등의 전자 부품 등에 특별히 제한없이 사용할 수 있으며, 당해 전극층을 구비한 적층체를 형성할 수 있다. 특히, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층은 내열성, 내구성, 접착성에 더하여, 점탄 특성의 온도 의존성이 우수하기 때문에, 특히 유전성 엘라스토머 시트 상에 본 조성물을 사용하여 이루어진 전극층을 형성시킨 경우, 그의 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 액추에이터와 같이 고도의 물리적 변위를 전제로 한 트랜스듀서에 이용한 경우에도 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어려운 적층체가 형성 가능하다. 또한, 유전성 엘라스토머 시트의 종류도 특별히 제한되는 것은 아니지만, 오가노폴리실록산 경화물 필름인 유전층이 그의 기계적 강도, 내열성, 유연성 및 전기 화학적 특성의 점에서 특히 바람직하다.

[0153] 구체적으로는, 본 조성물을 사용하여 얻어지는 전극층을 구비한 적층체는 (L1) 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름의 적어도 한쪽 면에, (L2) 상기 핫멜트형 전극층 형성성 오가노폴리실록산 조성물로 이루어진 전극층이 적층된 구조를 갖는 적층체인 것이 바람직하다.

[0154] 폴리실록산 골격을 갖는 오가노폴리실록산 경화물은 투명성, 전기 절연성, 내열성, 내한성 등이 우수하며, 소망에 따라 플루오로알킬기 등의 고유전성 관능기를 도입함으로써 전기 활성을 개선할 수 있으며, 또한 필름상 또는 시트상으로 용이하게 가공할 수 있기 때문에, 각종 전기·전자 디바이스에 이용하는 접착제 필름이나 액추에이터 등의 트랜스듀서 디바이스에 이용하는 전기 활성 필름으로서, 특히 유전층으로서의 이용에 적합하다.

[0155] 오가노폴리실록산 경화물 필름의 경화 메커니즘은 하이드로실릴화 반응 경화형, 축합 반응 경화형, 퍼옥사이드 경화형 등으로 분류되는데, 실온 방치 혹은 가열에 의해 신속하게 경화하며, 부생물을 발생시키지 않기 때문에, 하이드로실릴화 반응 경화형의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 사용하는 오가노폴리실록산 경화물 필름이 특히 바람직하다.

[0156] 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름은 박막상이며, 필름의 평균 두께가 아주 적합하게는 1~200 μm의 범위에 있는 것이고, 평균 두께가 1~150 μm의 범위에 있는 것이 바람직하고, 평균 두께가 1~100 μm의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다. 여기서, 필름의 평균 두께는 필름 중앙의 두께의 평균값이다. 아주 적합하게는, 상기 오가노폴리실록산 경화물 필름은 균일하면서도 평탄하고, 필름의 폭방향에 대해 말단의 두께와 중앙의 두께의 차가 5.0% 이내이며, 필름 중앙의 두께의 평균값이 5~200 μm의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다.

[0157] 마찬가지로, 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름은 그의 임의의 개소에서 15 ㎜×15 ㎜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 인가한 경우, 절연 파괴가 일어나기 쉽게 되어, 필름 전체의 절연 파괴 강도가 현저하게 저하되는 경우가 있다.

[0158] 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름은 실온에서 측정되는 절연 파괴 강도가 56 V/μm~200 V/μm의 범위이며, 58 V/μm~100 V/μm의 범위인 것이 보다 바람직하다. 또한, 본 발명의 오가노폴리실록산 경화물 필름은 임의로 플루오로알킬기 등의 고유전성 관능기의 도입량 및 고유전성 필러의 사용 등에 의해, 1 kHz, 25℃에서의 필름 전체의 비유전율을 용이하게 3 이상, 4 이상, 5 이상 또는 6 이상으로 설계할 수도 있다.

[0159] 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름은 2.0 ㎜ 두께의 시트상으로 가열 성형한 경우, JIS K 6249를 기초로 측정되는 이하의 역학 물성을 갖도록 설계 가능하다.

[0160] (1) 영률(MPa)은 실온하에서 10 MPa 이하로 할 수 있으며, 특히 아주 적합한 범위는 0.1~2.5 MPa이다.

[0161] (2) 인열 강도(N/mm)는 실온하에서 1 N/mm 이상으로 할 수 있으며, 특히 아주 적합한 범위는 2 N/mm 이상이다.

[0162] (3) 인장 강도(MPa)는 실온하에서 1 MPa 이상으로 할 수 있으며, 특히 아주 적합한 범위는 2 MPa 이상이다.

[0163] (4) 파단 신율(%)은 50% 이상으로 할 수 있으며, 특히 아주 적합한 범위는 100-1000%의 범위이다.

[0164] 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름을 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 사용하는 경우에는, 23℃에서의 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.

[0165] 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름은 상기와 같이, 1매당 평균 두께가 1~200 μm의 범위에 있는 것이지만, 복수의 필름을 중첩시켜 200 μm를 초과하는 적층 필름으로 하여 유전층을 형성하는 목적으로 사용할 수도 있다.

[0166] [적층체의 형성]

[0167] 상기 적층체는 예를 들어 공정 I: 경화에 의해 유전층을 부여하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 경화시킴으로써, 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름을 얻는 공정, 공정 II: 공정 I과 동시 또는 공정 I 후, 공정 I에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름 상 또는 그의 전구체 상에, 상기 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 임의로 가열 용융한 후에 도포하고, 경화 반응에 의해 전극층을 형성하는 공정을 구비하는 적층체의 제조 방법에 의해 아주 적합하게 얻을 수 있다. 또한, 공정 II에서의 도포는 조성물이 실온에서 액상이면 그대로 임의의 수단에 의해 도포할 수 있으며, 조성물이 핫멜트형이면, 핫 디스펜스 등에 의해, 유전층 또는 그의 전구체 상으로 전극층을 형성하고자 하는 개소에 가열 용융한 조성물을 도포하는 공정 외에, 시트상 등의 성형물을 유전층 또는 그의 전구체 상으로 전극층을 형성하고자 하는 개소에 배치하고 80℃ 이상으로 가열하여, 당해 개소에 액상화한 조성물을 도포하는 공정이 포함된다. 또한, 전극층의 형성에는, 가열 용융 후의 조성물의 냉각에 의한 건고에 의한 전극층의 형성 및 가열 용융 후의 조성물의 경화 반응에 의한 경화물인 전극층의 형성이 포함된다.

[0168] 특히, 상기 공정 I에 관한 유전층의 형성에 관한 경화 반응 및 공정 II에 관한 전극층의 형성이 경화물의 형성을 수반하는 경화 반응이며, 또한 이들 경화 반응이 모두 하이드로실릴화 반응을 포함하는 경우, 유전층의 형성에 관한 경화성 오가노폴리실록산 조성물 또는 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합의 합계량 1몰에 대하여, 오가노하이드로겐폴리실록산 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자(이하, 「SiH/Vi비」라고 생략하는 경우가 있다)가 서로 상이한 조성물을 선택함으로써, 유전층 및 전극층의 계면에서 양 층이 하이드로실릴화 반응에 의해 화학적으로 결합한 구조를 부여하여, 본 발명에 관한 전극층의 유전층에 대한 추종성과 형상 유지성을 더욱 개선하고, 전극층의 박리나 결함의 발생을 억제할 수 있는 경우가 있다.

[0169] 일 예로서, 본 발명에 관한 전극층 형성성 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 대하여, 그 SiH/Vi비($[SiH/Vi]_{Elec}$)가 0.2몰 이상이고 1.5몰 이하이며, 아주 적합하게는 0.3몰 이상이고 1.2몰 이하이며, 보다 아주 적합하게는 0.3몰 이상이고 1.0몰 이하이며, 유전층을 형성하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 대하여, 그의 SiH/Vi비($[SiH/Vi]_{DEAP}$)에 대하여 $[SiH/Vi]_{Elec}/[SiH/Vi]_{DEAP}$의 값이 0.33~0.85, 0.50~0.75, 0.58~0.67의 범위가 되는 것이 특히 바람직하다. 즉, 유전층을 형성하는 조성물이 어느 정도 SiH 과잉인 조합이 특히 바람직하다. 이들 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 하이드로실릴화 반응에 의해 경화한 경우, 그의 계면에서, 유전층 측에 존재하는 과잉량의 SiH기가, 전극층 형성성 오가노폴리실록산 조성물 중의 탄소-탄소 이중 결합을 포함하는 경화성 반응기와 양 층의 계면에서 하이드로실릴화 반응하기 쉬워져, 양 층이 화학적으로 결합한 구조를 부여하기 쉽게 되기 때문이다. 당해 제조 방법은 트랜스듀서용 부재에서의 전극층의 형성 방법으로서 특히 유용하며, 유전층과 전극층이 견고하게 접합되어, 그의 접착 강도 및 추종성의 부족에 수반하는 박리나 결함의 문제를 발생시키기 어려운 적층체, 전자 부품 또는 표시 장치의 부재를 공업적으로 용이하게 제공할 수 있다.

[0170] 본 발명에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름의 적층체는 전자 재료, 표시 장치용 부재 또는 트랜스듀서용 부재(센서, 스피커, 액추에이터 및 제너레이터용을 포함한다)로서 유용하며, 특히 전극층을 구비한 전기 활성 필름(고유전성 필름을 포함한다)으로서, 전자 부품 또는 표시 장치의 부재로서 아주 적합하게 사용 가능하다. 또한, 상기와 같이, 절연 파괴 강도가 높은 전기 활성 필름은 단층 또는 적층 필름의 형태로 하여 액추에이터 등의 트랜스듀서용 부재에 아주 적합하고, 또한 본 발명에 관한 전극층은 가열 용융을 수반하는 무용제 공정이나 전극 프린트 공정이더라도 특별히 제한없이 유전층 상에 형성할 수 있고, 또한 유전층인 오가노폴리실록산 경화물 필름에 대한 추종성과 형상 유지성이 현저하게 우수하여, 전극층의 박리나 결함의 문제를 발생시키기기 어렵

다는 특징을 구비하기 때문에, 고전압하에서 기동하는 액추에이터 용도로 특히 유용하다.

[0171] 또한, 본 발명에 관한 오가노폴리실록산 경화물 필름의 적층체는 상기 유전층의 편면에 전극층을 구비하며, 이들 층이 교대로 적층되어, 외측에 전극층이 배치된 전체 또는 부분 구조를 구비하는 것이 바람직하다. 또한, 본 발명에 관한 적층체는 본 발명에 관한 전극층과, 단층 또는 다층의 유전층 외에, 트랜스듀서 내에 배치할 목적으로 사용하는 감압 접착층이나, 임의로 박리면을 구비할 수도 있는 비실리콘계의 열가소성 수지층을 구비할 수도 있다.

[0172] **실시예**

[0173] 이하, 본 발명에 관하여 실시예를 들어 설명하지만, 본 발명이 이들에 의해 한정되는 것은 아니다. 이하에 나타내는 실시예에서는 하기 화합물을 사용했다.

[0174] ·성분 (a1-1): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 폴리머(비닐기 함유량: 0.09 질량%, 실록산 중합도: 835)

[0175] ·성분 (a1-2): 양말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 폴리머(비닐기 함유량: 1.53 질량%, 실록산 중합도: 45)

[0176] ·성분 (b-1): 트리메틸실록시 단위(M) 및 비닐디메틸실록시 단위(^{Vi}M)와 4관능 실록시 단위(Q, $SiO_{4/2}$) 단위로 구성되는 비닐기 함유 MQ 레진(비닐기 함유량: 1.9 질량%, 테트라하이드로푸란을 용매로 사용하여, GPC(겔 침투 크로마토그래피)로 측정한 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량인 $Mw=2.4\times10^4$)

[0177] ·성분 (b-2): 트리메틸실록시 단위(M)와 4관능 실록시 단위(Q, $SiO_{4/2}$) 단위로 구성되는 MQ 레진(톨루엔을 용매로 사용하여, GPC로 측정한 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량인 $Mw=6.4\times10^3$)

[0178] ·성분 (c-1): 양말단 디메틸하이드로실록시기 봉쇄, 디메틸실록산 폴리머(규소 결합 수 함유량: 0.123 질량%)

[0179] ·성분 (c-2): 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄, 디메틸실록시-메틸하이드로실록시-실록산 코폴리머(규소 결합 수 함유량: 0.71 질량%).

[0180] ·성분 (d1): 백금 촉매 함유 열가소성 수지 미립자를 포함하는 마스터배치(*) 하기 참고예에 나타내는 방법에 의해 조제한 백금 촉매 함유 미립자를 포함하는 마스터배치(백금 금속 농도는 0.16 질량%)

[0181] [참고예(백금 촉매 함유 열가소성 수지 미립자를 포함하는 마스터배치의 조제)]

[0182] 교반기 장착 플라스크에 비스페놀 A형의 열가소성 폴리카보네이트 수지(유리 전이 온도(Tg) 145℃; 벽재) 900 g, 톨루엔 500 g, 디클로로메탄 4600 g을 투입하고 균일하게 혼합했다. 이것에 백금(0가) 디비닐테트라메틸디실록산 착체의 디비닐테트라메틸디실록산 용액(백금 금속 농도는 5 질량%) 44.4 g을 가하고 혼합하여, 균일한 용액을 얻었다. 이 용액을, 질소 가스를 열 기류로 한 스프레이 드라이어를 이용해 분무·건조함으로써, 구상의 백금 촉매 함유 열가소성 수지 미립자(평균 입자 지름은 1.1 μm) 450 g을 얻었다.

[0183] <도전 필러>

[0184] ·성분 (e): 단층 카본 나노튜브(SWCNT, 양말단 트리메틸실록시기 봉쇄 디메틸실록산 폴리머 중 10 질량%, TUBALL(TM) MATRIX 601)

[0185] <하이드로실릴화 반응 억제제>

[0186] ·성분 (f): 1-에티닐사이클로헥산올

[0187] [실시예 1~3]

[0188] 표 1(실시예)에 각 실험예의 조성을 나타냈다. 각 성분에 대응하는 수치는 질량%이며, 그의 총합은 100 질량%이다. 또한, 이하의 실시예에서는, 조성물 중의 비닐기(불포화 탄화수소기, 이하 동일) 1몰당, 성분 (c)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 0.46~1.00몰이 되는 범위의 량으로 사용했다. 또한, 표 1에 이하의 방법으로 측정한 경화 전 또는 경화 후의 물성을 나타냈다.

[0189] [각 성분의 부피 분율]

[0190] 본 발명에서는 조성 중의 각 성분의 진밀도를 이하와 같이 규정하고, 부피 분율을 산출했다. 성분 (b)는 1.23

g/cc, 성분 (e) 중의 단층 카본 나노튜브(SWCNT)는 1.58 g/cc, 그 이외의 성분은 0.98 g/cc로 했다.

[0191] [성분 (b)의 Mw]

[0192] 성분 (b)를 블렌드하여 사용했을 때의 Mw를 이하와 같이 하여 산출했다.

$$Mw = \sum_{k=1}^{n} (Mwk \times wfk)$$

[0193] (1)

[0194] 상기 식 (1) 중, Mwk와 wfk는 각각 k번째의 성분 (b)의 Mw와 전체 성분 (b) 중의 중량 분율.

[0195] [샘플 제작]

[0196] 성분 (d) 이외를 300 cc의 광구 유리 샘플병에 계량 후, 125℃의 오븐에서 약 30분 가열했다. 그 후, 180℃로 가열한 핫 플레이트 상에서, 샘플병 벽면의 부착물을 긁어 떨어뜨리는 조작을 하면서 전동 교반기로 30분 이상 혼합했다. 냉각 후, 성분 (d)를 첨가하고, 120℃로 가열한 핫 플레이트 상에서, 동일하게 긁어 떨어뜨리는 조작을 하면서 전동 교반기로 30분 이상 혼합했다. 그 후, 혼합물을 100 cc의 HDPE 용기로 옮기고, 110℃의 오븐에서 10분 이상 가열했다. 오븐에서 꺼내고, 신키(THINKY) 믹서(ARE-310)를 사용하여 2000 RPM의 회전 속도로 4분 이상 혼합을 수행했다.

[0197] [점탄성 측정]

[0198] 저장 탄성률을 점탄성 측정 장치(안톤 파사(Anton Paar GmbH) 제품, 모델 번호 MCR302)로 측정했다. 120℃로 가열한 펠티에 소자 온도 제어 시스템을 갖는 하부 플레이트 상에 각 경화성 조성물을 적당량 올려 놓고, 직경 15 mm의 페럴렐 플레이트(parallel plate)를 사용하여 샘플을 약 1.5 mm 두께가 되도록 세팅했다. 주파수 1 Hz 및 변형 0.1%의 조건하에 매분 3℃로 -20℃까지 냉각 후, 150℃까지 승온하고, 180분간 유지하여 경화시켰다. 또한, 냉각과 승온을 한번 더 반복했다. 25℃ 및 110℃에서의 경화 전후의 저장 탄성률(G') 및 손실 정접(tan δ)을 표 1에 나타낸다. 또한, 110℃에서의 경화 전의 G'와 25℃에서의 경화 전의 G'의 값의 비가 0.5 이하이면 가열함으로써 가공성이 높아지는 것을 의미한다.

[0199] [경화물의 제작]

[0200] 금속판 상에 세로 50 mm×가로 50 mm×두께 2 mm의 금형을 두고, PTFE 필름(150미크론 두께)을 그 위에 설치했다. 각 조성물의 적당량을 PTFE 필름 상에 올려 놓고, 120℃의 오븐에서 30분 이상 가열했다. 오븐으로부터 취출하고, PTFE 필름을 조성물 상에 설치하고, 추가로 금속판으로 끼워 넣었다. 그 후, 150℃에서 15분간 프레스 큐어하고, 다시 150℃에서 45분간 오븐 중 포스트 큐어를 실시하여, 시트상 경화물을 얻었다.

[0201] [경화물 중의 용제 성분 농도 측정]

[0202] 헤드 스페이스 가스 크로마토그래프(GC, Agilent GC-7890B/Agilent 7697A)를 이용하여 측정을 수행했다. 이때, 각 용제 성분에 대하여, 미리 첨가량과 GC의 면적값의 검량선을 작성했다. 각각 약 1 g의 경화물 샘플을 사용하여, 2회의 측정을 수행했다. 표 1에 그의 평균값을 나타낸다. 어느 실시예에서도, 극히 적은 양의 잔류 용매 성분 밖에 포함하지 않는 것을 알 수 있다.

[0203] [표 1]

실시예		1	2	3
성분 (a1-1)		23.72	29.57	84.24
성분 (a1-2)				
성분 (b1)		19.37	17.49	
성분 (b2)		35.98	32.49	
성분 (c1)		5.57	5.10	
성분 (c2)				0.41
성분 (d)		0.24	0.24	0.24
성분 (e)		15.11	15.11	15.11
성분 (f)		0.01	0.01	0.01
SiH/Vi		0.46	0.46	1.00
성분 (e) 중의 단층 카본 나노튜브(SWCNT) 부피 분율		0.011	0.010	0.009
성분 B 부피 분율		0.50	0.45	0
성분 B Mw		1.3×10^4	1.3×10^4	NA
G'25℃ (Pa)	경화 전	2.8×10^5	1.8×10^5	1.3×10^4
	경화 후	2.7×10^6	1.8×10^6	6.8×10^4
tan δ 25℃	경화 전	0.71	0.43	0.27
	경화 후	0.37	0.32	0.26
G'110℃ (Pa)	경화 전	6.2×10^4	6.9×10^4	9.8×10^3
	경화 후	4.0×10^5	4.4×10^5	6.3×10^4
tan δ 110℃	경화 전	0.29	0.25	0.16
	경화 후	0.44	0.36	0.18
경화 전 G'110℃/G'25℃		0.22	0.38	0.75
경화 후 G'110℃/G'25℃		0.15	0.24	0.93
VR/Ωcm		6.3×10^1	9.2×10^1	5.0×10^1
벤젠량 ppm		0.6	0.8	1.0
톨루엔량 ppm		0.3	0.2	1.0
에틸벤젠량 ppm		<0.1	<0.1	<0.1
크실렌량 ppm		<0.1	<0.1	<0.1

[0204]

[0205] [총괄]

[0206] 상기와 같이, 실시예 1 및 실시예 2에서, 조성물의 점탄성의 온도 의존성은 경화 전후에 높고, 경화 전후 G' 110℃와 G' 25℃의 값의 비가 0.5 이하이다. 따라서, 이들 실시예에 관한 조성물은 유기 용매를 실질적으로 함유하지 않고, 또한 가열함으로써 연화하기 쉽고, 경화 전 핫멜트 후의 도공성이 우수하기 때문에, 무용제형이더라도 균일하게 유전층 상에 도포하여 전극층을 형성 가능하다.

[0207] 성분 (B)를 포함하지 않는 실시예 3에서는 유기 용매를 실질적으로 함유하지 않고, 균일 도포하는 것이 가능하며, 또한 가열 경화시킴으로써, 적절한 점탄성을 부여하는 것이 가능하고, 특히 고온하(110℃)이더라도 온도 변화에 대해 점탄성의 변화율이 작아, 점탄성의 온도 의존성이 작은 전극층을 형성할 수 있었다.

[0208] 또한, 각 실시예에서, 가열 용융 후에, 성분 (d)의 벽재의 유리 전이점(Tg) 이상의 온도에서 가열 경화시킴으로써, 적절한 점탄성을 갖는 경화물인 전극층(필름)을 얻을 수 있다. 여기서, 실시예 1~3에서의 각 전극층 시트의 부피 저항률은 10^2 Ωcm 이하로 낮게 유지되고 있으며, 액추에이터를 비롯한 각종 트랜스듀서 용도의 전극층

으로서, 상기 점탄 특성에 더하여 도전성에 있어서도 우수한 성능을 갖는 것이었다. 또한, 이들 조성물 및 경화에 의해 얻어지는 전극층은 잔류 용매 성분량이 극히 적기 때문에, 액추에이터를 비롯한 각종 트랜스듀서를 제조하는 과정에서의 용제 폭로, 용제 잔류에 의한 절연 파괴 등의 특성 저하, 또는 성능 저하를 방지하는 것이 가능하게 될 것으로 기대된다.