

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2010-508377  
(P2010-508377A)

(43) 公表日 平成22年3月18日(2010.3.18)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
<b>C08G 77/50</b> (2006.01)	C08G 77/50	2 H 038
<b>C08K 5/05</b> (2006.01)	C08K 5/05	2 H 147
<b>C08K 5/5415</b> (2006.01)	C08K 5/5415	4 F 071
<b>C08J 5/00</b> (2006.01)	C08J 5/00	4 J 002
<b>G02B 1/04</b> (2006.01)	G02B 1/04	4 J 246

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 51 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2009-526648 (P2009-526648)	(71) 出願人	596012272 ダウ・コーニング・コーポレイション アメリカ合衆国 48686 ミシガン州ミド ランド、ウェスト・サルツバーグ・ロード 2200
(86) (22) 出願日	平成19年8月23日 (2007.8.23)	(74) 代理人	100064908 弁理士 志賀 正武
(85) 翻訳文提出日	平成21年4月24日 (2009.4.24)	(74) 代理人	100089037 弁理士 渡邊 隆
(86) 國際出願番号	PCT/US2007/018648	(74) 代理人	100108453 弁理士 村山 靖彦
(87) 國際公開番号	W02008/027280	(74) 代理人	100110364 弁理士 実広 信哉
(87) 國際公開日	平成20年3月6日 (2008.3.6)		
(31) 優先権主張番号	11/467,832		
(32) 優先日	平成18年8月28日 (2006.8.28)		
(33) 優先権主張国	米国(US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】光学部品およびシリコーン組成物および光学部品の成型方法

## (57) 【要約】

硬化して硬化シリコーン樹脂を形成するシリコーン組成物は、光学部品、例えば光学導波路、導光体、およびLEDパッケージなどを製造するために用いられている。光学部品は射出成形プロセスを含む各種のプロセスによって製造可能である。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(A) 1分子あたり平均して、少なくとも2個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサン；

(B) 1分子あたり平均して、少なくとも1個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサン；

(C) 1分子あたり平均して少なくとも2個のケイ素結合水素原子および少なくとも1個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサン、

(D) ヒドロシリル化触媒

からなる組成物の硬化物からなる導光体であって、デュロメータ・ショアAで測定して少なくとも50の硬さを有し、かつ1.40より大きな屈折率を有する導光体。

## 【請求項 2】

前記成分(A)が式  $R^1_3SiO - (R^2_2SiO)_a - SiR^1_3$  (ここで、各  $R^1$  および各  $R^2$  は独立して、脂肪族不飽和有機基、芳香族基、および芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基からなる群から選ばれ、下付き文字  $a$  は成分(A)に25で10から1,000,000 MPa・sまでの範囲の粘度を与えるに十分な値を有する整数であり、ただし平均して  $R^1$  および / または  $R^2$  の少なくとも2個が不飽和有機基であり、かつ  $R^1$  および / または  $R^2$  の少なくとも1個は芳香族基である)を有する、請求項1に記載の導光体。

## 【請求項 3】

前記成分(B)が単位式  $(R^3SiO_{3/2})_b (R^3_2SiO_{2/2})_c (R^3_3SiO_{1/2})_d (SiO_{4/2})_e (XO_{1/2})_f$  (ここで、各  $R^3$  は独立して、脂肪族不飽和有機基、芳香族基、および芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基からなる群から選ばれ、ただし1分子あたり平均して、 $R^3$  の少なくとも1個は脂肪族不飽和有機基で、かつ  $R^3$  の少なくとも1個は芳香族基であり； $X$  は水素原子または一価炭化水素基であり； $b$  は正数であり； $c$  は0または正数であり； $d$  は0または正数であり； $e$  は0または正数であり； $f$  は0または正数であり； $c/b$  は0から10までの範囲の数であり； $d/b$  は0から0.5までの範囲の数であり； $e/(b+c+d+e)$  は0から0.3までの範囲の数であり； $f/(b+c+d+e)$  は0から0.4までの範囲の数である)を有する、請求項1に記載の導光体。

## 【請求項 4】

前記成分(C)が、単位式  $(R^5SiO_{3/2})_h (R^5_2SiO_{2/2})_i (R^5_3SiO_{1/2})_j (SiO_{4/2})_k (XO)_m$  (ここで、 $X$  は水素原子または一価炭化水素基であり；各  $R^5$  は独立して、水素原子、芳香族基、または芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし平均して1分子あたり  $R^5$  の少なくとも2個は水素原子で、平均して  $R^5$  の少なくとも1個は芳香族基であり； $h$  は正数であり； $i$  は0または正数であり； $j$  は0または正数であり； $k$  は0または正数であり； $m$  は0または正数であり； $i/h$  は0から10までの範囲の値を有し； $j/h$  は0から5までの範囲の値を有し； $k/h$  は0から5までの範囲の値を有し；そして  $m/(h+i+j+k)$  は0から0.3までの範囲の値を有し； $m/(h+i+j+k)$  は0から0.4までの範囲の値を有する)の分岐状ポリオルガノ水素シロキサンからなる、請求項1に記載の導光体。

## 【請求項 5】

前記成分(D)が、白金とオルガノポリシロキサンとの錯体からなる、請求項1に記載の導光体。

## 【請求項 6】

前記組成物がさらに、(E)シリル化アセチレン性抑制剤、(F)離型剤、(G)光学活性剤、(H)充填剤、(I)接着促進剤、(J)熱安定剤、(K)難燃性付与剤、(L)反応性希釈剤、(M)抑制剤、(N)顔料、(O)難燃剤、(P)酸化防止剤、およびそれらの組合せからなる群から選ばれる追加的成分を含む、請求項1に記載の導光体。

## 【請求項 7】

10

20

30

40

50

前記成分( E )が存在し、成分( E )が有機アセチレンアルコール、シリル化アセチレンアルコール、およびそれらの組合せからなる群から選ばれる、請求項 6 に記載の導光体。

**【請求項 8】**

前記成分( F )が存在し、かつ式  $\text{H O R}^8_2 \text{SiO} - (\text{R}^8_2 \text{SiO})_n - \text{SiR}^8_2 \text{OH}$  (ここで、各  $\text{R}^8$  は独立して、芳香族基、または芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし平均して 1 分子あたり、 $\text{R}^8$  の少なくとも 1 個は芳香族基であり、 $n$  は 1 以上の値の整数である) を有する、請求項 7 に記載の導光体。

**【請求項 9】**

1.46 から 1.57 までの範囲の屈折率を有する、請求項 1 に記載の導光体。

10

**【請求項 10】**

前記導光体が、厚さ 5 mm の部分を 150 °で少なくとも 5 日間加熱したとき、ASTM D 1544 のガードナー・カラー・スケールで変化を示さない、請求項 1 に記載の導光体。

**【請求項 11】**

- a) 請求項 1 記載の導光体、
- b) 前記導光体の入り口に連結された光源、そして
- c) 前記導光体の出口に連結された有機光学部品  
からなる機器。

20

**【請求項 12】**

- i) (A) 1 分子あたり平均して、少なくとも 2 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサン；
- (B) 1 分子あたり平均して、少なくとも 1 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサン；
- (C) 1 分子あたり平均して少なくとも 2 個のケイ素結合水素原子および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサン、
- (D) ヒドロシリル化触媒

からなる組成物を成形し、そして

- i i) 前記組成物を硬化して導光体を形成する(ここで、前記導光体はデュロメータ・ショア A で測定して少なくとも 50 の硬さを有し、かつ前記導光体が 1.40 より大きな屈折率を有する)ことからなる方法。

30

**【請求項 13】**

前記工程 i ) が、射出成形、トランスファー成形、注型、押出成形、オーバーモールド、圧縮成形、およびキャビティ成形からなる群から選ばれた方法により行われる、請求項 12 に記載の方法。

**【請求項 14】**

前記工程 i i ) が工程 i ) の生成物を 50 °から 200 °までの範囲の温度に加熱することにより行われる、請求項 12 に記載の方法。

40

**【請求項 15】**

さらに、i i i ) 前記導光体を車両ライトに取り付けることを含む、請求項 12 に記載の方法。

**【請求項 16】**

請求項 12 に記載の方法により製造された導光体。

**【請求項 17】**

- 1) 型キャビティを有する金型を 100 °から 200 °までの範囲の温度に加熱し；
- 2) 離型剤を含むシリコーン組成物(前記組成物はこの方法での使用温度で 50 cps から 3,000 cps までの範囲の粘度を有する)のある量を、該シリコーン封止材組成物が組立部(アセンブリ)の外に逆流することを防ぐための組立部(アセンブリ)に供給し；

50

3) 前記シリコーン組成物を前記組立部(アセンブリ)からゲートを通って前記型キャビティに注入し(ここで、前記型キャビティは上端部と底部を有し

エアベントが前記型キャビティの上端部に位置し、

前記エアベントは0.1mmから1mmの幅で0.0001mmから0.001mmの深さの溝からなり、

前記ゲートが前記型キャビティの底部またはその近くに位置され、そして

注入が、1,000psiから10,000psiまでの範囲の圧力下で5秒以下の間に行われる)；

4) 前記シリコーン組成物を、前記型キャビティから前記シリコーン組成物の流出を防ぐために十分な時間、1,000psiから10,000psiで保持し；

5) 工程4)の生成物を硬化して導光体を形成し；そして

6) 前記導光体を車両ライトに取り付ける

ことからなる方法。

#### 【請求項18】

さらに、7)工程5)の後に、前記組立部(アセンブリ)に3,000psi以下の圧力を用いて再充填することを含む、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項19】

さらに、工程2)の前に型キャビティに離型剤を塗布することを含む、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項20】

前記シリコーン組成物が付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物である、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項21】

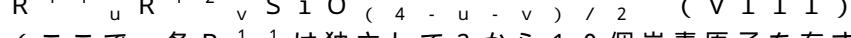
前記付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物が：

(Q) 100重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノポリシロキサン樹脂



(ここで、各R<sup>9</sup>は独立して脂肪族不飽和一価炭化水素基であり、各R<sup>10</sup>は独立してR<sup>9</sup>以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし1分子あたり少なくとも1個のR<sup>10</sup>は芳香族基であり、下付き文字sは0.09から0.16までの範囲の値を有し、そして下付き文字tは1.00から1.20までの範囲の値を有する；ただし、(i)前記オルガノポリシロキサン樹脂が脂肪族不飽和一価有機基および芳香族基を有し、(ii)前記オルガノポリシロキサン樹脂が、参照としてポリスチレンを用いたゲルクロマトグラフィーによる測定で3,000に等しいかそれを超える重量平均分子量を有する)；

(R) 10から50重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノオリゴシロキサン



(ここで、各R<sup>11</sup>は独立して2から10個炭素原子を有するアルケニル基であり、各R<sup>12</sup>は独立してR<sup>11</sup>以外の置換または非置換一価または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも10モル%のR<sup>12</sup>は芳香族基からなり；下付き文字uは0.60から0.80までの範囲の値を有し、そして下付き文字vは1.50から2.10までの範囲の値を有する；ただし、前記オルガノオリゴシロキサンは脂肪族不飽和一価有機基および芳香族基を有する)；

(C) 20から100重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノ水素オリゴシロキサンまたはオルガノ水素ポリシロキサン



(ここで、各R<sup>13</sup>は独立して、脂肪族不飽和一価有機基以外の置換または非置換一価または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも20モル%のR<sup>13</sup>は芳香族基からなり、下付き文字wは0.35から0.65までの範囲の値を有し、そして下付き文字xは0.90から1.70までの範囲の値を有する)；

(D) 触媒量のヒドロシリル化触媒；および

(F) 純型剤

10

20

30

40

50

からなり、ここで、前記付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は硬化して、ASTM D 2240 - 86 によって測定して、25で60から100、および150で40から100の硬さを有する物品を形成する、請求項20に記載の方法。

#### 【請求項22】

前記シリコーン組成物が

(A) 1分子あたり平均して、少なくとも2個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサン；

(B) 1分子あたり平均して、少なくとも1個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサン；

(C) 1分子あたり平均して少なくとも2個のケイ素結合水素原子および少なくとも1個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサン、および

(D) ヒドロシリル化触媒

からなる、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項23】

工程3)での時間が8.5から12.5秒である、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項24】

工程4)での時間が25から50秒である、請求項17に記載の方法。

#### 【請求項25】

請求項17に記載の方法により製造された導光体。

#### 【請求項26】

(Q) 100重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノポリシロキサン樹脂



(ここで、各R<sup>9</sup>は独立して脂肪族不飽和一価炭化水素基であり、各R<sup>10</sup>は独立してR<sup>9</sup>以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし1分子あたり少なくとも1個のR<sup>10</sup>は芳香族基であり、下付き文字sは0.09から0.16までの範囲の値を有し、そして下付き文字tは1.00から1.20までの範囲の値を有し；ただし、(i)前記オルガノポリシロキサン樹脂が脂肪族不飽和一価有機基および芳香族基を有し、(ii)前記オルガノポリシロキサン樹脂が参照としてポリスチレンを用いたゲルクロマトグラフィーでの測定で3,000に等しいかそれを超える重量平均分子量を有する)；

(R) 10から50重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノオリゴシロキサン



(ここで、各R<sup>11</sup>は独立して2から10個炭素原子を有するアルケニル基であり、各R<sup>12</sup>は独立してR<sup>11</sup>以外の置換または非置換一価または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも10モル%のR<sup>12</sup>は芳香族基からなり；下付き文字uは0.60から0.80までの範囲の値を有し、そして下付き文字vは1.50から2.10までの範囲の値を有する；ただし、前記オルガノオリゴシロキサンは脂肪族不飽和一価有機基および芳香族基を有する)；

(S) 20から100重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノ水素オリゴシロキサンまたはオルガノ水素ポリシロキサン：



(ここで、各R<sup>13</sup>は独立して脂肪族不飽和一価有機基以外の置換または非置換一価または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも20モル%のR<sup>13</sup>は芳香族基からなり；下付き文字wは0.35から0.65までの範囲の値を有し、そして下付き文字xは0.90から1.70までの範囲の値を有する)；

(D) 触媒量のヒドロシリル化触媒；および

(F) 離型剤

からなる組成物の硬化物(ここで、付加硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は硬化して、ASTM D 2240 - 86 によって測定して、25で60から100、および150で40から100の硬さを有する物品を形成する)からなる導光体。

#### 【請求項27】

10

20

30

40

50

前記成分( F )が一般式：

$R^{1/7}SiO(R^{1/7}SiO)_{aa}(R^{1/7}R^{1/8}SiO)_{bb}SiR^{1/7}_3$ （ここで、下付き文字 aa は 0 またはそれ以上の値を有し、下付き文字 bb は 1 以上の値を有し、ただし aa および bb は、離型剤が 100 から 3,000 cps の粘度を有するに十分な値を有し；各  $R^{1/7}$  は独立してアルキル基であり、そして  $R^{1/8}$  は独立して芳香族基である）を有する、請求項 26 に記載の導光体。

#### 【請求項 28】

前記平均組成式( VII )中、s が 0.10 から 0.15 までの範囲の値を有し、そして t が 1.00 から 1.15 までの範囲の値を有し；前記平均組成式( VII )中、u が 0.60 から 0.80 までの範囲の値を有し、そして v が 1.50 から 2.00 までの範囲の値を有し；前記平均組成式( IX )中、w が 0.35 から 0.65 までの範囲の値を有し、そして x が 1.30 から 1.70 までの範囲の値を有する、請求項 26 に記載の導光体。

10

#### 【請求項 29】

前記成分( R )が次の平均組成式で表示されるオルガノオリゴシロキサン：

$(R^{1/5}R^{1/6})_ySiR^{1/6}_{(4-y)}$ （ここで、各  $R^{1/5}$  は独立して脂肪族不飽和一価有機基であり、各  $R^{1/6}$  は独立して、 $R^{1/5}$  以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも 10 モル% の  $R^{1/6}$  は芳香族基からなり；そして下付き文字 y は 2 または 3 である）である、請求項 26 に記載の導光体。

20

#### 【請求項 30】

- a ) 請求項 26 に記載の導光体、
- b ) 前記導光体の入り口に連結された光源、そして
- c ) 前記導光体の出口に連結された有機光学部品からなる機器。

#### 【請求項 31】

- a ) シリコーン樹脂から製造された導光体、
- b ) 前記導光体の入り口に連結された光源、そして
- c ) 前記導光体の出口に連結された有機光学部品からなる機器。

30

#### 【請求項 32】

前記光学部品がレンズおよび有機導光体からなる群から選ばれる、請求項 31 に記載の機器。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【技術分野】

##### 【0001】

###### [関連出願]

本特許出願は、合衆国非仮特許出願番号 11/467,832 (2006 年 8 月 28 日出願) の優先権およびすべての利益を請求する。

40

##### 【0002】

###### [発明の技術分野]

光学部品、ならびにシリコーン組成物、ならびに光学部品、例えば導光体、光学導波路および LED パッケージなどの製造方法を開示する。導光体は、例えばヘッドランプなどの車両照明用途を含めて各種用途での使用に適している。

##### 【背景技術】

##### 【0003】

###### [発明の背景]

発光ダイオード(LED)は、白熱電球と比べて、小型化した大きさおよび削減されたエネルギー使用の利点を提供する。加えて、LED は白熱電球よりも長い寿命を有する。

LED が高ルーメン出力であるため、LED、特に高輝度 LED(HB LED) は、H

50

B L E D s が画面から奥まったところにある用途で有用である。そのような用途にはディスプレー用背面照明、自動車ランプ用途（例えば、ヘッドライトおよび尾灯）およびメッセージ・ボード用途がある。

#### 【0004】

導光体は H B L E D とともに光を画面に伝送するために使われている。導光体は各種大きさおよび形状、例えば広域の均質な照明用の平らな・平面的形状または定められた区域を照明するためのパイプ構造などを有する。

#### 【先行技術文献】

##### 【特許文献】

##### 【0005】

10

【特許文献1】米国特許第3,159,601号明細書

【特許文献2】米国特許第3,220,972号明細書

【特許文献3】米国特許第3,296,291号明細書

【特許文献4】米国特許第3,419,593号

【特許文献5】米国特許第3,516,946号明細書

【特許文献6】米国特許第3,814,730号明細書

【特許文献7】米国特許第3,989,668号明細書

【特許文献8】米国特許第4,784,879号明細書

【特許文献9】米国特許第5,036,117号明細書

20

【特許文献10】米国特許第5,175,325号明細書

【特許文献11】欧州特許第0347895B明細書

【特許文献12】米国特許第4,766,176号明細書

【特許文献13】米国特許第5,594,424号明細書

【特許文献14】米国特許第5,673,995号明細書

【特許文献15】米国特許第6,174,079号明細書

【特許文献16】米国特許第6,568,822号明細書

【特許文献17】米国特許出願公開2005/0213341号公報

【特許文献18】米国特許出願公開2006/0105485号公報

【特許文献19】国際公開第2005/033207号パンフレット

30

【特許文献20】国際公開第2006/033375号パンフレット

【特許文献21】国際公開第2005/017995号パンフレット

【特許文献22】米国特許第6,204,523号明細書

#### 【発明の概要】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0006】

40

##### [解決しようとする課題]

L E D は高い熱流束と高い光束の両方を発生することができる。L E D に連結されて使われた従来の有機導光体およびL E D パッケージ、例えばポリアクリル酸メチル（P M M A）、ポリカーボネート（P C）、またはシクロオレフィン共重合体（C O C）などから製造されたそれらは、熱および／または放射；紫外線（U V）および／または可視光に曝されたときに、不十分な安定性という欠点があり得る。有機導光体はそれが使われている機器の耐用期間中に透過率の低下という欠点があり得る。公知の導光体と比べて、導光体が使用されている機器の寿命時間を超えて改良された光学透過率を有する導光体の必要性がある。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0007】

##### [発明の概要と利点]

例えば導光体などの光学部品はここに記述するシリコーン組成物を用いて製造することができる。

#### 【0008】

50

## [ 詳細な説明 ]

全ての量、比およびパーセントのすべては、特に表示されていなければ、重量に基づく。以下が、本出願に使われている定義の一覧表である。

## 【 0 0 0 9 】

## 〔 定義 〕

## 【 0 0 1 0 】

単数として表した用語のそれぞれは、一つ以上を意味する。

## 【 0 0 1 1 】

略号「M」は、式  $R_3SiO_{1+2}$  のシロキサン単位（ここで、各 R は独立して、一価の原子または基を表す）を意味する。10

## 【 0 0 1 2 】

略号「D」は、式  $R_2SiO_{2+2}$  のシロキサン単位（ここで、各 R は独立して、一価の原子または基を表す）を意味する。

## 【 0 0 1 3 】

略号「T」は、式  $RSiO_{3+2}$  のシロキサン単位（ここで、R は一価の原子または基を表す）を意味する。

## 【 0 0 1 4 】

略号「Q」は、式  $SiO_{4+2}$  のシロキサン単位を意味する。

## 【 0 0 1 5 】

略号「Me」は、メチル基を表す。20

## 【 0 0 1 6 】

略号「Ph」は、フェニル基を表す。

## 【 0 0 1 7 】

略号「Vi」は、ビニル基を表す。

## 【 0 0 1 8 】

「組合せ」とは、任意方法により組み合わせられる二つまたはそれより多いものを意味する。

## 【 0 0 1 9 】

「導光体(lightguide)」とは、例えば LED などの点状の光源から、例えば目標線または目標面などのターゲットに、光を内面反射により運ぶ成形品を意味する。30

## 【 0 0 2 0 】

「シリル化アセチレン抑制剤」とは、アセチレンアルコールとシランとの任意の反応生成物を意味する。

## 【 0 0 2 1 】

## 〔 製造方法 〕

例えば導光体などの光学部品は、以下に述べるシリコーン組成物を用いて、i) シリコーン組成物を成形し、そして ii) 該シリコーン組成物を硬化させて例えば導光体などの光学部品を形成することからなる方法により製造することができる。工程 i) は、例えば射出成形、トランスファー成形、注型、押し出し成形、オーバーモールド、圧縮成形、そしてキャビティ成形などの方法により行ない得る。工程 ii) のために選ばれる方法は、製造される導光体の大きさや形状および選ばれるシリコーン組成物を含めた各種の因子に依存する。40

## 【 0 0 2 2 】

例となる成形方法において、工程 ii) が次の工程からなる方法により行なわれる：

- 1) 型キャビティを有する金型を 100 から 200 までの範囲の温度に加熱し；
- 2) この製造方法での使用温度で 50 °C から 3,000 °C の範囲の粘度を有するシリコーン組成物を、シリコーン組成物が組立部（アセンブリ）の外に逆流することを防ぐためのアセンブリに供給し；
- 3) シリコーン組成物をアセンブリからゲートを通じて型キャビティに注入し、（ここで、型キャビティは上端部と底部を有し

10

20

30

40

50

エアベントが型キャビティの上端部に位置し、  
エアベントは0.1mmから1mmの幅で0.0001mmから0.001mmまでの深さの溝からなり、  
ゲートが型キャビティの底部またはその近くに位置し、そして  
注入が1,000psiから10,000psi、あるいは2,000psiから6,000psiまでの範囲の圧力下で5秒以内の間に行われる);  
4)シリコーン組成物を1,000psiから10,000psiに型キャビティからシリコーン組成物の流出を防ぐために十分な時間保持し;  
5)工程4)の成形物を硬化させる。工程4)と5)は、得られた形状が金型から取り除くに十分な固化がなされるまで、行われる。

10

## 【0023】

該方法はさらに任意の工程を含むことがある。任意の工程6)は工程5)の成形物を後硬化することからなる。工程6)は成形プロセス温度よりも高い温度、例えば150から200の範囲の温度で加熱することにより行われる。任意の工程7)は、工程5)または工程6)(実在のときは)の後、アセンブリに3,000psi以下の圧力を用いて再充填することからなる。該方法は任意にさらに工程3)の前に、離型剤を型キャビティに塗布することを含むことがある。該方法は、光学部品、例えばレンズや導光体などを製造するために用いられる。レンズ(ディスクリート・レンズまたはオーバーモールド・レンズのいずれか)を例えばLEDパッケージに取り付けることもできる。導光体は、例えば車両照明用途に取り付けることができる。

20

## 【0024】

工程2)のアセンブリは、例えばスクリューチェックバルブアセンブリまたはプランジャーアセンブリであり得る。工程4)の時間は最長で15秒、あるいは8.5秒から12.5秒以下でよい。工程5)の時間は10秒から300秒、あるいは10秒から120秒、そしてあるいは25秒から50秒であり得る。プロセス工程は金型が加熱されている間に行われる。正確な温度は、選択されるシリコーン組成物の硬化挙動を含む各種の因子に依存するが、金型は100から200、あるいは150から200の範囲の温度に加熱されるのがよい。

## 【0025】

30

## [成形装置]

上記の方法は、射出成形装置を用いて行うのがよく、該装置は当技術では公知であり市販されている、例えばアメリカ合衆国コネティカット州ニューイングトンのアルバーグ社(Arburg, Inc.)からの液状射出成型機、モデルNo. 270S 250-60がある。図1は本発明の方法にて使用される液状射出成型プロセス装置100の略図である。液状射出成型プロセス装置100は、二液型シリコーン封止剤組成物の二液のための供給システム101を有する。二液は、供給タンク102、103から該二液を混合する静的ミキサー104に供給される。得られたシリコーン組成物は押し出し機105およびシリコーン組成物の逆流を防ぐアセンブリ110に入る。その後、シリコーン組成物は注入口107を通して、スプレーおよびランナーシステム(図示されていない)へと金型106内に押し進められる。金型106は各種の構造を有することになる。例えば、図2および3は、切断面線109に沿った断面図を表し、そして湾曲レンズ製造用金型106を示す。もう一つの方法として、一液型硬化性液体は、供給タンク102から直接押し出し機105およびアセンブリ110に(静的ミキサー104を迂回して)供給することができる。

40

## 【0026】

図2および3は、図1での切断線109に沿って金型106の対向する面の断面図を示す。金型106は型キャビティ201を有し、該型キャビティ201のそれぞれ上端部にはエアベント(ガス抜き口)がある。シリコーン組成物はスプレー203から金型106に入り、ランナー204を流れる。シリコーン組成物は型キャビティ201に、それぞれの型キャビティ201の底部のゲート205を通って入る。金型106の一つの面には、

50

型キャビティ 201 から突出する半球状のボタン 300 を保持する型キャビティ 201 を有する。ボタン 300 は湾曲に成形した形状に形成し、成形した形状の離型を容易にするために使われる。

#### 【 0027 】

##### [シリコーン組成物]

各種のシリコーン組成物が光学部品の製造に使われている。シリコーン組成物の成分は、該組成物を硬化して製造された導光体が所定の用途に対し所望特性を有することになるように、選択される。導光体は、例えばディスプレーの背面照明ユニット、車両照明用途（例；自動車外部照明用途、例えばヘッドライト、信号ランプ、尾灯、方向指示灯、前方照明、中央ハイマウント停止灯、制動灯、リアコンビネーションランプ、予備灯、フォグランプ、そしてパドル・ランプなど、および自動車室内照明用途、例えばマップランプ、読書灯、室内ドーム型ランプ、ドアーランプ、アンピアランス・ランプ、そしてダッシュボード背面照明など）、およびメッセージ・ボード用途で使用される。

10

#### 【 0028 】

シリコーン組成物を硬化して製造された硬化シリコーン樹脂は、デュロメータ・ショア A で測定して少なくとも 50 、あるいは少なくとも 60 の硬さを有する。シリコーン組成物が導光体を製造するために用いられる場合、硬化シリコーン樹脂はショア A で測定して少なくとも 50 、あるいはショア D では少なくとも 20 の硬さを有する。導光体は、少なくとも 1.5 mm 、あるいは 1.5 から 4 mm の範囲の厚さをもつ断面において、 400 nm の波長で 50 % より大きく、あるいは 80 % から 100 % 、あるいは 90 から 100 % の光学的透明度を有する。

20

#### 【 0029 】

ある導光体用途では、硬化したシリコーン樹脂は放射もしくは加熱または両方に曝されても黄変しないことがよい。例えば、硬化したシリコーン樹脂は、厚さ 5 mm の部分を 150 で少なくとも 5 日間加熱しても、 ASTM D 1544 のガードナー・カラー・スケールで、何の変化も示さない。導光体は、 150 で少なくとも 7 日間、あるいは 7 から 60 日間加熱しても、 20 % 以下、あるいは 15 % 以下の伝送損失しか有しないことがある（少なくとも 1.5 mm の厚さ、あるいは 1.5 mm から 100 mm の範囲の厚さ、あるいは 1.5 mm から 4 mm の範囲の厚さの部分で）。導光体の RI は 1.4 より大きく、あるいは導光体の RI は 1.46 から 1.57 の間である。 RI は、導光体を作るために用いられるシリコーン組成物中の芳香族基（例、フェニル）および非芳香族基（例、メチル）の量を変えることにより調節することができる。

30

#### 【 0030 】

もう一つの方法として、市販されている光学用シリコーン封止材組成物は上記段落 [ 0022 ] から [ 0026 ] に記載されている方法および装置に使用可能である。そのような光学用シリコーン封止材組成物には、米国ミシガン州ミッドランドのダウコーニングコードレーションのシルガード（登録商標） 184 がある。あるいは、米国特許第 6,509,423 号のオルガオノポリシロキサン樹脂組成物がこの方法に使用できる。

40

#### 【 0031 】

例となるシリコーン組成物は：

- (A) 一分子あたり平均して、少なくとも 2 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサン；
- (B) 一分子あたり平均して、少なくとも 1 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサン；
- (C) 一分子あたり平均して少なくとも 2 個のケイ素結合水素原子および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサン、及び
- (D) ヒドロシリル化触媒

からなる。

このシリコーン組成物は硬化して、 1.40 より高い屈折率を有する硬化シリコーン樹脂を形成することができる。このシリコーン樹脂は硬化して、 200 で 14 日間の加熱

50

後 2 . 0 mm 以下の厚さで 4 0 0 nm の波長にて 95 % より高い光透過性、あるいは 200 で 14 日間の加熱後 1 . 8 mm の厚さで 4 0 0 nm の波長にて 95 % より高い光透過性を有する硬化シリコーン樹脂を形成することができる。

### 【 0 0 3 2 】

#### [ 成分 ( A ) ポリオルガノシロキサン ]

成分 ( A ) は一分子あたり平均して、少なくとも 2 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサンである。成分 ( A ) は単一ポリジオルガノシロキサン、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なるポリジオルガノシロキサンの二種以上からなる組合せでもよい。成分 ( A ) の粘度は重大ではないが、シリコーン組成物から製造された硬化シリコーン樹脂の取扱適正を改善するために、粘度は 25 で 10 から 1 , 0 0 0 , 0 0 0 mPa · s 、あるいは 100 から 50 , 0 0 0 mPa · s の間がよい。該組成物中の成分 ( A ) の量は、組成物の合計重量に基づいて、10 から 40 、あるいは 15 から 30 重量部の範囲である。

10

### 【 0 0 3 3 】

成分 ( A ) 中の脂肪族不飽和有機基は、以下に限定されないが、ビニル、アリル、ブチニル、およびヘキセニルによって例示されるアルケニルであり、あるいはビニルである。脂肪族不飽和有機基は、以下に限定されないが、エチニル、プロピニル、およびブチニルによって例示されるアルキニルである。成分 ( A ) 中の脂肪族不飽和有機基は末端位、側鎖位、または末端位と側鎖位の両方に位置にすることができる。成分 ( A ) の芳香族基は末端位、側鎖位、または末端位と側鎖位の両方に位置にすることができる。芳香族基は、以下に限定されないが、エチルベンジル、ナフチル、フェニル、トリル、キシリル、ベンジル、スチリル、1 - フェニルエチル、および 2 - フェニルエチルによって例示され、あるいはフェニルである。成分 ( A ) は一分子あたり平均して少なくとも 1 個の芳香族基を有する。しかし、成分 ( A ) は 40 モル % を超え、あるいは 45 モル % を超える芳香族基を有する。

20

### 【 0 0 3 4 】

成分 ( A ) 中、もしあるのであれば、残りのケイ素結合有機基は、芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基である。一価非置換炭化水素基は、以下に限定されないが、例えばメチル、エチル、プロピル、ペンチル、オクチル、ウンデシル、そしてオクタデシルなどのアルキル基、および例えばシクロヘキシリルなどのシクロアルキル基によって例示される。一価置換炭化水素基は、以下に限定されないが、ハロゲン化アルキル基、例えばクロロメチル、3 - クロロプロピル、3 , 3 , 3 - トリフルオロプロピル、フルオロメチル、2 - フルオロプロピル、3 , 3 , 3 - トリフルオロプロピル、4 , 4 , 4 - トリフルオロブチル、4 , 4 , 4 , 3 , 3 - ペンタフルオロブチル、5 , 5 , 5 , 4 , 4 , 3 , 3 - ヘptaフルオロペンチル、6 , 6 , 6 , 5 , 5 , 4 , 4 , 3 , 3 - ノナフルオロヘキシリル、および 8 , 8 , 8 , 7 , 7 - ペンタフルオロオクチルによって例示される。

30

### 【 0 0 3 5 】

成分 ( A ) は、一般式 ( I ) : R<sup>1</sup><sub>3</sub>SiO - ( R<sup>2</sup><sub>2</sub>SiO )<sub>a</sub> - SiR<sup>1</sup><sub>3</sub> 、 ( ここで、各 R<sup>1</sup> および各 R<sup>2</sup> は独立して、上述の脂肪族不飽和有機基、芳香族基、および一価置換または非置換炭化水素基からなる群から選ばれ、下付き文字 a は成分 ( A ) に 25 で 10 から 1 , 0 0 0 , 0 0 0 mPa · s までの範囲の粘度を与えるに十分な値を有する整数であり、ただし平均して R<sup>1</sup> および / または R<sup>2</sup> の少なくとも 2 個が不飽和有機基で、かつ R<sup>1</sup> および / または R<sup>2</sup> の少なくとも 1 個は芳香族基である ) を有する。あるいは R<sup>1</sup> の少なくとも 2 個は不飽和有機基であり、R<sup>2</sup> の少なくとも 1 個は芳香族基であり、そして下付き文字 a は 5 から 1 , 0 0 0 の範囲の値を有する。あるいは、式 ( I ) は、 - ジアルケニル官能性ポリジオルガノシロキサンである。

40

### 【 0 0 3 6 】

#### [ 成分 ( B ) 分岐状ポリオルガノシロキサン ]

50

成分( B )は、一分子あたり平均して、少なくとも 1 個の不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサンである。成分( B )は単一ポリオルガノシロキサン、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なるポリオルガノシロキサンの二種以上からなる組合せでもよい。成分( B )の分子量は重大ではないが、重量平均分子量( M<sub>w</sub> )は 500 から 10,000 、あるいは 700 から 3,000 の間がよい。成分( B )は、組成物の合計重量に基づいて、35 から 75 重量部の量で該組成物に加えるのがよい。

#### 【 0037 】

成分( B )は式 R<sup>3</sup>SiO<sub>3/2</sub> 単位(ここで、各 R<sup>3</sup> は独立して、上述の脂肪族不飽和有機基、芳香族基、もしくは一価置換および非置換炭化水素基からなる群から選ばれる、ただし一分子あたり平均して少なくとも 1 個の R<sup>3</sup> が脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の R<sup>3</sup> が芳香族基である)からなる。

10

#### 【 0038 】

成分( B )は、式( II )：( R<sup>3</sup>SiO<sub>3/2</sub>)<sub>b</sub>(R<sup>3</sup><sub>2</sub>SiO<sub>2/2</sub>)<sub>c</sub>(R<sup>3</sup><sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>)<sub>d</sub>(SiO<sub>4/2</sub>)<sub>e</sub>(XO<sub>1/2</sub>)<sub>f</sub>、(ここで、各 R<sup>3</sup> は上記のとおりであり、X は水素原子または一価炭化水素基例えはアルキル基であり、下付き文字 b は正数であり、下付き文字 c は 0 または正数であり、下付き文字 d は 0 または正数であり、下付き文字 e は 0 または正数であり、下付き文字 f は 0 または正数であり、c / b は 0 から 10 の範囲の数であり、d / b は 0 から 0.5 の範囲の数であり、e / (b + c + d + e) は 0 から 0.3 の範囲の数であり、f / (b + c + d + e) は 0 から 0.4 の範囲の数である)を有する。式( II )で、ポリオルガノシロキサンは一分子あたり平均して少なくとも 1 個の脂肪族不飽和有機基を含有するが、R<sup>3</sup> の 0.1 モル % から 40 モル % は不飽和有機基である。式( II )で、ポリオルガノシロキサンは一分子あたり平均して少なくとも 1 個の芳香族基を含有するが、R<sup>3</sup> の少なくとも 10 モル % は芳香族基である。さらに、式 R<sup>3</sup><sub>2</sub>SiO<sub>2/2</sub> の D 単位において、R<sup>3</sup> の少なくとも 30 モル % は芳香族基である。下付き文字 f が正数であれば、組成物は 0 から 17 % 。あるいは 2 から 17 % の成分( B )を含有するのがよい。

20

#### 【 0039 】

##### [ 成分( C )ポリオルガノ水素シロキサン ]

成分( C )は、一分子あたり平均して少なくとも 2 個のケイ素結合水素原子および少なくとも 1 個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサンである。成分( C )は単一ポリオルガノ水素シロキサン、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なるポリオルガノ水素シロキサンの二種以上からなる組合せでもよい。成分( C )の粘度は重大ではないが、25 で 1 から 1,000 mPa · s 、あるいは 2 から 500 mPa · s の間がよい。芳香族基は上記に例示されたとおりである。成分( C )は少なくとも 15 モル % 、あるいは少なくとも 30 モル % の芳香族基を有するのがよい。

30

#### 【 0040 】

成分( C )は、一般式( III )：H R<sup>4</sup><sub>2</sub>SiO - ( R<sup>4</sup><sub>2</sub>SiO )<sub>g</sub> - SiR<sup>4</sup><sub>2</sub>H (ここで、各 R<sup>4</sup> は独立して水素原子、上記に例示したような芳香族基、または上記に例示したような、芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし一分子あたり平均して少なくとも 1 個の R<sup>4</sup> は芳香族基であり、そして下付き文字 g は 1 以上の値を有する整数である)のポリオルガノ水素シロキサンからなる。あるいは、一分子あたり少なくとも 1 個の R<sup>4</sup> はフェニルであり、そして g は 1 から 20 、あるいは 1 から 10 の間がよい。

40

#### 【 0041 】

また、成分( C )は、単位式( IV )：( R<sup>5</sup>SiO<sub>3/2</sub>)<sub>h</sub>(R<sup>5</sup><sub>2</sub>SiO<sub>2/2</sub>)<sub>i</sub>(R<sup>5</sup><sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>)<sub>j</sub>(SiO<sub>4/2</sub>)<sub>k</sub>(XO)<sub>m</sub> (ここで、X は上記のとおりである)の分岐状ポリオルガノ水素シロキサンを含んでもよい。各 R<sup>5</sup> は独立して、水素原子、上記に例示したような芳香族基、または上記に例示されたような、芳香族を含

50

まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし平均して一分子あたり  $R^5$  の少なくとも 2 個は水素原子である)の分岐状ポリオルガノシロキサンを含んでもよい。式(IV)中、ポリオルガノ水素シロキサンは分子あたり平均して少なくとも 2 個のケイ素結合水素原子を有するが、 $R^5$  の 1 モル % から 40 モル % は水素原子である。式(IV)で、ポリオルガノ水素シロキサンは一分子あたり平均して少なくとも 1 個の芳香族基を有し、 $R^5$  の少なくとも 10 モル % は芳香族基であってよい。さらに、式  $R^5_2 SiO_{2/2}$  の D 単位において、少なくとも 30 モル % の  $R^5$  は芳香族基であってよい。

#### 【0042】

式(IV)で、下付き文字  $h$  は正数であり、下付き文字  $i$  は 0 または正数であり、下付き文字  $j$  は 0 または正数であり、下付き文字  $k$  は 0 または正数であり、下付き文字  $m$  は 0 または正数であり、 $i/h$  は 0 から 10 までの範囲の値を有し、 $j/h$  は 0 から 5 までの範囲の値を有し、 $k/(h+i+j+k)$  は 0 から 0.3 までの範囲の値を有し、そして  $m/(h+i+j+k)$  は 0 から 0.4 までの範囲の値を有する。

10

#### 【0043】

成分(C)の添加量は、該シリコーン組成物の合計量に基づいて、10から50重量部の間である。成分(C)の量は、このシリコーン組成物中のケイ素結合水素原子の量がこのシリコーン組成物中の脂肪族不飽和有機基 1 モルに対して、0.1 モルから 10 モル、あるいは 0.1 から 5 モル、あるいは 0.5 から 2 モルの間になるように選られるのがよい。

20

#### 【0044】

##### [成分(D)ヒドロシリル化触媒]

成分(D)はヒドロシリル化触媒である。成分(D)は該シリコーン組成物の硬化を促進するに十分な量で添加される。けれども、成分(D)の量は、シリコーン組成物の重量に基づいて、0.01 から 1,000 ppm、あるいは 0.01 から 100 ppm、あるいは 0.01 から 50 ppm の白金族金属の範囲であってよい。

30

#### 【0045】

適するヒドロシリル化触媒は当技術では公知であり、市販されている。成分(D)は、白金、ロジウム、ルテニウム、パラジウム、オスミウムまたはイリジウム元素からなる群から選ばれる白金族元素、それらの有機金属化合物およびそれらの組合せを含むことができる。成分(D)は、白金黒、例えばクロロ白金酸(ヘキサクロロ白金酸)、クロロ白金酸六水和物(ヘキサクロロ白金酸六水和物)、クロロ白金酸と一価アルコールとの反応生成物、白金ビス(エチルアセトアセテート)、白金ビス(アセチルアセトナート)、二塩化白金、などの化合物、および該化合物とオレフィンもしくは低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体、またはマトリックスもしくはコアシェル型構造中にマイクロカプセル化された白金化合物により例示される。白金と低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体は、白金との 1,3-ジエテニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体を含む。これら錯体が樹脂マトリックス中にマイクロカプセル化される。あるいは、触媒は白金との 1,3-ジエテニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体を含んでもよい。触媒が低分子量オルガノポリシロキサンとの錯体のときは、触媒量は該組成物の合計重量に基づいて 0.02 から 0.2 重量部の間である。

40

#### 【0046】

成分(D)に適するヒドロシリル化触媒は、例えば米国特許第 3,159,601 号；第 3,220,972 号；第 3,296,291 号；第 3,419,593 号；第 3,516,946 号；第 3,814,730 号；第 3,989,668 号；第 4,784,879 号；第 5,036,117 号；および 5,175,325 号ならびにヨーロッパ特許 EPO 347 895 B に記載されている。マイクロカプセル化されたヒドロシリル化触媒およびそれらの製造方法は、米国特許第 4,766,176 号および米国特許第 5,017,654 号に記載されているように、当技術でも知られている。

50

#### 【0047】

## [追加成分]

上記のシリコーン組成物は、さらに、(E)抑制剤、(F)離型剤、(G)光学活性剤、(H)充填剤、(I)接着促進剤、(J)熱安定剤、(K)難燃性付与剤、(L)反応性希釈剤、(M)抑制剤、(N)顔料、(O)難燃剤、(P)酸化防止剤、およびそれらの組合せからなる群から選ばれる追加的成分を含むことができる、しかしながら追加成分および添加量が該シリコーン組成物を硬化できなくさせ、光学部品、例えば導光体などの使用に適さない物性を有する硬化シリコーン樹脂にするようなものではあってはならない。例えば、ある用途のために、任意の追加成分を含むシリコーン組成物が硬化して、200で14日間加熱した後、400nm波長で2.0mm以下の厚さで95%以上の光透過性を有する硬化シリコーン樹脂を形成している。

10

## 【0048】

## [成分(E)抑制剤]

成分(E)は抑制剤である。成分(E)は有機系アセチレンアルコール、シリル化アセチレンアルコール、またはそれらの組合せからなる。該シリコーン組成物中の成分(E)はシリル化アセチレン性抑制剤がよい。理論により縛られることを望まないで、シリル化アセチレン性抑制剤の添加は、抑制剤を含まないまたは有機系アセチレンアルコール抑制剤を含むヒドロシリル化硬化性組成物から製造された硬化シリコーン樹脂と比較して、シリコーン組成物から製造された硬化シリコーン樹脂の黄変を低減することができると考えられる。有機系アセチレンアルコール抑制剤の例は、例えばヨーロッパ特許EP0764703A2および米国特許第5,449,802号に開示されており、1-ブチン-3-オール、1-プロピン-3-オール、2-メチル-3-ブチン-2-オール、3-メチル-1-ブチン-3-オール、3-メチル-1-ペンチン-3-オール、3-フェニル-1-ブチン-3-オール、4-エチル-1-オクチン-3-オール、3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール、および1-エチニル-1-シクロヘサノールがある。シリコーン組成物は有機系アセチレンアルコール抑制剤を含まなくてもよい。「有機系アセチレンアルコール抑制剤を含まない」とは、組成物中に有機系アセチレンアルコールが存在したなら、存在する量が、200で14日間加熱後、2.0mm以下の厚さで400nm波長で硬化シリコーン樹脂の光透過性を95%未満に低減するに不十分であるという意味である。

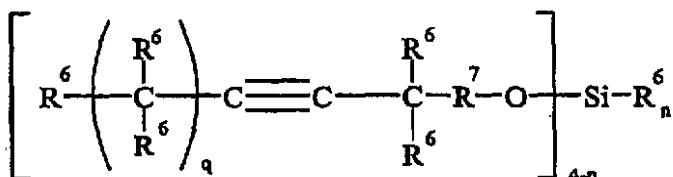
20

## 【0049】

30

成分(E)はこのシリコーン組成物の合計重量に基づいて、0.001から1重量部、あるいは0.01から0.5重量部の範囲の量で添加するのがよい。成分(E)として適するシリル化アセチレン性抑制剤は一般式(V)：

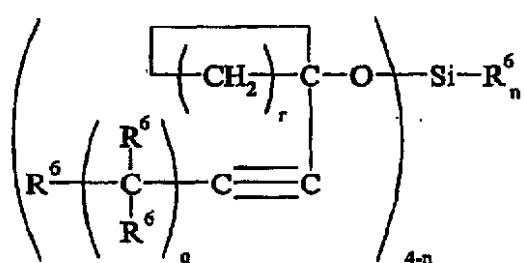
## 【化1】



40

または、一般式(VI)：

## 【化2】



50

またはこれらの組合せ（ここで、各  $R^6$  は独立して水素原子または一価有機基であり、そして下付き文字  $n$  は 0、1、2、または 3 であり、下付き文字  $q$  は 0 から 10 であり、そして下付き文字  $r$  は 4 から 12 である）を有する。あるいは、 $n$  は 1 または 3 である。あるいは、一般式（V）中、 $n$  は 3 である。あるいは、一般式（VI）では、 $n$  が 1 である。あるいは、 $q$  は 0 である。あるいは、 $r$  は 5、6、または 7 であり、そしてあるいは  $r$  は 6 である。 $R^6$  の一価有機基の例としては、上述されている脂肪族不飽和有機基、芳香族基または芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基が挙げられる。

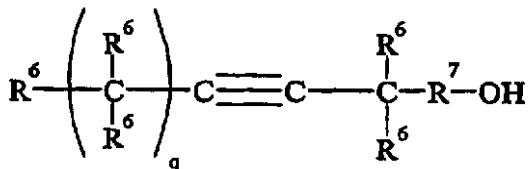
## 【0050】

シリル化アセチレン性抑制剤は、(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)トリメチルシラン、((1,1-ジメチル-2-プロピニル)オキシ)トリメチルシラン、ビス(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルシラン、ビス(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)シランメチルビニルシラン、ビス((1,1-ジメチル-2-プロピニル)オキシ)ジメチルシラン、メチル(トリス(1,1-ジメチル-2-プロピニルオキシ))シラン、メチル(トリス(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ))シラン、(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルフェニルシラン、(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルヘキセニルシラン、(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)トリエチルシラン、ビス(3-メチル-1-ブチン-3-オキシ)メチルトリフルオロプロピルシラン、(3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オキシ)トリメチルシラン、(3-フェニル-1-ブチン-3-オキシ)ジフェニルメチルシラン、(3-フェニル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルフェニルシラン、(3-フェニル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルビニルシラン、(3-フェニル-1-ブチン-3-オキシ)ジメチルヘキセニルシラン、(シクロヘキシル-1-エチン-1-オキシ)ジメチルヘキセニルシラン、(シクロヘキシル-1-エチン-1-オキシ)ジメチルビニルシラン、(シクロヘキシル-1-エチン-1-オキシ)ジフェニルメチルシラン、(シクロヘキシル-1-エチン-1-オキシ)トリメチルシラン、およびこれらの組合せによって例示される。あるいは、成分(E)は、メチル(トリス(1,1-ジメチル-2-プロピニルオキシ))シラン、((1,1-ジメチル-2-プロピニル)オキシ)トリメチルシランおよびそれらの組合せによって例示される。

## 【0051】

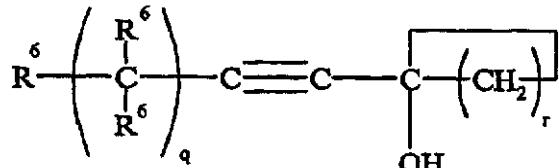
シリル化アセチレン性抑制剤は、アルコールのシリル化、例えば式  $R^6_n SiCl_4 \cdot n$  のクロロシランを次式のアセチレンアルコール

## 【化3】



または

## 【化4】



と酸受容体の存在下で反応させる、当技術で知られている方法により製造することができる。それら式中、 $n$ 、 $q$ 、 $r$ 、および  $R^6$  は上述されるとおりであり、そして  $R^7$  は共有結合または二価炭化水素基である。シリル化アセチレン性抑制剤の例およびそれらの

10

20

30

40

50

製造方法は、例えばヨーロッパ特許出願公開 E P 0 7 6 4 7 0 3 A 2 および米国特許第 5 , 4 4 9 , 8 0 2 号に開示されている。

#### 【 0 0 5 2 】

上述したシリコーン組成物は、さらに( F )離型剤、( G )光学活性剤、( H )充填剤、( I )接着促進剤、( J )熱安定剤、( K )難燃性付与剤、( L )反応性希釈剤、( M )抑制剤、( N )顔料、( O )難燃剤、( P )酸化防止剤、およびそれらの組合せからなる群から選ばれる 1 個またはそれ以上の追加成分を含むことができるが、しかしながら追加成分および添加量が該シリコーン組成物を硬化できなくさせ、光学部品、例えば導光体などでの使用に適さない物性を有する硬化シリコーン樹脂にするようなものではあってはならない。例えば、ある用途のためには、任意の追加成分を含むシリコーン組成物が硬化して、200 で 14 日間加熱した後 400 nm 波長で 2.0 mm 以下の厚さで 95 % 以上の光透過性を有する硬化シリコーン樹脂を形成している。10

#### 【 0 0 5 3 】

##### [ 成分 ( F ) 離型剤 ]

成分 ( F ) は任意の離型剤である。成分 ( F ) は一般式 ( V I ) :  $R^{1/7}SiO(R^{1/7})_2SiO)_a(R^{1/7}R^{1/8}SiO)_bSiR^{1/7}_3$  (ここで、各  $R^{1/7}$  は独立してヒドロキシル基または一価有機基であり、そして各  $R^{1/8}$  は独立して組成物中の脂肪族不飽和有機基およびケイ素結合水素原子と反応しない一価有機基であり、下付き文字 a は 0 またはそれ以上の値を有し、下付き文字 b は 1 以上の値を有し、ただし a a および b b は離型剤が金型使用温度で 50 から 3,000 cps の粘度を有するに十分な値を有する) を有する。あるいは、各  $R^{1/7}$  が独立して、例えばメチル、エチル、プロピル、もしくはブチルなどのアルキル基、または例えばメトキシ、エトキシ、プロポキシ、もしくはブトキシなどのアルコキシ基であり、そして  $R^{1/8}$  は独立して、例えばフェニル、トリル、またはキシリルなどの芳香族基である。あるいは、 $R^{1/7}$  はメチルで、 $R^{1/8}$  はフェニルであってよい。適する離型剤の例は、25 での 100 から 500 cps の粘度を有するトリメチルシロキシ - 末端 (ジメチルシロキサン / フェニルメチルシロキサン) 共重合体である。20

#### 【 0 0 5 4 】

あるいは、成分 ( F ) は、該組成物の合計重量に基づいて、0 % から 5 % 、あるいは 0.25 % から 2 % の範囲の量で組成物に添加され得る、 - ジヒドロキシ官能性ポリジオルガノシロキサンからなっていてもよい。成分 ( F ) は単一ポリジオルガノシロキサン、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なるポリジオルガノシロキサンの二種以上を含む組合せでもよい。成分 ( F ) の粘度は重大ではなく、25 で 50 から 1,000 mPa · s の間である。成分 ( F ) は一分子当たり少なくとも 1 個の芳香族基を有し、芳香族基は上記に例示されている。成分 ( F ) は少なくとも 15 モル % 、あるいは少なくとも 30 モル % の芳香族基を有するのがよい。30

#### 【 0 0 5 5 】

成分 ( F ) は、一般式 ( V I ' ) :  $HOR^{8/2}SiO - (R^{8/2}SiO)_o - SiR^{8/2}OH$  (ここで、 $R^{8/2}$  は独立して、上記例示されたとおりの芳香族基、または上記に例示されたとおりの芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし一分子あたり平均して少なくとも 1 個の  $R^{8/2}$  は芳香族基であり、そして下付き文字 o は 1 以上の値を有する整数である。あるいは、一分子あたり少なくとも 1 個の  $R^{8/2}$  はフェニルであり、o は 2 から 8 までの間である。40

#### 【 0 0 5 6 】

##### [ 成分 ( G ) 光学活性剤 ]

成分 ( G ) は光学活性剤である。成分 ( G ) の例としては、光拡散物質 ( optical diffusants ) 、蛍光体粉末、光結晶、量子ドット、カーボンナノチューブ、例えば蛍光染料や吸収性染料などの染料、およびそれらの組合せが挙げられる。成分 ( G ) の正確な量は、選択された具体的な光学活性剤に依存しているが、成分 ( G ) は該シ50

リコーン組成物の重量に基づいて0%から20%、あるいは1%から10%の範囲の量で添加してよい。成分(G)はシリコーン組成物と混合され、またはシリコーン組成物を硬化シリコーン樹脂に硬化して製造された導光体の表面上に塗布してもよい。

#### 【0057】

##### [成分(H)充填剤]

成分(H)は充填剤である。適する充填剤は当技術では公知であり、市販されている。例えば、成分(H)は無機充填剤、例えばシリカ、例として煙霧シリカ、石英粉末、酸化チタン、ガラス、アルミナ、酸化亜鉛、またはそれらの組合せなどからなる。充填剤は50ナノメートル以下の平均粒径を有し、拡散または吸収により透過パーセントを下げることはない。あるいは、成分(H)は有機充填剤、例えばポリ(メタ)アクリル酸メチル樹脂粒子でもよい。成分(H)はシリコーン組成物の合計重量に基づいて、0%から50%、あるいは1%から5%の範囲の量で添加するのがよい。

10

#### 【0058】

上述のシリコーン組成物は従来からの手段、例えば常温または高温ですべての成分を混合することによって製造される。シリコーン組成物は一液型組成物または多液型組成物として製造することができる。一液型シリコーン組成物は成分(A)、(B)、(C)、および(D)ならびに、もし存在するなら、任意の追加成分を混合することにより製造することができる。一液型シリコーン組成物が製造されるのであれば、組成物の可使時間は上述の成分(E)を添加することにより延長される。シリコーン組成物が、段落[0022]から[0026]までに記載されたような成形方法に使われるのであれば、成分(F)が追加されてもよい。例えば二液型組成物などの多液型組成物では、成分(C)および(D)は別々の液に保存される。例えば、ベース液は、30から60部の成分(A)、30から65部の成分(B)、そして0.0005から0.005部の成分(D)からなる成分を混合して製造されうる。該ベース液は任意でさらに0.2から5部の成分(F)を含むことがある。硬化剤液は0から10部の成分(A)、42から67重量部の成分(B)、20から50重量部の成分(C)、および0.001から1重量部の成分(E)からなる成分を混合して製造しうる。ベース液と硬化剤液は使用直前まで別々の容器に保存され、使用時に二つの液は硬化剤1部に対してベース1から10部の割合で一緒に混合される。

20

#### 【0059】

上述のシリコーン組成物は、硬化シリコーン樹脂の形成に使われる。シリコーン組成物は室温または加熱をもって硬化させられる。加熱は硬化を促進することになる。シリコーン組成物は50から200の範囲の温度に数分から数時間加熱される。硬化して得られたものが硬化シリコーン樹脂である。

30

#### 【0060】

あるいは、上述の方法に使用のシリコーン組成物は、低粘度(成形加工温度で50から3,000cps)および急速硬化時間(10秒から300秒)を含む特性を示す。低粘度は射出成形にとって長所である、というのはそれが複雑な光学形状および平滑な表面の輪郭を示す金型形状を急速かつ完全に注入するためにシリコーン組成物の能力を改善することを可能にしている。急速な硬化時間は迅速な生産処理能力を可能にする。シリコーン組成物を硬化して製造された硬化シリコーン樹脂は、光学的透明性、高温での安定性、および400ナノメートル(nm)から650nmでの高い線束への暴露での安定性を含む特性を示す。

40

#### 【0061】

該シリコーン組成物は付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物であり得る。典型的な付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は：

(Q) 100重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノポリシロキサン樹脂

$R^9_s R^{10}_t SiO_{(4-s-t)/2}$  (VII)

(ここで、各R<sup>9</sup>は独立して、脂肪族不飽和有機基、例えば2から10個の炭素原子を有するアルケニル基などであり；各R<sup>10</sup>は独立して、R<sup>9</sup>以外の置換または非置換一価炭

50

化水素基であり、ただし一分子あたり少なくとも 1 個の  $R^{1.0}$  は芳香族基であり、あるいは少なくとも 50 モル% の  $R^{1.0}$  が芳香族基、例えばフェニル基などであり、下付き文字  $s$  は 0.09 から 0.16 までの範囲の値を有し、そして下付き文字  $t$  は 1.00 から 1.20 までの範囲の値を有する；ただし、該オルガノポリシロキサン樹脂が、参照としてポリスチレンを用いたゲルクロマトグラフィーで測定して 3,000 に等しいかそれを超える重量平均分子量を有する）；

(R) 10 から 50 重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノオリゴシロキサン  
 $R^{1.1}_u R^{1.2}_v SiO_{(4-u-v)/2}$  (VII)

（ここで、各  $R^{1.1}$  は独立して、脂肪族不飽和有機基、例えば 2 から 10 個炭素原子を有するアルケニル基などであり；各  $R^{1.2}$  は独立して、 $R^{1.1}$  以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも 10 モル% の  $R^{1.2}$  は芳香族基、例えばフェニル基などからなり；下付き文字  $u$  は 0.60 から 0.80 までの範囲の値を有し、そして下付き文字  $v$  は 1.50 から 2.10 までの範囲の値を有する）；

(S) 20 から 100 重量部の次の平均組成式で表わされるオルガノ水素オリゴシロキサンまたはオルガノ水素ポリシロキサン

$H_w R^{1.3}_x SiO_{(4-w-x)/2}$  (IX)

（ここで、各  $R^{1.3}$  は独立して脂肪族不飽和有機基以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも 20 モル% の  $R^{1.3}$  は芳香族基、例えばフェニル基などからなり；下付き文字  $w$  は 0.35 から 0.65 までの範囲の値を有し、そして下付き文字  $x$  は 0.90 から 1.70 までの範囲の値を有する）；

(D) 触媒量のヒドロシリル化触媒；

を含んでなる。この付加反応硬化性オルガノポリシロキサン組成物は硬化して、ASTM D 2240-86 によって測定して、25 度 60 から 100、および 150 度 40 から 100 の硬さを有する物品を形成することができる。

#### 【0062】

あるいは、平均組成式 (VII) において、 $s$  は 0.10 から 0.15 までの範囲の値を有し、そして  $t$  は 1.00 から 1.15 までの範囲の値を有しうる。あるいは、平均組成式 (VII) において、 $u$  は 0.60 から 0.80 までの範囲の値を有し、そして  $v$  は 1.50 から 2.00 までの範囲の値を有しうる。あるいは、平均組成式 (IX) において、 $w$  は 0.35 から 0.65 までの範囲の値を有し、そして  $x$  は 1.30 から 1.70 までの範囲の値を有しうる。

#### 【0063】

あるいは、上述の付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物中の成分 (R) は次の式で表わされるオルガノオリゴシロキサン：

$(R^{1.5} R^{1.6}_2 SiO)_y SiR^{1.6}_{(4-y)}$  (X)

（ここで、各  $R^{1.5}$  は独立して脂肪族不飽和有機基、例えば 2 から 10 個の炭素原子を有するアルケニル基などであり；各  $R^{1.6}$  は独立して、 $R^{1.5}$  以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、ただし少なくとも 10 モル% の  $R^{1.6}$  は芳香族基、例えばフェニル基などからなり；そして下付き文字  $y$  は 2 または 3 である）を含むことができる。

#### 【0064】

##### [成分 (Q)]

上述の平均組成式 (VII) について、 $R^9$  は成分 (A) において上述した不飽和有機基によって例示される。あるいは、 $R^9$  において 2 から 10 個の炭素原子を有するアルケニル基には、以下に限定されないが、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基、およびデセニル基が挙げられる。 $R^{1.0}$  の例としては、以下に限定されないが、アルキル基、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、そしてシクロヘキシリル基など；芳香族基、例えばエチルベンジル、ナフチル、フェニル、トリル、キシリル、ベンジル、スチリル、1-フェニルエチル、および 2-フェニルエチルなど、あるいはフェニル；そしてハロアルキル基、例えば 3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、そして 2-(ノナフルオロプロピル)エチル基など、が挙げられる。一分子あたり少なくとも 1 個

10

20

30

40

50

の  $R^{1.0}$  は芳香族基であり、あるいは一分子あたり全  $R^{1.0}$  の少なくとも 50 モル%は例えばフェニル基などの芳香族基からなり、しかし一方残りは、上記組成物を硬化して製造される硬化シリコーン樹脂に高い透明性、強度および硬さを付与するためにアルキル基であつてよい。

#### 【0065】

成分 (Q) を形成するシロキサン単位は、 $V_i Me_2 SiO_{1/2}$  単位、 $V_i MePhSiO_{1/2}$  単位、 $Me_3 SiO_{1/2}$  単位、 $Me_2 SiO_{2/2}$  単位、 $V_i MeSiO_{2/2}$  単位、 $PhSiO_{3/2}$  単位、 $MeSiO_{3/2}$  単位、そして  $V_i SiO_{3/2}$  単位によって例示される。

#### 【0066】

成分 (Q) の例は、下記のシロキサン単位式および平均組成式によって示されるオルガノポリシロキサン樹脂である。シロキサン単位式は、分子の全シロキサン単位が 1 モルを構成するとして、各種のシロキサン単位のモル数を表している。

(i) 単位式  $(V_i Me_2 SiO_{1/2})_{0.10} (PhSiO_{3/2})_{0.90}$ 、この平均組成式  $V_i_{0.10} Me_{0.20} Ph_{0.90} SiO_{1.4}$ 、(ここで、 $s = 0.10$ 、 $t = 1.10$ 、 $Ph/R^{1.0}$  (モル%) = 74、 $M_w = 4300$ )；

(ii) 単位式  $(V_i Me_2 SiO_{1/2})_{0.14} (PhSiO_{3/2})_{0.86}$ 、この平均組成式  $V_i_{0.14} Me_{0.28} Ph_{0.86} SiO_{1.34}$ 、(ここで、 $s = 0.14$ 、 $t = 1.14$ 、 $Ph/R^{1.0}$  (モル%) = 67、 $M_w = 3200$ )；

(iii) 単位式  $(V_i MeSiO_{2/2})_{0.10} (PhSiO_{3/2})_{0.90}$ 、この平均組成式  $V_i_{0.10} Me_{0.10} Ph_{0.90} SiO_{1.45}$ 、(ここで、 $s = 0.10$ 、 $t = 1.00$ 、 $Ph/R^{1.0}$  (モル%) = 82、 $M_w = 8700$ )；

(IV) 単位式  $(V_i MeSiO_{2/2})_{0.10} (Me_2 SiO_{2/2})_{0.15} (PhSiO_{3/2})_{0.75}$ 、この平均組成式は  $V_i_{0.10} Me_{0.40} Ph_{0.75} SiO_{1.375}$ 、(ここで、 $s = 0.10$ 、 $t = 1.15$ 、 $Ph/R^{1.0}$  (モル%) = 60、 $M_w = 7200$ )；

ここで、 $R^{1.0}$  は  $Me$  および  $Ph$  の合計モル量を示し、 $M_w$  は参照として標準ポリスチレンを用いてゲルクロマトグラフィーで測定した重量平均分子量である。成分 (Q) は、一分子あたり平均して少なくとも 2 個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも 1 個の芳香族基を有するオルガノポリシロキサン樹脂である。成分 (Q) は、単一樹脂、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なる樹脂の二種以上からなる組合せでもよい。

#### 【0067】

##### [成分 (R)]

成分 (R) は平均組成式  $(V_I I I) R^{1.1}_u R^{1.2}_v SiO_{(4-u-v)/2}$  (ここで、各  $R^{1.1}$  は独立して脂肪族不飽和有機基、例えば 2 から 10 個炭素原子を有するアルケニル基などであり、 $R^9$  について例示した基と同じでもよく、そして各  $R^{1.2}$  は独立して  $R^{1.1}$  以外の置換または非置換一価炭化水素基であり、 $R^{1.0}$  について挙げた基と同じでもよい。少なくとも 10 モル%の  $R^{1.2}$  は芳香族基、例えばフェニル基からなり、しかし一方残りの基はアルキル基からなってよい。あるいは各  $R^{1.2}$  はフェニル基からなる。あるいは各  $R^{1.2}$  はメチル基またはフェニル基からなる。理論により縛られることを望まないで、各  $R^{1.2}$  がメチル基またはフェニル基であるなら、組成物中の成分 (Q) と (S) との間の親和性は改善され、該組成物から製造される、例えばレンズまたは導光体など物品の耐熱性および透明性が改善されうると考えられる。

#### 【0068】

式 (VIII) で、 $u$  は成分 (R) 中のケイ素 1 原子あたりの脂肪族不飽和基の平均数を示し、0.60 から 0.80 までの範囲の値を有しうる。式 (VIII) で、 $v$  は成分 (R) 中のケイ素原子 1 個あたりの置換または非置換一価炭化水素基 ( $R^{1.1}$  以外の) の平均値を示し、1.50 から 2.10、あるいは 1.50 から 2.00 までの範囲の値を有しうる。

10

20

30

40

50

## 【0069】

あるいは、成分(R)は、次の式(X)：(R<sup>1</sup><sub>5</sub>R<sup>1</sup><sub>6</sub><sub>2</sub>SiO)<sub>y</sub>SiR<sup>1</sup><sub>6</sub>(<sub>4</sub>-y)（ここで、各R<sup>1</sup><sub>5</sub>は上記のとおりであり、R<sup>9</sup>について上で挙げた基と同じでもよい）で表わされる脂肪族不飽和オルガノオリゴシロキサンを含みうる。上記式で、各R<sup>1</sup><sub>6</sub>は独立して、置換または非置換一価炭化水素基(R<sup>1</sup><sub>5</sub>以外の)であり、R<sup>1</sup><sub>6</sub>はR<sup>1</sup><sub>0</sub>について上に挙げた基と同じものでよい。あるいは、各R<sup>1</sup><sub>6</sub>はフェニル基からなる。あるいは、各R<sup>1</sup><sub>6</sub>はフェニル基またはメチル基からなる。下付き文字yは2または3である。成分(Q)を溶解(成分(Q)が固体であるとき)を促進するためまたは成分(Q)の粘度(成分(Q)が粘稠なとき)を下げるために、成分(R)は室温で液状であり、25で10Pa·s未満、あるいは1mPa·sから100mPa·sの範囲の粘度を有するのがよい。

10

## 【0070】

成分(R)の具体例は、下記のシロキサン単位式および平均組成式で示されるメチルフェニルビニルオリゴシロキサンである：

(i) 単位式 (ViMe<sub>2</sub>SiO)<sub>3</sub>SiPh、この平均組成式 Vi<sub>0.75</sub>Me<sub>1.50</sub>Ph<sub>0.25</sub>SiO<sub>0.75</sub>（ここで、u=0.75、v=1.75、Ph/R<sup>1</sup><sub>2</sub>（モル%）=14）；

(ii) 単位式 (ViMe<sub>2</sub>SiO)<sub>2</sub>SiPh<sub>2</sub>、この平均組成式 Vi<sub>0.67</sub>Me<sub>1.33</sub>Ph<sub>0.67</sub>SiO<sub>0.67</sub>（ここで、u=0.67、v=2.00、Ph/R<sup>1</sup><sub>2</sub>（モル%）=33）；

(iii) 単位式 (ViMePhSiO)<sub>3</sub>SiPh、この平均組成式 Vi<sub>0.75</sub>Me<sub>0.75</sub>Ph<sub>1.00</sub>SiO<sub>0.75</sub>（ここで、u=0.75、v=1.75、Ph/R<sup>1</sup><sub>2</sub>（モル%）=57）；

(iv) 単位式 (ViMePhSiO)<sub>2</sub>SiPh<sub>2</sub>、この平均組成式 Vi<sub>0.67</sub>Me<sub>0.67</sub>Ph<sub>1.33</sub>SiO<sub>0.67</sub>（ここで、u=0.67、v=2.00、Ph/R<sup>1</sup><sub>2</sub>（モル%）=67）；そして

(v) 単位式 (ViMe<sub>2</sub>SiO)<sub>2</sub>SiMePh、この平均組成式 Vi<sub>0.67</sub>Me<sub>1.67</sub>Ph<sub>0.33</sub>SiO<sub>0.67</sub>（ここで、u=0.67、v=2.00、Ph/R<sup>1</sup><sub>2</sub>（モル%）=17）、

ここで、R<sup>1</sup><sub>2</sub>はMeおよびPhの合計モル量を示す。成分(R)は、單一オルガノオリゴシロキサンであるか、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なるオルガノオリゴシロキサンの二種以上からなる組合せでもよい。

20

30

## 【0071】

## [成分(S)]

上記平均組成式(Ix)で表わされる成分(S)はオルガノ水素オリゴシロキサンまたはオルガノ水素ポリシロキサンからなる。この成分のケイ素結合水素原子は成分(Q)および(R)の脂肪族不飽和ケイ素結合有機基との付加反応に関与する。

## 【0072】

平均組成式(Ix)において、少なくとも20モル%のR<sup>1</sup><sub>3</sub>は例えばフェニル基などの芳香族基からなる。基G<sup>1</sup><sub>3</sub>はR<sup>1</sup><sub>0</sub>について上に挙げたものと同じでもよく、あるいは各R<sup>1</sup><sub>3</sub>がフェニル基、あるいは各R<sup>1</sup><sub>3</sub>がメチル基及びフェニル基から選択されてもよい。式(Ix)で、下付き文字wは成分(S)のケイ素原子1個あたりのケイ素結合水素原子の数を示し、0.35から0.65の間であり；下付き文字xは成分(S)のケイ素原子1個あたりの置換または非置換一価炭化水素基(R<sup>9</sup>以外の)の平均数を示し、0.90から1.70、あるいは1.30から1.70の間でよい。25で、成分(S)は固体または液状であり、液状は該組成物の製造を容易にする。成分(S)の粘度は、100Pa·s以下であってよく、あるいは粘度は1から1,000mPa·sの間でよい。

40

## 【0073】

50

成分(S)の例としては、以下に制限されないが、以下のシロキサン単位式および平均組成式によって示されるメチルフェニル水素オリゴシロキサンおよびメチルフェニル水素ポリシロキサンがあげられる：

(i) 単位式  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.65}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.35}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.65}\text{Me}_{1.30}\text{Ph}_{0.35}\text{SiO}_{0.85}$ ,  $w = 0.65$ ,  $x = 1.65$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 21;

(ii) 単位式  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.60}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.40}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.60}\text{Me}_{1.20}\text{Ph}_{0.40}\text{SiO}_{0.90}$ ,  $w = 0.60$ ,  $x = 1.60$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 25;

(iii) 単位式  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.60}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.40}\text{Me}_{0.80}\text{Ph}_{0.60}\text{SiO}_{1.10}$ ,  $w = 0.40$ ,  $x = 1.40$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 43; 10

(iv) 単位式  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.35}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.65}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.35}\text{Me}_{0.70}\text{Ph}_{0.65}\text{SiO}_{1.15}$ ,  $w = 0.35$ ,  $x = 1.05$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 48;

(v) 単位式  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_{0.65}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.35}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.65}\text{Me}_{0.65}\text{Ph}_{0.35}\text{SiO}_{1.175}$ ,  $w = 0.65$ ,  $x = 1.00$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 35;

(vi) 単位式  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_{0.50}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.50}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.50}\text{Me}_{0.50}\text{Ph}_{0.50}\text{SiO}_{1.25}$ ,  $w = 0.50$ ,  $x = 1.00$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 50; 20

(vii) 単位式  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_{0.35}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.65}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.35}\text{Me}_{0.35}\text{Ph}_{0.65}\text{SiO}_{1.325}$ ,  $w = 0.35$ ,  $x = 1.00$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 65;

(viii) 単位式  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_{0.60}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.40}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.60}\text{Me}_{0.60}\text{Ph}_{1.00}\text{SiO}_{0.90}$ ,  $w = 0.60$ ,  $x = 1.60$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 63;

(ix) 単位式  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.60}$ , この平均組成式  $\text{H}_{0.40}\text{Me}_{0.40}\text{Ph}_{1.00}\text{SiO}_{1.10}$ ,  $w = 0.40$ ,  $x = 1.40$ ,  $\text{Ph}/R^{1/5}$  (モル%) = 71; 30

これらの式において、 $R^{1/5}$  は Me および Ph の合計量を示す。成分(S)は、单一構成成分、または次の特性：構造、粘度、平均分子量、シロキサン単位および順列、の少なくとも一つが異なる構成成分の二種以上からなる組合せとすることもできる。

#### 【0074】

成分(R)と(S)とは、成分(Q)の100重量部にあたり、10から50重量部、あるいは20から100重量部の組み合せ量で使われる。この付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物を硬化して製造された硬化シリコーン樹脂に硬さおよび物理特性を与えるには、成分(Q)および(R)中のアルケニル基の1モルあたりの成分(S)のケイ素結合水素原子の量は、0.5から3モル、あるいは0.7から2.0モルの間である。

#### 【0075】

##### [成分(D)]

成分(D)は上記のとおりヒドロシリル化触媒である。この付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物中の成分(D)の的確な量は、選択される的確な成分(Q)、(R)、(S)、および(D)ならびに任意の追加成分が存在するならそれを含むいろいろな因子に依存する。しかし、成分(D)は、成分(Q)、(R)、および(S)の合わせた重量に基づいて、1から500 ppm、あるいは2から100 ppmの間である。

#### 【0076】

1個以上の追加成分が成分(Q)、(R)、(S)および(D)からなる付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物に添加されうる。それら任意成分は、上記のとおり

10

20

30

40

50

、成分( E )から( P )、またはそれらの組合せを含む。成分( F )の離型剤は、この付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物に添加することができる。この組成物中の離型剤の量は、組成物の重量に基づいて、0.2%から2%、あるいは0.25%から0.75%までの間であつてよい。

#### 【0077】

付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、成分( Q )、( R )、( S )、および( D )ならびに任意の追加成分が存在するならそれを混合することにより製造される。一液型組成物が製造されるなら、上述の成分( E )などの抑制剤を添加することによって、組成物の可使時間を長くすることができる。付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物が成形方法、例えば段落「0022」から「0026」に記載した方法に使用するなら、成分( F )を添加するのがよい。あるいは、多液型組成物が、一つの液に( Q )、( R )、および( D )からなる成分を混合し、別の液に( Q )、( R )、および( S )からなる成分を混合し、前もって混合した状態で各液を保管し、使用する前にそれら液と一緒に混合することにより、製造される。

10

#### 【0078】

付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は硬化し、ASTM D2240-86にしたがってデュロメータ・タイプDによって測定された、25で60から100、および150で40から100の硬さを有する物品を形成する。あるいは、付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物から得られた硬化シリコーン樹脂は、デュロメータ・タイプDによりASTM D2240-86に従って測定して、40から100、あるいは40から60の範囲の硬さを有する。ASTM D2240-86は、プラスチックのデュロメータ硬さの試験方法を定めるJIS K 7215-1986に相当している。

20

#### 【0079】

付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は室温で液状であつてよい。しかし、成形加工性や流動性を改善するために、該組成物は25で5,000Pa·s以下の粘度を有することができ、あるいは粘度が10から1,000Pa·sまでの間にあってよく、あるいは粘度が成形温度で100から3,000cpsまでの間にあってよい。付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は室温で保持すると徐々に硬化し、または加熱により急速に硬化する。該組成物は単独で、または他の物質に接触して硬化し、他の物質をともに一体化物体を形成する（例えば、オーバーモールドやコモールド（共成形））。

30

#### 【0080】

##### [光学部品]

上述の方法およびシリコーン組成物は各種の光学部品（オプティカルデバイス）を製造するために使われる。例えばそのような光学部品には、以下に限定されないが、光導波路、導光体、光センサ素子、そして例えばHB LEDパッケージなどのLEDパッケージ、例としてLEDパッケージレンズが挙げられる。

#### 【0081】

上述の方法および組成物を用いて製造される導光体は単独でまたは他の機器の一部として製造される。機器は、さらに導光体の入り口に連結された光源、例えばLEDまたはHB LEDなどを含む。該機器はさらに、導光体の出口で他の光学部品、例えば有機導光体またはレンズを含む。例えば、図4a、4b、かつ4cは、LED401と上述のシリコーン組成物から製造された導光体402からなる光学部品を示している。導光体402は、図4aに示されるように、導光体402に隣接して、LED401からの光が導光体402の入り口403に入るように、LED401を設置することによりLED401に連結されている。LED401と導光体402の入り口403との間の隙間は任意で空気または光結合剤406、例えばゲルまたはエラストマーで、注入される。導光体402は任意でさらに導光体402の表面を包囲するクラッド（被覆）407を有する。クラッドは導光体402のRIよりも低いRIを有する。

40

50

## 【0082】

あるいは、図4bに示されるように、上述のシリコーン組成物がLED401と接触している間に硬化して導光体402を形成するように、LED401は導光体402と一体化されてもよい。光学部品はさらに、硬化シリコーン樹脂から製造された導光体402の出口405に連結された有機導光体404を含んでもよい。理論により縛られることを望まないで、以下のように考えられる。LED401に連結された導光体402を用いると光学部品の安定性を改善できる。その上導光体402の出口に連結された有機導光体404を用いることにより得られた光学部品のコストをさげる。というのは、有機導光体404、例えばPMMA、PC、やCOC導光体は硬化シリコーン樹脂から製造された導光体402よりも高価ではない。しかし有機導光体404には、硬化シリコーン樹脂から製造された導光体402なしにLED401に連結された場合、上述のシリコーン組成物を硬化することによって製造された硬化シリコーン樹脂と比べて、有機構成材料のより貧弱な安定性により、劣化という欠点がある。あるいは、図4cに示されるように、LED401は突合せ結合により導光体402の入り口403に連結されうる。例えば、導光体402のある表面408は内面反射を改善するために部分的に又は完全に鏡面化ができる。あるいは、導光体402のある表面408は部分的または全体に粗面化されていてもよい。

10

## 【0083】

当業者は、図4a、4b、および4cに示される導光体は例であって、何ら制限するものではないことは認めるところである。導光体は、導光体に連結される光源および導光体が使われる用途を含む各種の因子により多様な形状を有しうる。例えば、導光体は棒状またはシリンダー状を含んでもよい。ここに記述されるシリコーン組成物および方法は、例えば米国特許第5,594,424号；第5,673,995号；第6,174,079号；第6,568,822号；米国公開特許出願US2005/0213341およびUS2006/0105485；そしてPCT国際公開WO2005/033207およびWO2006/033375に開示されている導光体を製造するために使うことができる。

20

## 【0084】

上述のシリコーン組成物の成分は、シリコーン組成物を硬化して製造する導光体が所定の用途での要求特性を持つように、選ばれる。導光体は、例えば、ディスプレーの背面照明ユニット、車両照明、そしてメッセージ・ボード用途に使われる。導光体がこれら用途で使用されるときは、導光体はデュロメータ・ショアAによる測定で少なくとも50、あるいは少なくとも60の硬さを有しうる。導光体は、1.5mmから4mmの範囲の厚さの部分で、50%より高い、あるいは50%から100%の光学的透明性を有してよい。いくつかの自動車ヘッドライト用途では、紫外線に曝されたとき黄変化しないのがよい。導光体は、150で少なくとも7日間、あるいは7から60日間加熱したとき（再び、1.5mmから4mmの範囲の厚さの部分で）、20%以下、あるいは15%以下の伝送損失しか有しないのがよい。導光体のRIは1.46から1.57までの間であってよい。コアがあるなら、コアのRIはクラッドのRIより小さい。RIは、導光体の製造に使われるシリコーン組成物中の芳香族基（例えば、フェニル）と非芳香族基（例えば、メチル）の量を変化させることによって調整することができる。有機導光体が連結されるときは、硬化シリコーン樹脂から製造された導光体のRIは有機導光体のRIに調和させるのがよい。例えば、PMMA導光体は1.49のRIを、PC導光体は1.57のRIを有しうる。

30

## 【0085】

あるいは、導光体以外の成形された形状は、段落[0022]から[0026]で上述された成形方法によって製造することができる。成形された形状は、例として、LEDパッケージで使用されるレンズ、例えば平面レンズ、湾曲レンズ、フレネルレンズである。10ミリグラム(mg)から60グラム(g)の範囲の量のシリコーン組成物から作成される湾曲フレネルレンズが製造される。このレンズは0.1mmから10mmの範囲の幅

40

50

または直径を有する。このレンズは0.05mmから2mmの範囲の厚さを有する。厚さ2mmのレンズでは、400ナノメーター(nm)から650nmでの光透過は85%透過から100%透過である。

#### 【0086】

あるいは、段落[0021]での上述のシリコーン組成物および方法は光電子部品、例えばLED部品などをパッケージするために使うことができる。例として、シリコーン組成物は、硬化シリコーン樹脂がハードレンズとして形成されるように、成形・硬化される。レンズは不粘着性で、かつ耐吸塵性であるのがよい。該シリコーン組成物は、例として、射出成形方法、例えば国際公開WO2005/017995などに開示された方法で、レンズを形成するのに使うことができる。

10

#### 【0087】

あるいは、該シリコーン組成物および方法は、LED部品、例えば米国特許第6,204,523号または国際公開WO2005/033207などに開示されたものを封入するために使用できる。図5は上述のシリコーン組成物から作られた硬化シリコーン樹脂を有するLED部品の断面図を示す。LEDデバイスはソフトシリコーン503、例えばラバーまたはゲルに封入されたLEDチップ504を含む。LEDチップ504はワイヤー502でリードフレーム505に接合される。LEDチップ504、ワイヤー502およびソフトシリコーン503は硬化シリコーン樹脂から作られたドーム501で包まれている。

20

#### 【0088】

##### [実施例]

以下の実施例は本発明を当業者に説明することを意図しており、特許請求項に記述されている本発明の範囲を限定するものとして解釈されるべきではない。

#### 【実施例1】

#### 【0089】

##### [実施例1 - 湾曲レンズの製造]

湾曲レンズは本発明の方法に従って図1の射出成形装置および図2及び3の金型を用いて製造される。金型は表1に示される温度( )で加熱される。付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物が静的ミキサー104を経由して押出し機105に供給され、その硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物の分量(立方インチ、c in<sup>3</sup>)がアセンブリ110に供給される。その分量は表1に示されている。この分量の硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は: 82.5部のD<sup>V</sup><sub>i</sub><sub>1</sub><sub>0</sub>D<sub>1</sub><sub>5</sub>T<sup>P</sup><sub>h</sub><sub>7</sub><sub>5</sub>、10部のM<sup>V</sup><sub>i</sub>D<sup>P</sup><sub>h</sub><sub>2</sub>、10部のM<sup>V</sup><sub>i</sub><sub>3</sub>T<sup>P</sup><sub>h</sub>、M<sup>H</sup><sub>6</sub><sub>0</sub>、T<sup>P</sup><sub>h</sub><sub>4</sub><sub>0</sub>、0.013部の白金触媒および0.10部の式 [HC C-C(Me)<sub>2</sub>-O]<sub>3</sub>SiMeの白金触媒抑制剤(ここで、下付き文字はシロキサン単位の数を表し、上付き文字はメチル以外のケイ素結合一価基を示す)からなる。

30

#### 【0090】

該分量のオルガノポリシロキサン樹脂組成物は金型106内に注入され、その組成物は段階的に型キャビティ201に注入される。各段階での射出圧(ポンド/平方インチ、psi)、射出速度(立方インチ/秒、c ins)、及び射出体積(c in<sup>3</sup>)が表1に示されている。射出の間加えられた背圧(psi)およびスクリュー速度(円周速度、フィート/分、f pm)もまた表1に示されている。

40

#### 【0091】

該組成物はその後、表1に示されている圧力及び時間で、金型内に保持される。保持段階1(表1中に示されている)の開始圧力は保持段階1の時間内に徐々に保持段階2での圧力まで下げられる。その後、組成物は保持段階2での条件下で保持される。組成物は、得られるレンズが金型から取り外すのに十分固化されるまで、表1に示されている時間硬化される。その後、レンズは脱型される。湾曲レンズの目視評価が表1に記録されている。実施例1は、許容される湾曲レンズが該組成物を用いて各種の成形方法条件で製造できることを示している。

50

## 【実施例 2】

## 【0092】

## [実施例 2 - 湾曲レンズの製造]

湾曲レンズが、実施例 1 の方法に従って、表 2 の成形条件を用いて製造される。実施例 2 の硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、82.5 部の  $T^{Ph}_{0.75}Q_{0.1}$   
 $M^{Vi}_{0.15}$ 、8.9 部の  $Ph_2Si(OSiMe_2H)_2$ 、5.9 部の  $PhSi(OSiMe_2H)_3$ 、1.01 部のビス・ジフェニルホスフィノプロパン、および百万分の 5 部 (5 ppm) の白金触媒からなる。比較 1~4 は、同じ処方でも、供給量が少なすぎるとき、背圧が低すぎるとき、またはその両方のときに不完全注入となってしまうことを示している。5~18 は許容される成形品が各種の製造条件で生産可能であることを示している。10

## 【実施例 3】

## 【0093】

## [実施例 3 - 湾曲レンズの製造]

湾曲レンズが、実施例 1 の手順に従って、表 3 の成形条件を用いて製造される。実施例 3 でのオルガノポリシロキサン樹脂組成物は、67.5 部のダウコーニング (登録商標) シルガード (登録商標) 184 パート A、9.5 部のダウコーニング (登録商標) シルガード (登録商標) 184 パート B、9.01 部の  $Si(OSiMe_2CH=CH_2)_4$ 、および 13.9 部の  $MD_{3.2}D^H_{5.8}M$  からなる。比較 1~7 では、供給システムで取り込まれた空気のため許容できるレンズが作れない。8~13 では気泡が存在するが許容できるレンズが作れる。該組成物が加工され、かつ取り込まれた空気は除去されるので、レンズの品質はこの実施例で改善された。20

## 【実施例 4】

## 【0094】

## [実施例 4 - 垂直方向の金型での湾曲レンズの製造]

湾曲レンズが、本発明の方法に従って、金型の方向が水平から垂直に変更したことを除いて、図 1 の射出成型装置および図 2 及び 3 の金型を用いて製造される。実施例 4 の二液型付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、65% の  $T^{Ph}_{0.75}M^{Vi}_{0.25}$ 、21.6% の  $T^{Ph}_{0.75}Q_{0.10}M^{Vi}_{0.25}$ 、12% の  $HMe_2SiSiMe_2H$ 、0.4% の [  $Vi(Ph, Me)Si-O$  ]<sub>2</sub>、26 ppm のトリフェニルホスフィン抑制剤、および 5 ppm の白金触媒 (ここで、 $V$  はフェニレン基を表す) からなる。成形方法条件および結果は表 4 にある。実施例 4 はエアベントを上端に変えることなしに、金型方向を水平から垂直に変えることは、一定の成形製造条件でこの装置およびこのシリコーン封止剤組成物を用いて水平金型方向より効果が弱いことを示している。30

## 【実施例 5】

## 【0095】

## [実施例 5 - 湾曲レンズの製造]

湾曲レンズを実施例 1 の方法に従って、表 5 の成形条件を用いて製造する。実施例 5 の二液型付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、39.7 部の  $T^{Ph}_{0.75}M^{Vi}_{0.25}$ 、13.3 部の  $T^{Ph}_{0.75}Q_{0.10}M^{Vi}_{0.25}$ 、34.8 部の  $M^{Vi}_{DPh}_{2.2}M^{Vi}_{0.2}$ 、4.3 部の  $SiPh_2(OSiMe_2H)_2$ 、5.9 部の  $SiPh(OSiMe_2H)_3$ 、22 ppm のトリフェニルホスフィン抑制剤、および 3 ppm の白金触媒からなる。実施例 5 は、許容できるレンズが該組成物から 1~6 および 9~18 で、さまざまな成形製造条件で製造できることを示している。7 と 8 はオルガノポリシロキサン樹脂の熱履歴が成形レンズを黄変する原因となり、許容できるレンズを生産できなかった。40

## 【実施例 6】

## 【0096】

## [実施例 6 - 湾曲レンズの製造]

10

20

30

40

50

湾曲レンズを実施例 1 の方法に従って、表 6 の製造条件を用いて製造される。実施例 6 の二液型付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、51.5 部の  $D^{V_i}_{10}$  10 部の  $T^{P_h}_{15}$  7.5、10 部の  $M^{V_i}_{2} D^{P_h}_{10}$  2、10 部の  $M^{V_i}_{3} T^{P_h}_{10}$  3、28.4 部の  $M^{H_6}_{0} T^{P_h}_{6}$  4.0、0.013 部の白金触媒、および 0.10 部の式 [ H C - C ( M e )<sub>2</sub> - O ]<sub>3</sub> SiMe の抑制剤からなる。実施例 6 は、良好な湾曲レンズが該組成物から、さまざまな成形方法条件で製造できることを示している。

#### 【実施例 7】

##### 【0097】

###### [実施例 7 - 湾曲レンズの製造]

湾曲レンズを実施例 1 の方法に従って、表 7 の成形条件を用いて製造される。実施例 7 の二液型付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、39.7 部の  $T^{P_h}_{0.75}$  0.25、15.3 部の  $T^{P_h}_{0.75}$  0.10  $M^{V_i}_{0.25}$  、34.8 部の  $M^{V_i}_{2.2} D^{P_h}_{0.20}$   $M^{V_i}_{1}$  、4.3 部の  $SiPh_2 (OSiMe_2H)_2$  、5.9 部の  $SiPh (OSiMe_2H)_3$  、22 ppm のトリフェニルホスフィン抑制剤、および 3 ppm の白金触媒からなる。実施例 7 は、良好な湾曲レンズが該組成物から、さまざまな成形方法条件で製造できることを示している。

#### 【実施例 8】

##### 【0098】

###### [実施例 8 - フレネルレンズの製造]

フレネルレンズが本発明の方法に従って、図 1 の射出成型装置およびフレネルレンズ金型を用いて製造される。金型は表 8 に示されている温度( )に加熱される。二液型付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物が静的ミキサー 104 を経由して押出し機 105 に供給され、その硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物の分量がアセンブリ 110 に供給される。この硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、実施例 6 のものと同じである。

##### 【0099】

硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は段階的に型キャビティ 201 に注入される。各段階での射出圧(ポンド/平方インチ、psi)、射出速度(立方インチ/秒、cins)および射出体積(cin)が表 8 に示されている。射出の間加えられた背圧(psi)およびスクリュー速度(フィート/分、fpm)もまた表 8 に示されている。

##### 【0100】

該組成物はその後、表 8 で示されている圧力かつ時間で金型内に保持される。保持段階 1(表 8 中に示されている)の開始圧力は保持段階 1 の時間内に徐々に保持段階 2 での圧力まで下げられる。その後、組成物は保持段階 2 での条件下で保持される。組成物は、得られるレンズが金型から取り外すに十分固化されるまで、表 8 に示されている時間硬化される。その後、レンズは脱型される。湾曲レンズの目視評価が表 8 に記録される。実施例 8 は実施例 8 で使われた組成物をあまりにも長くまたはあまりにも高い温度で硬化させると、成形されたレンズが薄くなりもししくはもろくなり、または脱型を少々難しくする原因となる。しかしながら、許容されるレンズが実施例 8 の方法条件下で生産される。

#### 【実施例 9】

##### 【0101】

###### [実施例 9 - フレネルレンズの製造]

フレネルレンズが実施例 8 の方法に従って、表 9 の方法条件を用いて製造される。実施例 9 は許容できるフレネルレンズがこの装置かつこの硬化性シリコーン封止剤組成物で成形方法条件を調整することにより生産できることを示している。比較 1 ~ 8 はこれらの方法条件には、過度に満たすこと、フラッシュを有する成形レンズを得ることなく、完全に金型を満たすために、多量に必要であることを示している。9 ~ 15 は許容できるレンズを生産する。

##### 【実施例 10】

##### 【0102】

10

20

30

40

50

## [実施例10 - 型キャビティへの離型剤の塗布の効果]

湾曲レンズが、製法を始めるときに型キャビティの表面に離型剤を塗布することを除き、実施例1の方法に従って、製造される。離型剤はテフロン（登録商標）スプレーである。実施例10の硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物は、51部のD<sup>V i</sup><sub>1 0</sub>D<sub>1 5</sub>T<sup>P h</sup><sub>7 5</sub>、10部のM<sup>V i</sup>D<sup>P h</sup><sub>2</sub>、10部のM<sup>V i</sup><sub>3</sub>T<sup>P h</sup>、28.4部のM<sup>H</sup><sub>6 0</sub>T<sup>P h</sup><sub>4 0</sub>、0.5部のM[D<sup>P h</sup>、MeD]<sub>3</sub>M、0.013部の白金触媒、および0.10部の式[H C C - C (Me)<sub>2</sub> - O]<sub>3</sub>SiMeの抑制剤からなる。成形製造条件および結果は表10にある。

## 【実施例11】

## 【0103】

10

## [実施例11 - 離型剤の付加反応硬化性オルガノポリシロキサン樹脂組成物への添加の効果]

テフロン（登録商標）スプレーを排除し、25で100から150cpsの粘度を有するトリメチルシロキシ末端（ジメチルシロキサン／フェニルメチルシロキサン）共重合体0.5%を組成物に添加することを除いて、実施例10が繰り返された。実施例10および11は、実施例10の組成物に内部離型剤を添加する前は、たとえ離型剤が型キャビティに塗布されたとしても、33から100%の湾曲レンズは型から取り出すときにひびが入ることがある。しかしながら、内部離型剤が添加されたときは、離型は15成形サイクル後に容易となり、25サイクル後はひび割れがゼロに減ることがある。理論により縛られることを望まないが、この実施例で使用された内部離型剤は長い間に適当な状態にするものと考えられる。

20

## 【実施例12】

## 【0104】

## [実施例12および13 - 付加反応硬化性シリコーン樹脂組成物への離型剤の添加の効果]

実施例13ではテフロン（登録商標）スプレーを排除し、離型剤を該組成物に添加することを除いて、実施例10および11を繰り返した。実施例12で使われた該組成物は、51.5部のD<sup>V i</sup><sub>1 0</sub>D<sub>1 5</sub>T<sup>P h</sup><sub>7 5</sub>、10部のM<sup>V i</sup>D<sup>P h</sup><sub>2</sub>、10部のM<sup>V i</sup><sub>3</sub>T<sup>P h</sup>、28.4部のM<sup>H</sup><sub>6 0</sub>T<sup>P h</sup><sub>4 0</sub>、0.013部の白金触媒、および0.10部の[H C C - C (Me)<sub>2</sub> - O]<sub>3</sub>SiMeの抑制剤からなる。そして実施例13で使われた該組成物は、51部のD<sup>V i</sup><sub>1 0</sub>D<sub>1 5</sub>T<sup>P h</sup><sub>7 5</sub>、10部のM<sup>V i</sup>D<sup>P h</sup><sub>2</sub>、10部のM<sup>V i</sup><sub>3</sub>T<sup>P h</sup>、28.4部のM<sup>H</sup><sub>6 0</sub>T<sup>P h</sup><sub>4 0</sub>、0.5部のHO[Si(Ph, Me)O]<sub>4~7</sub>H、0.013部の白金触媒、および0.10部の[H C C - C (Me)<sub>2</sub> - O]<sub>3</sub>SiMeの抑制剤からなる。

30

## 【0105】

実施例12および13での各で用いられた成形条件は次のとおりである：金型温度150、量0.345cm<sup>3</sup>、背圧-150psi、スクリュー速度25、射出段階1での圧/速度/体積=3000/0.6/0.16、射出段階2での圧/速度/体積=2500/0.1/0.09、保持段階1での圧/時間=2500/10および保持段階2では1200/10、ならびに硬化時間30秒。表12および13は実施例12および13のそれぞれの結果を示している。理論により縛られることを望まないで、実施例13での内部離型剤が時間とともに型の状態を調整するものと考えられる。

40

## 【0106】

## [実施例14 - 離型剤なし]

該組成物が51.5部のD<sup>V i</sup><sub>1 0</sub>D<sub>1 5</sub>T<sup>P h</sup><sub>7 5</sub>、10部のM<sup>V i</sup>D<sup>P h</sup><sub>2</sub>、10部のM<sup>V i</sup><sub>3</sub>T<sup>P h</sup>、28.4部のM<sup>H</sup><sub>6 0</sub>T<sup>P h</sup><sub>4 0</sub>、0.013部の白金触媒、および0.10部の[H C C - C (Me)<sub>2</sub> - O]<sub>3</sub>SiMeの抑制剤からなることを除いて、実施例12が繰り返された。

## 【0107】

## [実施例15 - 黄変]

50

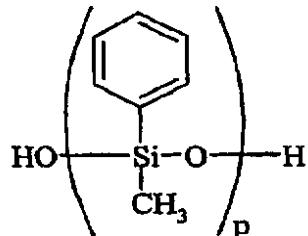
上述したとおり、成分( A )、( B )、( C )、( D )、および( E )からなるシリコーン組成物が製造され、硬化された。比較のためにバイエル社の P C およびゼオンケミカル社の商品名 T O P A Z (登録商標) シクロオレフィン共重合体( C O C )が硬化された。熱による変色が目視にて、A S T M D 1 5 4 4 に従ってガードナー・カラー・スケールにて測定された。シリコーンと P C サンプルは 5 m m 厚の板であった。C O C サンプルはレンズであった。結果は表 1 4 にある。

## 【 0 1 0 8 】

## [ 実施例 1 6 および 1 7 ]

これらの実施例では、「 M V i 2 D P h 、 M e c c 」は、500 から 50,000 c S t の範囲の粘度および 50 から 500 の範囲の下付き文字 c c を有するジメチルビニルシリキシ末端メチルフェニルシロキサンである。あるいは、粘度は 2,000 から 25,000 までの間であり、c c は 100 から 250 までの間であってよい。「 M V i 0 . 2 5 T P h 0 . 7 5 」は 45 部のトルエンと 55 部のビニル末端フェニルシリセスキオキサン樹脂の溶液である。この樹脂は固体である。「 M H 0 . 6 T P h 0 . 4 」は、98 部の水素末端フェニルシリセスキオキサンと 2 部のフェニルトリス(ジメチル水素シリキシ)シランの 1 から 100 m P a · s の範囲の粘度を有する混合物である。「離型剤」は次式のヒドロキシ末端メチルフェニルポリシリコキサン：

## 【 化 5 】



(ここで、p は 3 から 10 の範囲の整数である)である。「P t」は 38 部のテトラメチルジビニルジシロキサンおよび 62 部の 1,3 - ジエテニル - 1,1,3,3 - テトラメチルジシロキサン白金錯体の混合物である。「E t c h」は 1 - エチニル - 1 - シクロヘキサノールである。「抑制剤」はメチル(トリス(1,1 - デミチル - 2 - プロピニルオキシ))シランである。

## 【 0 1 0 9 】

## [ 実施例 1 6 - 抑制剤の効果 ]

サンプルが次の成分を混合することにより製造された：54 部の M V i 0 . 2 5 T P h 0 . 7 5 、24 部の M V i 2 D P h 、 M e c c 、21 部の M H 0 . 6 T P h 0 . 4 、1 部の離型剤、2 部の P t 、および百万分の 750 部の E t c h 。このサンプルは 200 に加熱して硬化され、1.8 m m 厚の試料を形成した。試料は 200 で 14 日間までエージングし、いろいろな時間に 400 n m での % 透過率を測定した。結果は表 1 5 にある。

## 【 0 1 1 0 】

## [ 実施例 1 7 - 抑制剤の効果 ]

サンプルが次の成分を混合することにより製造された：54 部の M V i 0 . 2 5 T P h 0 . 7 5 、24 部の M V i 2 D P h 、 M e c c 、21 部の M H 0 . 6 T P h 0 . 4 、1 部の離型剤、2 部の P t 、および百万分の 250 部の抑制剤。このサンプルは 200 に加熱して硬化され、1.8 m m 厚の試料を形成した。試料は 200 で 14 日間までエージングし、いろいろな時間に 400 n m での % 透過率を測定した。結果は表 1 5 にある。

## 【 0 1 1 1 】

実施例 1 7 および実施例 1 6 は、成分( A )、( B )、( C )、( D )、( E )、および( F )からなる上述のシリコーン組成物が、200 14 日間加熱後に厚さ 1.8 m m で 400 n m 波長での光透過性 95 % 以上の硬化シリコーン樹脂の製造に用いられ得ることを示している。実施例 1 6 は、ヒドロシリル化反応硬化性シリコーン組成物向けの従来

10

20

30

40

50

の有機アセチレンアルコール抑制剤、例えば1-エチニル-1-シクロヘキサノールなどが200-14日間加熱後に厚さ1.8mmで400nm波長での光透過性95%以上の硬化シリコーン樹脂の製造に不適であることを示している。

【0112】

[産業利用性]

シリコーン組成物は光学部品、例えば導光体やLEDパッケージなどの製造に有用である。該組成物を硬化させて製造されるシリコーン封止材などの硬化シリコーン樹脂はLEDパッケージの高められた光透過性、強化された信頼性および長くなった耐用期限の利点を提供する。シリコーン封止材はLED用途での温度及び湿度抵抗性においてエポキシ封止材を超えて優れた性能を見せる。該シリコーン組成物および方法は、以下に限定されないが、シリンダー状、長方形、簡素な凸レンズ、パターン化レンズ、織目表面、半球体および帽子状を含む形状の硬化シリコーン樹脂を製造するに用いられる。光学部品用途では、封止材は成形(射出成形もしくはトランスマルク成形)または注型によって、予備的に製造される。あるいは、固いまたは柔軟な基材の上で光学部品アセンブリを覆う成形、オーバーモールドまたはインサート成型と呼ばれる成形方法が、上述のシリコーン組成物を用いて同様に行うことができる。上述の導光体は光源からの光を内部反射によって画面に伝送するために使われる。そのような用途にはディスプレイの背面照明ユニット、車両照明、そしてメッセージ・ボード用途が含まれる。

10

【0113】

【表1】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリューサイド 速度	射出段階1 速度	射出段階2 速度	保持段階1 時間	保持段階2 時間	時間	硬化						
1	100	0.2975	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	60	SB
2	100	0.2975	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	60	SB
3	100	0.3050	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	45	SB
4	115	0.3050	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	45	SB
5	115	0.3050	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	35	SB
6	115	0.3050	-200	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	35	SB
7	115	0.3050	-300	35	2700	0.2	0.18	2450	0.04	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
8	115	0.3100	-300	35	2700	0.2	0.18	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
9	115	0.3100	-300	35	2700	0.2	0.18	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
10	115	0.3100	-350	35	2700	0.2	0.18	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
11	115	0.3100	-350	35	2700	0.2	0.18	2450	0.07	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
12	115	0.3100	-400	35	2700	0.2	0.18	2450	0.07	0.09	2300	8	1700	4.5	30	SB
13	115	0.3100	-400	35	2700	0.22	0.18	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
14	115	0.3100	-450	15	2700	0.22	0.18	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
15	115	0.3100	-450	15	2700	0.22	0.18	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
16	115	0.3100	-450	15	2800	0.23	0.12	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
17	115	0.3100	-450	5	2800	0.23	0.12	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
18	115	0.3100	-450	5	2800	0.23	0.12	2450	0.08	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
19	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
20	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
21	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2450	0.06	0.09	2300	8	1700	4.5	29	SB
22	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2300	0.06	0.09	2200	8	1700	4.5	29	SB
23	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2300	0.06	0.09	2100	8	1700	4.5	29	SB
24	115	0.3300	-450	5	2900	0.25	0.16	2200	0.05	0.08	2500	8	1700	4.5	29	SB
25	115	0.3300	-450	5	3000	0.25	0.14	2400	0.06	0.09	1800	4.5	NA	NA	29	SB

NAは、適用していないことを意味する。  
SBは、レンズに小さな泡が存在していることを意味する。

【表2】

#	金型 温度	量 (c in)	背圧	スクリュー速度	射出段階 1			射出段階 2			保持段階 1 時間	保持段階 2 時間	硬化 時間	性能		
					圧	速度	体積	圧	速度	体積						
1	150	0.2925	100	25	2000	0.2	0.18	1500	0.04	0.09	1000	8	800	4.5	100	IF
2	150	0.2925	-25	25	2500	0.2	0.18	2000	0.04	0.09	2000	8	1500	4.5	100	IF
3	150	0.2975	-25	25	3000	0.2	0.18	2000	0.04	0.09	2000	8	1500	4.5	100	IF
4	150	0.3050	-50	30	3250	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	60	IF
5	150	0.3050	-100	30	3250	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	60	B
6	150	0.3050	-100	30	3500	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	50	B
7	150	0.3050	-100	30	3500	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	50	B
8	150	0.3050	-100	30	3500	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	45	B
9	150	0.3050	-100	30	3500	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	37.5	B
10	150	0.3050	-100	30	3500	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	37.5	B
11	150	0.3050	-100	30	3250	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	35	B
12	150	0.3050	-100	30	3250	0.2	0.18	2500	0.04	0.09	2500	8	1750	4.5	32.5	B
13	150	0.3050	-100	30	3100	0.2	0.18	2750	0.04	0.09	2450	8	1750	4.5	30	G
14	150	0.3050	-100	30	2900	0.2	0.18	2400	0.04	0.09	2450	8	1750	4.5	29	G
15	150	0.3050	-100	30	2900	0.2	0.18	2400	0.04	0.09	2450	8	1750	4.5	28	G
16	150	0.3050	-150	30	2900	0.2	0.18	2350	0.04	0.09	2850	8	1700	4.5	27	G
17	150	0.3050	-150	30	2900	0.2	0.18	2350	0.04	0.09	2700	8	2300	4.5	28	G
18	150	0.2975	-150	30	2900	0.2	0.18	2350	0.04	0.09	2700	8	2300	4.5	28	G

「F」は、金型が完全に充填されていなかったこと（不完全注入）を意味する。

「B」は、レンズに泡が存在していることを意味する。

「G」は、良好なレンズが製造されたことを意味する。

【表3】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュー速度	射出段階 1			射出段階 2			保持段階 1 時間	保持段階 2 時間	硬化 時間	性能
					圧	速度	体積	圧	速度	体積				
1	150	0.3700	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
2	150	0.4045	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
3	150	0.4045	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
4	150	0.4045	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
5	150	0.4045	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
6	150	0.4045	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
7	150	0.4185	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	A/H
8	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	clear
9	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	SB
10	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	SB
11	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	SB
12	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	SB
13	150	0.3950	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	SB
14	150	0.3900	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	G
15	150	0.3850	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	G
16	150	0.3850	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	G
17	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
18	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
19	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
20	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
21	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
22	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG
23	150	0.3800	-2000	75	4000	0.6	0.4	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	VG

A/Hは、レンズが空気（エア）および墨りを有することを意味する。

Gは、良好なレンズ形状であることを意味する。

VGは、非常に良好なレンズ形状であることを意味する。

【表4】

#	金型温度	量 (cm)	背圧	スクリュー速度		射出段階 1		射出段階 2		保持段階 1		保持段階 2		硬化	性能	
				圧	速度	体積	圧	速度	体積	圧	時間	圧	時間			
1	150	0.3800	40	150	4000	0.6	0.14	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	4.5	75	-2000 未硬化
2	150	0.3800	120	150	4000	0.6	0.14	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	4.5	75	-2000 LB
3	150	0.3800	90	150	4000	0.6	0.14	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	4.5	75	-2000 割れやすい
4	150	0.3800	70	150	4000	0.6	0.14	2800	0.1	0.09	2700	8	1700	4.5	75	-2000 割れやすい
5	150	0.3800	60	150	3000	0.3	0.14	2000	0.06	0.09	2700	8	1700	4.5	75	-2000 割れやすい
6	150	0.3800	60	150	3000	1.0	0.14	2000	0.06	0.08	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 SB
7	150	0.3800	50	150	3000	2.0	0.14	2000	0.4	0.08	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 未硬化
8	150	0.3800	65	150	3000	2.0	0.2	2000	0.3	0.1	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 未硬化
9	150	0.3800	70	150	4500	3.0	0.2	2500	0.5	0.1	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 未硬化
10	150	0.3800	70	150	3500	0.8	0.16	2500	0.2	0.09	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 LB
11	150	0.3800	70	150	4000	0.6	0.14	2800	0.1	0.09	1900	0.8	1700	4.5	75	-2000 LB

LBは、レンズ内に大きな泡が形成されたことを意味する。

表4

【0 1 1 7】

【表5】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュ－速度	射出段階1			射出段階2			保持段階1			保持段階2			硬化 時間	性能
					速度	圧	体積	速度	圧	体積	圧	時間	圧	時間	圧	時間		
1	150	0.3300	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2200	8	1500	4.5	120	SB		
2	150	0.3300	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2200	8	1500	4.5	120	SB		
3	150	0.3300	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2200	8	1500	4.5	120	SB		
4	150	0.3400	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2200	8	1500	4.5	120	SB		
5	150	0.3400	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2100	8	1500	4.5	120	SB		
6	150	0.3400	-500	30	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	2000	8	1500	4.5	100	VG		
7	150	0.3400	-500	30	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	95	LB		
8	150	0.3400	-500	25	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1800	8	1500	4.5	95	LB		
9	150	0.3400	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	90	G		
10	150	0.3400	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	85	G		
11	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	85	G		
12	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	80	G		
13	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	75	F		
14	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	70	F		
15	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	65	F		
16	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	60	F		
17	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	70	F		
18	150	0.3375	-500	20	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1900	8	1500	4.5	70	F		

表5

【0118】

【表6】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュー速度	射出段階1 速度	射出段階2 速度	体積 圧	速度	体積 圧	時間	圧	時間	保持段階1	保持段階2	硬化 時間	性能
1	150	0.330	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	50	G
2	150	0.330	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	45	G
3	150	0.350	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	45	G
4	150	0.350	-500	35	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	40	G
5	150	0.360	-250	25	3450	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	40	G
6	150	0.360	-250	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	40	G
7	150	0.360	-250	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	35	G
8	150	0.360	-250	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	35	G
9	150	0.360	-150	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	35	G
10	150	0.360	-150	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	30	G
11	150	0.360	-150	25	3200	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	30	G
12	150	0.360	-150	25	3000	0.6	0.16	2500	0.1	0.09	1950	8	1500	4.5	30	G

表6

【0 1 1 9】

【表7】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュー速度	射出段階1			射出段階2			保持段階1 時間	保持段階2 時間	硬化 時間	性能
					圧	速度	体積	圧	速度	体積				
1	150	0.330	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
2	150	0.330	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
3	150	0.330	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
4	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
5	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
6	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
7	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
8	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
9	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2100	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
10	150	0.340	-150	25	2900	0.6	0.16	2200	0.1	0.09	1950	8	1800	0.5
11	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2000	8	1800	0.5
12	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2000	8	1800	0.5
13	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2100	8	1800	0.5
14	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2100	8	1800	0.5
15	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2100	8	1800	0.5
16	150	0.340	-150	25	3000	0.6	0.16	2300	0.1	0.09	2100	8	1800	0.5

表7

【0 1 2 0】

【表8】

#	金型温度 量 (cin)	背圧	スクリュ ー速度	射出段階 1 圧	速度	体積	圧	時間	保持時間 1 圧	時間	保持時間 2 圧	時間	硬化	性能
1	150 0.05	-500 30	4000	0.6	0.04	2700	0.8	1700	0.45	50	空気泡			
2	150 0.07	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	70	もろいレンズ			
3	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
4	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
5	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
6	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
7	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
8	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	60	もろいレンズ			
9	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
10	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
11	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
12	150 0.09	-500 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
13	150 0.09	-100 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
14	150 0.09	-100 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			
15	150 0.09	-100 30	2800	0.18	0.02	2700	0.8	1700	0.45	45	もろいレンズ			

表8

【0 1 2 1】

【表9】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュ ー速度	射出段階 1 圧 速度 体積	射出段階 2 圧 速度 体積	保持段階 1 圧 時間	保持段階 2 圧 時間	硬化 時間	性能
1	150	0.090	-100	30	3000 0.3 0.04	2000 0.1 0.02	1900 8	1500 4.5	45	IF
2	150	0.090	-100	30	3000 0.3 0.04	2000 0.1 0.02	1900 8	1500 4.5	45	IF
3	150	0.090	-100	10	3000 0.3 0.04	2000 0.1 0.02	1900 8	1500 4.5	45	長い再注入
4	150	0.090	-100	15	3000 0.3 0.04	2000 0.1 0.02	1900 8	1500 4.5	45	
5	150	0.090	-75	15	2500 0.2 0.05	1700 0.08 0.03	1600 8	1000 4.5	45	
6	150	0.090	-50	15	2500 0.2 0.045	1800 0.08 0.025	1750 8	1300 4.5	45	より良好
7	150	0.095	-50	15	2300 0.18 0.045	1800 0.08 0.025	1750 8	1300 4.5	45	より良好
8	150	0.100	-25	15	2200 0.16 0.045	1700 0.07 0.025	1675 8	1300 4.5	45	より良好
9	150	0.100	-25	14	2100 0.15 0.045	1650 0.06 0.025	1625 8	1300 4.5	45	IF
10	150	0.105	-25	14	2100 0.15 0.045	1650 0.06 0.025	1625 8	1300 4.5	45	空気
11	150	0.105	-25	13	2000 0.14 0.045	1650 0.06 0.025	1625 8	1300 4.5	45	空気
12	150	0.105	-25	13	2100 0.14 0.05	1650 0.07 0.033	1625 8	1300 4.5	45	
13	150	0.105	-25	13	2100 0.14 0.05	1650 0.07 0.033	1625 8	1300 4.5	45	最も良好
14	150	0.105	-25	13	2100 0.14 0.05	1625 0.07 0.023	1625 8	1300 4.5	45	空気
15	150	0.105	-25	13	2100 0.14 0.052	1650 0.07 0.023	1625 8	1300 4.5	42	空気

表9

【0 1 2 2】

【表10】

#	金型 温度	量 (cm)	背圧	スクリュ ー速度	射出段階1 圧 度	射出段階2 圧 度	保持段階1 体積 圧 度	保持段階2 体積 圧 度	硬化 時間	時間	ポイド のある レンズ の数	亀裂の あるレ ンズの 数
1	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 3	困難 0
2	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 2	困難 1
3	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 2	困難 1
4	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 1	困難 2
5	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 1	困難 2
6	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 0	困難 3
7	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 2	困難 2
8	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 1	困難 2
9	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 1	困難 2
10	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 3	困難 2
11	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 2	困難 2
12	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 0	困難 2
13	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 3	困難 3
14	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 3	困難 3
15	150	0.345	-150	25	3000	0.6 0.16	2500	0.1 0.09	2160 8	1500 0	30 3	困難 3

表10

【0 1 2 3】

【表11】

表11

#	ボイドのあるレンズの数	難型	亀裂のあるレンズの数
1	1	困難	2
2	0	困難	2
3	1	困難	3
4	3	困難	3
5	0	困難	3
6	0	困難	3
7	1	困難	3
8	1	困難	3
9	3	困難	3
10	3	困難	3
11	3	困難	3
12	3	困難	3
13	3	困難	1
14	3	困難	1
15	3	適度	3
16	3	適度	3
17	3	適度	2
18	3	適度	2
19	3	適度	1
20	2	適度	2
21	2	適度	1
22	2	容易	1
23	0	容易	2
24	0	容易	1
25	3	容易	1
26	3	容易	1
27	2	容易	0
28	0	容易	0
29	0	容易	0
30	0	容易	0

10

20

30

【0 1 2 4】

【表12】

表12

#	ボイドのあるレンズの数	離型	亀裂のあるレンズの数
1	1	良	1
2	0	良	1
3	1	良	2
4	2	良	2
5	0	良	2
6	0	良	2
7	0	困難	3
8	0	困難	2
9	0	困難	3
10	0	良	2
11	0	良	2
12	0	良	2

10

【0125】

【表13】

20

表13

#	ボイドのあるレンズの数	離型	亀裂のあるレンズの数
1	0	良	1
2	0	良	2
3	0	良	3
4	0	良	2
5	0	良	2
6	0	良	2
7	0	良	2
8	0	良	2
9	0	良	2
10	0	容易	0
11	0	容易	0
12	0	容易	1
13	0	容易	0
14	0	容易	0

30

【0126】

【表14】

40

表14

加熱プロフィル	シリコーン	P C	C O C
150°Cで5日間	変化なし(1)	黄色(4)	黄色(3)
200°Cで16時間	変化なし(1)	濃黄色(6)	茶色(12)

【0127】

## 【表15】

表15

400 nmでの%透過率 (1.8mm厚)	エージング前	200°Cで 1日間	200°Cで 7日間	200°Cで 14日間
実施例16	97	96	92	92
実施例17	98	98	98	98

## 【0128】

10

## [図面の説明]

[図1] 図1は、本発明の方法に使用される液体射出成形プロセス装置の略図である。

[図2] 図2は、図1で線109に沿った金型106の一つ側の断面図である。

[図3] 図3は、図2の金型106の反対側の断面図である。

[図4a] 図4aは、LED401と導光体402を含む光学部品の断面図である。

[図4b] 図4bは、LED401、シリコーン導光体402および有機導光体404を含む光学部品の断面図である。

[図4c] 図4cは、LED401と導光体402を含む光学部品の断面図である。

[図5] 図5はLEDパッケージの断面図である。

## 【符号の説明】

## 【0129】

20

100 液体射出成形プロセス装置

101 供給システム

102 供給タンク

103 供給タンク

104 静的ミキサー

105 押出し機

106 金型

107 注入口

108 水平切断線

109 垂直切断線

30

110 組立部(アセンブリ)

201 型キャビティ

202 エアベント(ガス抜き口)

203 スブルー

204 ランナー

205 ゲート

300 ボタン

401 LED

402 導光体(シリコーン)

40

403 入り口

404 有機導光体

405 出口

406 光結合剤

407 クラッド

408 処理された表面

501 ドーム

502 ワイヤー

503 ソフトシリコーン

504 LEDチップ

505 リードフレーム

50

【図1】

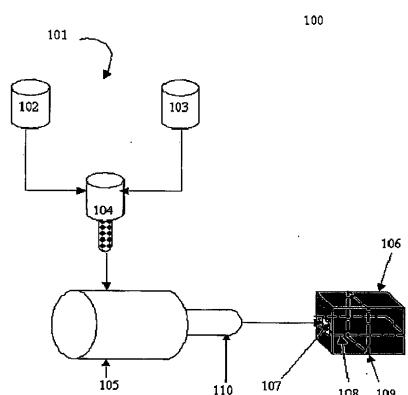


Figure 1

【図2】

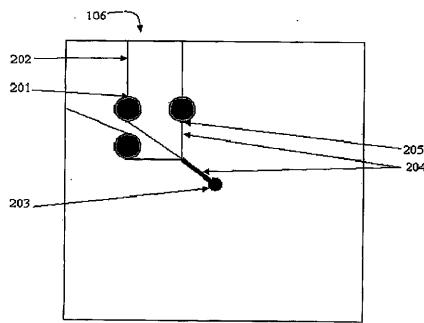


Figure 2

【図3】

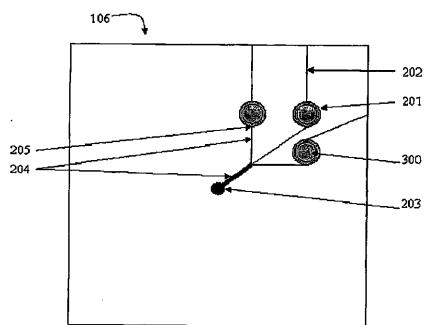


Figure 3

【図4 a】

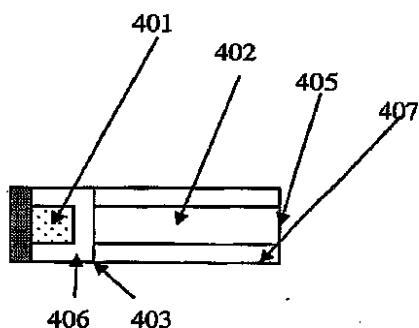


Figure 4a

【図 4 b】

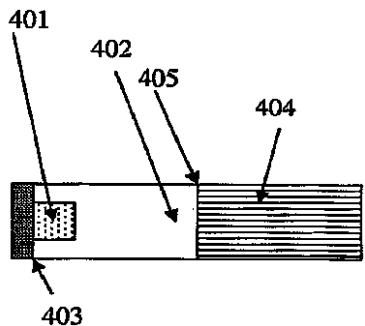
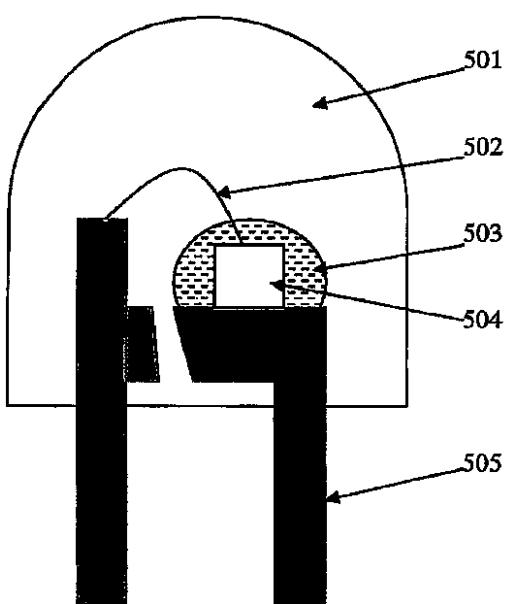


Figure 4b

【図 5】



【図 4 c】

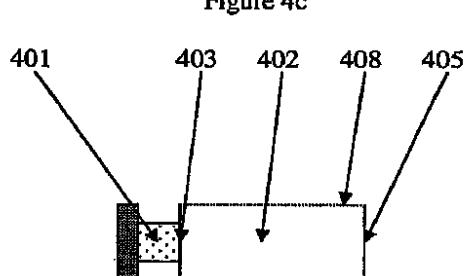


Figure 4c

Figure 5

## 【手続補正書】

【提出日】平成21年4月28日(2009.4.28)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0038

【補正方法】変更

## 【補正の内容】

## 【0038】

成分(B)は、式(I)：( $R^3SiO_{3/2}$ )<sub>b</sub>( $R^3_2SiO_{2/2}$ )<sub>c</sub>( $R^3_3SiO_{1/2}$ )<sub>d</sub>( $SiO_{4/2}$ )<sub>e</sub>( $XO_{1/2}$ )<sub>f</sub>、(ここで、各 $R^3$ は上記のとおりであり、Xは水素原子または一価炭化水素基例えはアルキル基であり、下付き文字bは正数であり、下付き文字cは0または正数であり、下付き文字dは0または正数であり、下付き文字eは0または正数であり、下付き文字fは0または正数であり、c/bは0から10の範囲の数であり、d/bは0から0.5の範囲の数であり、e/(b+c+d+e)は0から0.3の範囲の数であり、f/(b+c+d+e)は0から0.4の範囲の数である)を有する。式(I)で、ポリオルガノシロキサンは一分子あたり平均して少なくとも1個の脂肪族不飽和有機基を含有するが、 $R^3$ の0.1モル%から40モル%は不飽和有機基である。式(I)で、ポリオルガノシロキサンは一分子あたり平均して少なくとも1個の芳香族基を含有するが、 $R^3$ の少なくとも10モル%は芳香族基である。さらに、式 $R^3_2SiO_{2/2}$ のD単位において、 $R^3$ の少なくとも30モル%は芳香族基である。下付き文字fが正数であれば、組成物は2から17%の成分(B)を含有するのがよい。

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) 1分子あたり平均して、少なくとも2個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有するポリジオルガノシロキサン；

(B) 1分子あたり平均して、少なくとも1個の脂肪族不飽和有機基および少なくとも1個の芳香族基を有する分岐状ポリオルガノシロキサン；

(C) 1分子あたり平均して少なくとも2個のケイ素結合水素原子および少なくとも1個の芳香族基を有するポリオルガノ水素シロキサン、

(D) ヒドロシリル化触媒

からなる組成物の硬化物からなる導光体であって、デュロメータ・ショアAで測定して少なくとも50の硬さを有し、かつ1.40より大きな屈折率を有する導光体。

【請求項2】

前記成分(A)が式  $R^1_3SiO - (R^2_2SiO)_a - SiR^1_3$  (ここで、各  $R^1$  および各  $R^2$  は独立して、脂肪族不飽和有機基、芳香族基、および芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基からなる群から選ばれ、下付き文字aは成分(A)に25で10から1,000,000mPa·sまでの範囲の粘度を与えるに十分な値を有する整数であり、ただし平均して  $R^1$  および / または  $R^2$  の少なくとも2個が不飽和有機基であり、かつ  $R^1$  および / または  $R^2$  の少なくとも1個は芳香族基である)を有する、請求項1に記載の導光体。

【請求項3】

前記成分(B)が単位式  $(R^3SiO_{3/2})_b (R^3_2SiO_{2/2})_c (R^3_3SiO_{1/2})_d (SiO_{4/2})_e (XO_{1/2})_f$  (ここで、各  $R^3$  は独立して、脂肪族不飽和有機基、芳香族基、および芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換または非置換炭化水素基からなる群から選ばれ、ただし1分子あたり平均して、 $R^3$  の少なくとも1個は脂肪族不飽和有機基で、かつ  $R^3$  の少なくとも1個は芳香族基であり；Xは水素原子または一価炭化水素基であり；bは正数であり；cは0または正数であり；dは0または正数であり；eは0または正数であり；fは0または正数であり；c/bは0から10までの範囲の数であり；d/bは0から0.5までの範囲の数であり；e/(b+c+d+e)は0から0.3までの範囲の数であり；f/(b+c+d+e)は0から0.4までの範囲の数である)を有する、請求項1または2に記載の導光体。

【請求項4】

前記成分(C)が、単位式  $(R^5SiO_{3/2})_h (R^5_2SiO_{2/2})_i (R^5_3SiO_{1/2})_j (SiO_{4/2})_k (XO)_m$  (ここで、Xは水素原子または一価炭化水素基であり；各  $R^5$  は独立して、水素原子、芳香族基、または芳香族を含まず且つ脂肪族不飽和を含まない一価置換もしくは非置換炭化水素基であり、ただし平均して1分子あたり  $R^5$  の少なくとも2個は水素原子で、平均して  $R^5$  の少なくとも1個は芳香族基であり；hは正数であり；iは0または正数であり；jは0または正数であり；kは0または正数であり；mは0または正数であり；i/hは0から10までの範囲の値を有し；j/hは0から5までの範囲の値を有し；k/(h+i+j+k)は0から0.3までの範囲の値を有し；そしてm/(h+i+j+k)は0から0.4までの範囲の値を有する)の分岐状ポリオルガノ水素シロキサンからなる、請求項1～3のいずれか一項に記載の導光体。

【請求項5】

- a) 請求項1～4のいずれか一項に記載の導光体、
- b) 前記導光体の入り口に連結された光源、そして
- c) 前記導光体の出口に連結された有機光学部品からなる機器。

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/US2007/018648												
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. G02B1/04 C08G77/04														
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC														
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G02B C08L														
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched														
Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)  EPO-Internal, WPI Data														
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category*</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">US 2003/234458 A1 (GARDNER GEOFFREY BRUCE [US] ET AL) 25 December 2003 (2003-12-25) claim 1 paragraph [0117]; examples 1-3</td> <td style="padding: 2px;">1,11,12, 16</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">WO 2005/033207 A (DOW CORNING TORAY SILICONE [JP]; MORITA YOSHITSUGU [JP]; TERADA MASAYO) 14 April 2005 (2005-04-14) pages 18-19; examples 1,2 claims 1,6</td> <td style="padding: 2px;">1,11,12, 16</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">WO 2004/074885 A (NUSTI TECHNOLOGY [US]) 2 September 2004 (2004-09-02) page 1 claims 1,4 examples 1-4</td> <td style="padding: 2px;">1,11,12, 16</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	A	US 2003/234458 A1 (GARDNER GEOFFREY BRUCE [US] ET AL) 25 December 2003 (2003-12-25) claim 1 paragraph [0117]; examples 1-3	1,11,12, 16	A	WO 2005/033207 A (DOW CORNING TORAY SILICONE [JP]; MORITA YOSHITSUGU [JP]; TERADA MASAYO) 14 April 2005 (2005-04-14) pages 18-19; examples 1,2 claims 1,6	1,11,12, 16	A	WO 2004/074885 A (NUSTI TECHNOLOGY [US]) 2 September 2004 (2004-09-02) page 1 claims 1,4 examples 1-4	1,11,12, 16
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
A	US 2003/234458 A1 (GARDNER GEOFFREY BRUCE [US] ET AL) 25 December 2003 (2003-12-25) claim 1 paragraph [0117]; examples 1-3	1,11,12, 16												
A	WO 2005/033207 A (DOW CORNING TORAY SILICONE [JP]; MORITA YOSHITSUGU [JP]; TERADA MASAYO) 14 April 2005 (2005-04-14) pages 18-19; examples 1,2 claims 1,6	1,11,12, 16												
A	WO 2004/074885 A (NUSTI TECHNOLOGY [US]) 2 September 2004 (2004-09-02) page 1 claims 1,4 examples 1-4	1,11,12, 16												
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		<input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.												
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority, claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed														
Date of the actual completion of the international search  4 February 2008		Date of mailing of the International search report  28/03/2008												
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Bezard, Stéphane												

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

<p>International application No. PCT/US2007/018648</p>
--

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
  
  
2.  Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International search can be carried out, specifically:
  
  
  
3.  Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

**see additional sheet**

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
  
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
  
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
  
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this International search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-16

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

International Application No. PCT/US2007 /018648

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-16

a light guide comprising a cured product of a composition comprising:  
(A) a polydiorganosiloxane having an average, per molecule, of at least two aliphatically unsaturated organic groups and at least one aromatic group;  
(B) a branched polyorganosiloxane having an average, per molecule, of at least one aliphatically unsaturated organic groups and at least one aromatic group;  
(C) a polyorganohydrogensiloxane having an average, per molecule, of at least two silicon-bonded hydrogen atoms and at least one aromatic group,  
(D) a hydrosilylation catalyst;  
wherein the lightguide has a hardness as measured by durometer Shore A of at least 50, and the lightguide has a refractive index > 1,40 (claim 1)  
as well as the device comprising the lightguide (independant claim 11), the process for preparing the lightguide (independant claim 12) and the lightguide prepared by this process (independant claim 16).

2. claims: 17-30

a process comprising:  
1) heating a mold having a mold cavity at a temperature ranging from 100°C to 200°C;  
2) feeding a quantity of a silicone composition including a mold release agent, where the composition has a viscosity ranging from 50 cps to 3000 cps at operating temperatures of the process, to an assembly for preventing the silicone encapsulant composition from flowing backward out of the assembly;  
3) injecting the silicone composition from the assembly into the mold cavity through a gate, where:  
- the mold cavity has a top and a bottom,  
- a vent is located at the top of the mold cavity,  
- the vent comprises a channel 0,1 mm to 1 mm wide by 0,0001 mm to 0,001 mm deep,  
- the gate is located at or near the bottom of the mold cavity, and  
- injecting is performed at a pressure ranging from 1000 psi to 10000 psi for up to 5 seconds;  
4) holding the silicone composition at 1000 psi to 10000 psi for an amount of time sufficient to prevent the silicone composition from flowing out of the mold cavity;  
5) curing the product of step 4) to form a lightguide; and  
6) installing the lightguide in a vehicule light (independant claim 17),  
as well as a lightguide comprising a cured product of a silicone composition (independant claim 26).

International Application No. PCT/US2007 /018648

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

3. claims: 30-31

- a device comprising-
- a) a lightguide fabricated from a silicon resin,
  - b) a light source coupled to an inlet of the lightguide, and
  - c) an organic optical device coupled to an outlet of the lightguide (independant claim 31).

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No  
PCT/US2007/018648

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 2003234458 A1	25-12-2003	AU 2003218445 A1		06-01-2004
		EP 1523525 A1		20-04-2005
		JP 2005531028 T		13-10-2005
		WO 2004000942 A1		31-12-2003
		US 2005232557 A1		20-10-2005
WO 2005033207 A	14-04-2005	CN 1863875 A		15-11-2006
		EP 1670863 A1		21-06-2006
		JP 2005105217 A		21-04-2005
		KR 20060096429 A		11-09-2006
		US 2007112147 A1		17-05-2007
WO 2004074885 A	02-09-2004	AT 363083 T		15-06-2007
		DE 602004006610 T2		21-02-2008
		EP 1599747 A1		30-11-2005
		JP 2006519896 T		31-08-2006

## フロントページの続き

(51) Int.CI.	F I	テーマコード(参考)
G 0 2 B 6/12 (2006.01)	G 0 2 B 6/12	N
G 0 2 B 6/00 (2006.01)	G 0 2 B 6/00	3 3 1
C 0 8 L 83/05 (2006.01)	C 0 8 L 83/05	
C 0 8 L 83/07 (2006.01)	C 0 8 L 83/07	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MT,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 マネーシュ・バハドゥー

アメリカ合衆国・ミシガン・4 8 6 4 0 ・ミッドランド・パインウッド・ドライヴ・4 6 0 4

(72)発明者 ブライアン・ロバート・バークネス

アメリカ合衆国・ミシガン・4 8 6 4 0 ・ミッドランド・ワネタ・ドライヴ・5 4 1 1

(72)発明者 アフルーズ・ザリスフィ

アメリカ合衆国・ミシガン・4 8 6 4 0 ・ミッドランド・ハスキン・ドライヴ・4 0 0 7

(72)発明者 アン・ワルストロム・ノリス

アメリカ合衆国・ミシガン・4 8 6 4 2 ・ミッドランド・フォスター・ロード・5 1 0 2

F ターム(参考) 2H038 AA55 BA06

2H147 AB04 CA08 CA10 CD01 DA06 EA18A EA18B FA29 FD01 FD17
GA00 GA06
4F071 AA67 AB18 AB26 AB28 AC05 AC16 AE17 AE22 AF30 AH19
BA09 BB05 BC06 BC10
4J002 CP031 DE108 DE138 DE148 DJ018 DL008 EC036 EX016 EX047 FD018
FD167 FD206 GP01
4J246 AA03 AB15 BA02X BA020 BA310 BB02X BB020 CA01X CA010 CA33X
CA330 CA340 CA350 CA360 CA390 CA40X CA400 FA222 FC162 FD03
FD05 GC18 GC23 GD02 HA12