

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6415451号  
(P6415451)

(45) 発行日 平成30年10月31日(2018.10.31)

(24) 登録日 平成30年10月12日(2018.10.12)

(51) Int. Cl.		F I	
<b>HO2N</b>	<b>11/00</b>	<b>(2006.01)</b>	HO2N 11/00
<b>CO8L</b>	<b>83/05</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8L 83/05
<b>CO8L</b>	<b>83/07</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8L 83/07
<b>CO8K</b>	<b>3/00</b>	<b>(2018.01)</b>	CO8K 3/00
<b>CO8K</b>	<b>9/06</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8K 9/06

請求項の数 17 (全 43 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2015-550772 (P2015-550772)	(73) 特許権者	590001418
(86) (22) 出願日	平成25年12月26日(2013.12.26)		ダウ シリコーンズ コーポレーション
(65) 公表番号	特表2016-505693 (P2016-505693A)		アメリカ合衆国 48686-0994
(43) 公表日	平成28年2月25日(2016.2.25)		ミシガン州 ミッドランド ウェスト サ
(86) 国際出願番号	PCT/US2013/077830		ルツバーグ ロード 2200
(87) 国際公開番号	W02014/105965	(73) 特許権者	000110077
(87) 国際公開日	平成26年7月3日(2014.7.3)		東レ・ダウコーニング株式会社
審査請求日	平成28年12月16日(2016.12.16)		東京都千代田区大手町一丁目5番1号
(31) 優先権主張番号	61/746,596	(74) 代理人	100064908
(32) 優先日	平成24年12月28日(2012.12.28)		弁理士 志賀 正武
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100108578
(31) 優先権主張番号	61/746,597		弁理士 高橋 詔男
(32) 優先日	平成24年12月28日(2012.12.28)	(74) 代理人	100094400
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 鈴木 三義

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 トランスデューサー用硬化性オルガノシロキサン組成物及び硬化性シリコーン組成物のトランスデューサーへの使用

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

トランスデューサーの誘電体層又は電極層としての硬化性組成物の使用方法であって、前記硬化性組成物が、

(A) 硬化性オルガノポリシロキサン組成物であって、

(A11) 分子の両末端に、ケイ素原子に結合した水素原子を有し、水素原子の重量部分が、前記硬化性組成物の0.1~1.0重量%である、少なくとも1つの第1のタイプのオルガノヒドロジェンポリシロキサン、

(A12) 単一分子内に、ケイ素原子に結合した少なくとも3個の水素原子を有し、水素原子の重量部分が、前記硬化性組成物の0.03~2.0重量%である、少なくとも1つの第2のタイプのオルガノヒドロジェンポリシロキサン、

(A2) 単一分子内にアルケニル基を少なくとも2個有し、アルケニル基の重量部分が硬化性トランスデューサー組成物の0.05~0.5重量%である、少なくとも1種のオルガノポリシロキサン、及び

(A3) ヒドロシリル化反応触媒、を含む組成物と、

(D) 室温、1kHzにて10以上の比誘電率を有する誘電性無機微粒子と、

(E0) 室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する微粒子とを含み、

更に、前記硬化性組成物が、

(F) 離型性又は絶縁破壊特性の改良のための添加剤と、

(G) 硬化反応に關与するオルガノポリシロキサン以外のものである、高誘電性官能基を有する化合物とをさらに含むか、あるいは(F)及び(G)を含まない、使用方法。

【請求項2】

前記誘電性無機微粒子(D)の前記比誘電率が、50以上である、請求項1に記載の使用方法。

【請求項3】

前記誘電性無機微粒子(D)が、酸化チタン、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸ジルコン酸鉛、及びチタン酸バリウム、並びにチタン酸バリウムのバリウム及びチタン部分がカルシウム又はストロンチウムなどのアルカリ土類金属又は希土類金属により部分的に置き換えられてなる金属酸化物複合体からなる群から選択される1種以上の無機微粒子である、請求項1又は2に記載の使用方法。

10

【請求項4】

前記成分(E<sub>0</sub>)が、導電性無機粒子、誘電性無機粒子、及び補強性無機粒子からなる群から選択される少なくとも1種の無機微粒子である、請求項1～3のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項5】

前記成分(D)及び(E<sub>0</sub>)の部分量又は全量が、1種以上の表面処理剤により表面処理されている、請求項1～4のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項6】

前記成分(D)の平均粒子径が0.01～10μmの範囲である、請求項1～5のいずれか一項に記載の使用方法。

20

【請求項7】

前記成分(E<sub>0</sub>)が、10m<sup>2</sup>/g以上のBET比表面積を有する導電性微粒子である、請求項1～6のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項8】

前記成分(E<sub>0</sub>)が、補強性微粒子及び導電性微粒子の混合物である、請求項1～6のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項9】

前記成分(D)の配合量が、10～90重量%であり、かつ前記成分(E<sub>0</sub>)の配合量が、0.05～20重量%である、請求項1～8のいずれか一項に記載の使用方法。

30

【請求項10】

全オルガノポリシロキサン組成物に対し、  
10～90重量%の前記誘電性無機微粒子(D)、及び  
1.05～30重量%の前記微粒子(E<sub>0</sub>)を含み、かつ、  
前記微粒子(E<sub>0</sub>)が、1～20重量%の(E1)補強性微粒子及び0.05～10重量%の(E2)導電性微粒子を含む、請求項1～8のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項11】

前記成分(D)及び(E<sub>0</sub>)の表面が、機械的手段を使用して成分(D)及び(E<sub>0</sub>)と1種以上の表面処理剤とを混合することにより処理されている、請求項5に記載の使用方法。

40

【請求項12】

前記表面処理剤が、シラザン、オルガノポリシロキサン、シランカップリング剤、又はこれらの混合物である、請求項5に記載の使用方法。

【請求項13】

前記硬化性組成物を調製する方法が、  
2軸押し機、2軸混練機、及び一枚羽根式押し機からなる群から選択される少なくとも1種の機械的手段を使用して1種以上の表面処理剤を混練することにより、前記成分(D)及び成分(E<sub>0</sub>)の表面を処理する工程を含む、請求項1～12のいずれか一項に記載の使用方法。

【請求項14】

50

前記成分(D)及び成分(E<sub>0</sub>)の含有量が、前記混練手順により調製される組成物の50質量%以上である、請求項13に記載の使用方法。

【請求項15】

前記硬化性オルガノポリシロキサン組成物(A)が、高誘電性官能基を有する反応性オルガノポリシロキサンを含む、請求項1に記載の使用方法。

【請求項16】

電極対と、

前記電極間に配設されたシリコーンエラストマー中間層とを含むトランスデューサーであって、前記シリコーンエラストマー中間層が、請求項1~15のいずれか一項に記載される通りの硬化性組成物の硬化物からなる、トランスデューサー。

【請求項17】

2つ以上のシリコーンエラストマー中間層を有する請求項16に記載のトランスデューサーであって、少なくとも2層のシリコーンエラストマー中間層が積層されている、トランスデューサー。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、トランスデューサーのために有利に使用可能な硬化性オルガノポリシロキサン組成物に関する。本発明は、硬化性オルガノポリシロキサン組成物を提供し、硬化することにより形成されるオルガノポリシロキサン硬化物は、トランスデューサーの誘電体層又は電極層として使用可能な電氣的に活性なシリコーンエラストマー材料として使用される。本発明は、特に、誘電体材料として使用する材料に好適であり、特に、トランスデューサーの誘電体層として使用するのに好適な電気特性及び機械特性を有する、硬化性オルガノポリシロキサン組成物に関する。本発明は、硬化性オルガノポリシロキサン組成物を使用して形成される電氣的に活性なポリマー材料の製造方法、及びこの電氣的に活性なポリマー材料を含有するトランスデューサーの構成要素に更に関する。

【背景技術】

【0002】

A. G. Benjanariu, et al. は、誘電体ポリマーは人工筋肉に有望な材料であると指摘している(A. G. Benjanariu, et al., 「New elastomeric silicone based networks applicable as electroactive systems,」Proc. of SPIE vol. 7976 79762V-1~79762V-8(2011))。当該文献では、付加硬化性シリコーンゴムにより形成された単峰性又は二峰性ネットワーク(unimodal or bimodal network)を有する材料の物理特性が示されている。このシリコーンゴムの形成には、ケイ素結合した水素原子を4つ有する短鎖オルガノヒドロシロキサンが架橋剤として使用され、ビニル基を有する直鎖ポリ(ジメチルシロキサン)(PDMS)ポリマーが架橋される。更に、B. Kussmaul et al., Actuator 2012, 13th International Conference on New Actuators, Bremen, Germany, 18~20 June 2012, pp. 374~378では、電氣的双極子として電極間で機能する基により化学的に変性させたオルガノポリジメチルシロキサンを誘電性エラストマー材料として挟み込んだアクチュエーターが言及されており、この変性は、架橋剤を用いて、基をポリジメチルシロキサンに結合させることにより実施される。

【0003】

しかしながら、前述の参照文献のいずれにおいても硬化性オルガノポリシロキサン組成物の具体的な組成は開示されておらず、更に、実際には、硬化性オルガノポリシロキサン組成物の物理特性は、様々な種類のトランスデューサーにおいて工業的に使用される材料にとって不十分なものである。したがって、様々な種類のトランスデューサーに材料として実際に使用するのに満足のいく機械特性及び電気特性を併せ持つ、電氣的に活性なポリ

10

20

30

40

50

マー材料が必要とされる。具体的には、硬化により優れた物理特性を有する電氣的に活性なポリマーを与える硬化性オルガノポリシロキサン組成物が強く望まれている。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0004】

【非特許文献1】「New elastomeric silicone based networks applicable as electroactive systems,」Proc. of SPIE vol. 7976 79762V-1~79762V-8 (2011)

【非特許文献2】Actuator 2012, 13th International Conference on New Actuators, Bremen, Germany, 18~20 June 2012, pp. 374~378

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、硬化物品を製造可能な硬化性オルガノポリシロキサン組成物を提供することを目的とし、当該硬化物品は、トランスデューサーとして使用でき、かつ優れた機械特性及び/又は電気特性を備え得る。

【0006】

本発明の他の目的は、優れた機械特性及び/又は電気特性、及び特に高比誘電率、高絶縁破壊強度、及び低ヤング率を提供することにより、高エネルギー密度を実現することができ、トランスデューサーの誘電体層として使用した場合に、優れた機械強度（すなわち、引張り強度、引き裂き強度、伸長、又は同様事項）に由来して耐久性及び実質的な変位量を達成し得るトランスデューサーにおいて使用するための材料として使用可能な硬化物品を製造することのできる、硬化性オルガノポリシロキサン組成物を提供することである。更に、所望の電気特性を得る目的で、様々な種類の充填剤（表面処理された充填剤を包含する）を本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物に配合することもでき、並びに本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物には、薄板に成型したときの破損を予防する目的で離型添加剤を含ませることもでき、絶縁破壊特性を改良するための添加剤を含んでもよい。

20

30

【0007】

本発明の他の目的は、トランスデューサーにおいて使用するための電氣的に活性なポリマー材料として使用可能である硬化性シリコンエラストマー材料を与える前述の硬化性オルガノポリシロキサン組成物の製造方法を提供すること、そのような硬化性シリコンエラストマー材料の製造方法を提供すること、および当該前述の硬化性オルガノポリシロキサン組成物の製造方法を使用して様々なタイプのトランスデューサーを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは以下に記載の手段により前述の課題を解決し得ることを発見し、本発明に到達した。

40

【0009】

前述の課題は、硬化性オルガノポリシロキサン組成物、室温、1kHzにて10以上の比誘電率を有する誘電性無機微粒子(D)、及び室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する微粒子(E<sub>0</sub>)を含む、トランスデューサー用途のための硬化性オルガノポリシロキサン組成物により解決される。

【図面の簡単な説明】

【0010】

【図1】本発明の実施形態の誘電体層が積層されているアクチュエーター1の断面図。

【図2】本発明の実施形態のアクチュエーター2の断面図。

50

【図3】本発明の実施形態のセンサー3の構造。

【図4】本発明の実施形態の発電素子4の断面図。

【図5】電界 ( $V/\mu m$ ) の関数として、対照材料 (比較例4) としての Sylgard 186 と共に厚さひずみ (%) を示す。

【発明を実施するための形態】

【0011】

本発明の必須成分を以下に詳細に説明する。

【0012】

硬化系に特に制限はなく、最初は未硬化である原材料から、特に流動性の原材料から硬化生成物を形成可能なものであるならば、任意の硬化反応系を本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物に使用することができる。一般的に、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、縮合硬化系又は付加硬化系により硬化される。しかしながら、組成物の硬化系には、過酸化物による硬化 (ラジカル誘導硬化) 系又は高エネルギー線 (例えば、紫外線) 硬化系を使用し、かつ利用することができる。更に、溶液状態における架橋構造の形成による、及び溶媒除去による乾燥による硬化物の形成方法を使用することもできる。

10

【0013】

好ましくは、硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、反応性オルガノポリシロキサンを含み、組成物は、[特徴1] ~ [特徴3]、及び場合により [特徴4] ~ [特徴5] の条件を満たす。

20

【0014】

[反応性オルガノポリシロキサン]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、一般式  $M_a M^R_b D_c D^R_d T_e T^R_f Q_g$  により表される反応性オルガノポリシロキサンである。上記一般式において、M はトリオルガノシロキシ基を表し、D はジオルガノシロキシ基を表し、T はモノオルガノシロキシ基を表し、及びQは  $SiO_{4/2}$  を表すシロキシ単位である。M<sup>R</sup>、D<sup>R</sup>、及びT<sup>R</sup> はシロキシ単位であり、それぞれM、D、及びTにより表されるシロキシ単位のR置換基のうちの一つは、縮合反応、付加反応、過酸化物反応、又は光反応において硬化反応可能な置換基であるものの、この基は、好ましくは付加反応可能な基である。反応速度の速さ及び副反応の少なさという点を考慮すると、硬化反応可能な置換基は、これらの基のなかでも好ましくは、ヒドロシリル化反応において反応性の基、すなわち、ケイ素原子結合水素原子又は脂肪族不飽和結合含有基 (炭素原子2 ~ 20個のアルケニル基又は同様物など) である。更に、前述の反応性オルガノポリシロキサンの非R置換基は、付加反応において関与しない好ましい基であり、あるいは例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、又は同様物などのアルキル基、フェニル基、o-トリル基、p-トリル基、ナフチル基、ハロゲン化フェニル基、又は同様物などのアリール基、アルコキシ基、あるいは同様物などの高誘電性官能基である。このような基のなかでも、経済的な観点からメチル基が好ましい。反応性オルガノポリシロキサンの具体例としては、分子鎖両末端がトリメチルシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー、分子鎖両末端がトリメチルシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端がジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー、分子鎖両末端がジメチルビニルシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルビニルシロキサンコポリマー、メチルシロキサン-ジメチルシロキサン-メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー、メチルシロキサン-ジメチルシロキサン-メチルビニルシロキサンコポリマー、ジメチルヒドロジェン官能化MQ樹脂、ジメチルビニル官能化MQ樹脂、又は同様物が挙げられる。

30

40

【0015】

前述の反応性オルガノポリシロキサンの数平均分子量 (Mw) は300 ~ 10,000の範囲である。更に、直径20mmのコーンプレートを取り付けたレオメーターを使用し

50

、25にて、 $10(s^{-1})$ のせん断速度下で測定される粘度に特に制限はないものの、この粘度は、好ましくは $1 \sim 10,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の範囲であり、特に好ましくは $5 \sim 5,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の範囲である。

【0016】

[特徴1]：反応性オルガノポリシロキサン含量

硬化性オルガノポリシロキサン組成物中のシロキサン成分の総量に対し、前述の反応性オルガノポリシロキサンであって、 $(a+c)/(b+d+e+f+g)$ が3未満の値となるもの)の割合が0.1重量%未満であるとき、ポリシロキサン成分中の架橋点数は非常に少なく、したがって、硬化反応後の機械的強度及び絶縁破壊強度は不十分である。反対に、割合を25重量%超とするのは、架橋部分の数が過剰となり、ひいては硬化後の弾性が高くなり、かつ破断伸長点が低くなることから望ましくない。この割合は、好ましくは10重量%以下である。

10

【0017】

[特徴2]：分子の両末端のみに硬化反応可能な基を有する反応性オルガノポリシロキサン

分子鎖の両末端のみに硬化反応可能な基を有する反応性オルガノポリシロキサンについて、以下に説明する。本明細書において、用語「硬化反応可能な基」は、縮合反応、付加反応、過酸化反応、又は光反応において基として利用することのできる基を意味する。しかしながら、上記と同様の理由から、この基は好ましくは付加反応可能なものである。このような付加反応可能な基のなかでも、この基は好ましくはヒドロシリル化反応において活性であり、すなわち、ケイ素原子結合水素原子含有基又は脂肪族不飽和結合含有基(炭素原子2~20個のアルケニル基、又は同様物など)である。反応性オルガノポリシロキサンの具体例としては、分子鎖両末端がジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン及び分子鎖両末端がジメチルビニルシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサンが挙げられる。材料特性に対する更なる適合性のため(例えば、機械特性、絶縁体特性、耐熱性、又は同様の特性)、このようなポリマーの部分のメチル基をエチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、又はフェニル基により置き換えることもできる。

20

【0018】

硬化反応可能な基を分子鎖の両末端のみに有する反応性オルガノポリシロキサンの数平均分子量(Mw)は、 $300 \sim 100,000$ の範囲である。更に、直径20mmのコーンプレートを取り付けられたレオメーターを使用し、25にて、 $10(s^{-1})$ のせん断速度下で測定される粘度に特に制限はないものの、この粘度は、好ましくは $1 \sim 100,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の範囲であり、特に好ましくは $5 \sim 10,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の範囲である。

30

【0019】

破断点伸びが達成されなくなる恐れがあることから、硬化性オルガノポリシロキサン組成物中の総シロキサン成分に対する、硬化反応可能な基を分子鎖の両末端のみに有するこの反応性オルガノポリシロキサンの割合を75重量%未満にすることは不適當である。反対に、この値が99.9重量%を超過すると、架橋反応に関与する分子の割合は低くなり、硬化後の機械強度及び絶縁破壊強度は不十分なものとなる。したがって、99.9重量%を超過することは不適當である。

40

【0020】

[特徴3]：2種類の反応性オルガノポリシロキサン(S)及び(L)の使用

2つの硬化反応可能な基の間の平均分子量は、反応性オルガノポリシロキサン(S)については $10,000$ 未満であり、この反応性オルガノポリシロキサンは、硬化反応可能な基を単一分子内に少なくとも2つ有する反応性オルガノポリシロキサンであり、本発明で使用される。2つの硬化反応可能な基の間の平均分子量は、反応性オルガノポリシロキサン(L)については $10,000$ 以上 $150,000$ 以下であり、この反応性オルガノポリシロキサンは、硬化反応可能な基を単一分子内に少なくとも2つ有する反応性オルガ

50

ノポリシロキサンであり、本発明で使用される。これらの反応性オルガノポリシロキサンは、それぞれ、短鎖の非反応性ポリマー部分及び長鎖の非反応性ポリマー部分を分子中に含有している。本明細書において、2つの架橋反応可能な基の間の平均分子量は、分子鎖の両末端のみに反応性官能基を有するオルガノポリシロキサン鎖タイプについては非反応性ポリシロキサン部分（両末端にシロキシ単位を不含有）の分子量として定義される。架橋反応可能な複数の基間の分子量の場合、最長部分の分子量である。

【0021】

成分（S）及び成分（L）を、反応性オルガノポリシロキサン原材料として1：99～40：60の範囲で一緒に使用するとき、硬化反応により得られるシリコーンエラストマーを構成するシリコーン鎖部分に鎖長の異なる部分を導入することが可能である。この手法により、得られるシリコーンポリマーの永久ひずみを低減することができ、かつ機械エネルギー変換率の損失を低減することが可能である。特に、本発明のシリコーンエラストマーをトランスデューサーの誘電体層に使用するとき、成分（S）及び成分（L）の併用は、エネルギー変換効率を増大させるという実用面での利点を有する。

10

【0022】

上記の通り、これらの成分の硬化反応可能な基として、縮合反応、付加反応、過酸化物反応、又は光反応可能な基を使用することが可能である。しかしながら、これは、好ましくは付加反応可能な基である。この基は、このような付加反応可能な基のなかでも好ましくはヒドロシリル化反応において活性な基であり、すなわち、ケイ素原子結合水素原子又は脂肪族不飽和結合含有基（炭素原子2～20個のアルケニル基、又は同様物など）である。反応性オルガノポリシロキサン（S）及び（L）の具体例は、 $M_a M^R_b D_c D^R_d T_e T^R_f Q_g$ により表される前述の反応性オルガノポリシロキサン、及び硬化反応可能な基を分子鎖の両末端のみに有する前述の反応性オルガノポリシロキサンが挙げられる。上記と同様の理由のため、メチル基部分はエチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、又はフェニル基により置き換えてもよい。

20

【0023】

成分（S）と下記成分（L）との配合比（重量含量比）S：Lの値が、1：99～40：60の範囲から逸脱することは、得られる硬化物品の、高破断伸び、高機械的強度、高絶縁破壊強度、及び低弾性率などの特徴のうち、少なくとも1種類の特徴を満たさなくなることから、不適當である。

30

【0024】

ポリシロキサン中、ケイ素原子に結合した不飽和炭化水素基（Vi）に対する、ケイ素原子の結合した水素原子の配合比（モル比）は、好ましくは0.5～3.0の範囲である。この配合比が前述の範囲から逸脱すると、ヒドロシリル化反応により硬化した後に残存する残留官能基は、硬化物品の材料物理特性に悪影響を与え得る。

【0025】

[特徴4] 硬化反応後の単位重量当たりの架橋点数

更に、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、下記（A）及び（B）を含む。反応性ポリシロキサンの硬化反応後の単位重量あたりの架橋点数は、以下に掲載される計算式により、成分（A）及び成分（B）の各成分の数平均分子量、下記的一般式 $a_i \sim g_i$ 、及び $a_j \sim g_j$ 中の値、及び組成物中の各成分の含有量に基づき定義される。この反応性ポリシロキサンの硬化反応後の単位重量あたりの架橋点数は、好ましくは、0.5～20  $\mu\text{mol/g}$ の範囲であり、更に好ましくは0.5～10  $\mu\text{mol/g}$ の範囲である。

40

【0026】

（A）300～15,000の範囲の数平均分子量（Mw）を有し、かつケイ素に結合した水素原子を同一分子内に平均して少なくとも2つ有する、一般式 $M_{a_i} M^H_{b_i} D_c D^H_{d_i} T_{e_i} T^H_{f_i} Q_{g_i}$ により表される1つ又は複数の成分を含むオルガノヒドロジェンポリシロキサン。

【0027】

50

(B) 300 ~ 100,000 の範囲の数平均分子量 ( $M_w$ ) を有し、かつアルケニル基を同一分子内に平均して少なくとも2つ有する、一般式  $M_a^j M^{V_i} b_i D_c^i D^{V_i} d_j T_e^j T^{V_i} f_j Q_g^j$  により表される1つ又は複数の成分を含むオルガノポリシロキサン。前述の一般式に関し、Mは  $R_3SiO_{1/2}$  を表し、Dは  $R_2SiO_{2/2}$  を表し、Tは  $RSiO_{3/2}$  を表し、かつQは  $SiO_{4/2}$  により表されるシロキサン単位であり、Rは脂肪族炭素-炭素二重結合を有さない一価の有機基であり、 $M^H$ 、 $D^H$ 、及び  $T^H$  はシロキサン単位であり、それぞれM、D、及びTにより表されるシロキサン単位のうちのR基の1つが、ケイ素原子の結合した水素原子により置き換えられたものであり、 $M^{V_i}$ 、 $D^{V_i}$ 、及び  $T^{V_i}$  はシロキサン単位であり、それぞれM、D、及びTにより表されるシロキサン単位のうちのR基のうち1つが、炭素原子2 ~ 20個のアルケニル基により置き換えられたものであり、aは単分子当たりの平均数であり、bは単分子当たりの平均数であり、cは単分子当たりの平均数であり、dは単分子当たりの平均数であり、eは単分子当たりの平均数であり、fは単分子当たりの平均数であり、及びgは単分子当たりの平均数であり、iは成分(A)中のi番目の成分を表し、かつjは成分(B)中のj番目の成分を表す。

10

## 【0028】

前述の単位重量当たりの架橋点数は、以下に記載の(i)末端基間反応の確率指数、(ii)反応組成物の架橋点数指数、(iii)反応組成物中の原材料のモル数指数、及び(iv)反応組成物の分子量指数、を求める各式により定義された指数値を用い算出される。

20

## 【0029】

## 【数1】

(単位重量当たりの架橋点数)

$$= \frac{\text{(反応組成物の架橋点数指数)}}{\text{(反応組成物中の原材料モル数指数)} \times \text{(反応組成物の分子量指数)}}$$

30

## 【0030】

本明細書において、前述の指数のそれぞれを定義する式を以下に掲載する：

(i)末端基間反応の確率指数は、以下の式により表される。

## 【0031】

## 【数2】

(末端基間反応の確率指数)

$$= \left( \frac{\sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} b_i}{\sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (b_i + d_i + f_i)} \right) \times \left( \frac{\sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} b_j}{\sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (b_j + d_j + f_j)} \right)$$

40

## 【0032】

(ii)反応組成物の架橋点数指数は、前述の末端基間反応の確率指数に基づき、次式により表される)。

## 【0033】



【数3】

(反応組成物中の原材料モル数指数)

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{2} \times \left( \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (b_i + d_i) + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (b_j + d_j) \right) \\
&+ \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (e_i + f_i + g_i) + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (e_j + f_j + g_j) - \frac{1}{2} \\
&\times (\text{反応組成物における分子量指数}) \\
&\times \left( \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (b_i + d_i + f_i) + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (b_j + d_j + f_j) \right)
\end{aligned}$$

10

【0034】

しかしながら、反応組成物の架橋点数の指数の算出において、 $(a + c) / (b + d + e + f + g)$  の値が分子鎖中の反応基間のオルガノシロキサン単位の平均数が3未満である成分は、単一の架橋点として作用するものとして処理され、このような成分に関し、計

20

算は  $(b + d) = 0$ 、及び  $(e + f + g) = 1$  であるものとして計算される。

【0035】

(iii) 反応組成物における原材料モル数指数は、次式により表される。

【0036】

【数4】

$$(\text{反応組成物中の原材料モル数指数}) = \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j}$$

30

【0037】

(iv) 反応組成物の分子量指数は次式により表される。

【0038】

【数5】

$$(\text{反応組成物における分子量指数}) = \left( \frac{\sum_{i=1}^p \alpha_i Mw_i}{\sum_{i=1}^p \alpha_i} \right) + \left( \frac{\sum_{j=1}^r \beta_j Mw_j}{\sum_{j=1}^r \beta_j} \right)$$

【0039】

本明細書において、 $w_i$  は、成分(A)の*i*番目の成分の配合量 ( $w_i$  (重量による量) を、成分(A)に含有されるケイ素原子の結合した水素原子のH (モル) 数と、成分(B)に含有されるアルケニル基の数  $V_i$  (モル) との比 ( $w_i = H \text{ (モル)} / V_i \text{ (モル)}$ ) により除した値であり、すなわち、 $w_i = w_i / V_i$  であり、 $w_j$  は成分(B)の*j*番目の成分の配合量 (重量による量) を表し、 $M_{w_i}$  は、成分(A)の*i*番目の成分の数平均分子量を表し、かつ  $M_{w_j}$  は成分(B)の*j*番目の成分の数平均分子量を表す。

40

【0040】

[特徴5] 硬化反応後の架橋点間の分子量

更に、硬化反応後の反応性ポリシロキサンの架橋点間の分子量は成分(A)及び成分(B)の各成分の数平均分子量、次式の  $a_i \sim g_i$  及び  $a_j \sim g_j$  の値、及び組成物中の各成分の濃度、に基づいて次式により定義されるものであり、硬化反応後の反応性ポリシロ

50

キサンの架橋点間の分子量は、好ましくは100,000~2,000,000の範囲であり、更に好ましくは200,000~2,000,000の範囲である：

(A)は、300~15,000の範囲の数平均分子量(Mw)を有し、かつケイ素結合した水素原子を同一分子内に平均して少なくとも2つ有する、一般式 $M_{a_i} M^H_{b_i} D_{c_i} D^H_{d_i} T_{e_i} T^H_{f_i} Q_{g_i}$ により表される1つ又は複数の成分を含むオルガノハイドロジェンポリシロキサンである。

(B)は、300~100,000の範囲の数平均分子量(Mw)を有し、かつアルケニル基を同一分子内に平均して少なくとも2つ有する、一般式 $M_{a_j} M^{V_i}_{b_i} D_{c_i} D^{V_i}_{d_j} T_{e_j} T^{V_i}_{f_j} Q_{g_j}$ により表される1つ又は複数の成分を含むオルガノポリシロキサンである。

(C)は、前述の成分(A)及び成分(B)間の付加反応のための触媒である。

【0041】

前述の一般式に関し、Mは $R_3SiO_{1/2}$ を表し、Dは $R_2SiO_{2/2}$ を表し、Tは $RSiO_{3/2}$ を表し、かつQは $SiO_{4/2}$ により表されるシロキサン単位であり、Rは脂肪族炭素-炭素二重結合を有さない一価の有機基であり、 $M^H$ 、 $D^H$ 、及び $T^H$ はシロキサン単位であり、それぞれM、D、及びTにより表されるシロキサン単位のうちのR基の1つが、ケイ素原子の結合した水素原子により置き換えられたものであり、 $M^{V_i}$ 、 $D^{V_i}$ 、及び $T^{V_i}$ はシロキサン単位であり、それぞれM、D、及びTにより表されるシロキサン単位のうちのR基の1つが、炭素原子2~20個のアルケニル基により置き換えられたものでありaは単分子当たりの平均数であり、bは単分子当たりの平均数であり、cは単分子当たりの平均数であり、dは単分子当たりの平均数であり、eは単分子当たりの平均数であり、fは単分子当たりの平均数であり、及びgは単分子当たりの平均数であり、iは成分(A)中のi番目の成分を表し、かつjは成分(B)中のj番目の成分を表す。

【0042】

前述の架橋点間の分子量は、以下に示される、(i)末端基間反応の確率指数、(i i')反応組成物のオルガノシロキサン鎖数指数、(i i i)反応組成物中の原材料モル数指数、及び(i v)反応組成物の分子量指数、のための、計算式に基づき算出される指数値に基づくものである：

【0043】

【数6】

(架橋点間の分子量)

$$= \frac{(\text{反応組成物の分子量指数}) \times (\text{反応組成物中の原材料モル数指数})}{(\text{反応組成物のオルガノシロキサン鎖数指数})}$$

【0044】

本明細書において、前述の指数のそれぞれを定義する式を以下に掲載する：

(i)末端基間反応の確率指数は、以下の式により表される。

【0045】

【数7】

(末端基間反応の確率指数)

$$= \left( \frac{\sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} b_i}{\sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (b_i + d_i + f_i)} \right) \times \left( \frac{\sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} b_j}{\sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (b_j + d_j + f_j)} \right)$$

【0046】

10

20

30

40

50

( i i ' ) 反応組成物のオルガノシロキサン鎖数指数は、次式により表される。

【 0 0 4 7 】

【 数 8 】

(反応組成物のオルガノシロキサン鎖数指数)

$$\begin{aligned}
 &= \sum_{i=1}^p \left( \frac{\alpha_i}{Mw_i} (d_i + 2e_i + 2f_i + 3g_i + 1) \right) \\
 &+ \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (d_j + 2e_j + 2f_j + 3g_j + 1) - \frac{1}{2} \\
 &\times (\text{末端基間反応の確率指数}) \\
 &\times \left( \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} (b_i + d_i + f_i) + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j} (b_j + d_j + f_j) \right)
 \end{aligned}$$

【 0 0 4 8 】

なお、反応組成物の架橋点数の指数の算出において、 $(a + c) / (b + d + e + f + g)$  の値が、分子鎖中の反応基間のオルガノシロキサン単位の平均数が3未満であることを表す成分は、単一の架橋点として作用するものとして考慮され、このような成分は、 $(d + 2e + 2f + 3g + 1) = 0$  であるものと仮定して計算される。

【 0 0 4 9 】

( i i i ) 反応組成物における原材料モル数指数は、次式により表される。

【 0 0 5 0 】

【 数 9 】

$$(\text{反応組成物中の原材料モル数指数}) = \sum_{i=1}^p \frac{\alpha_i}{Mw_i} + \sum_{j=1}^r \frac{\beta_j}{Mw_j}$$

【 0 0 5 1 】

( i v ) 反応組成物の分子量指数は次式により表される。

【 0 0 5 2 】

【 数 1 0 】

$$(\text{反応組成物における分子量指数}) = \left( \frac{\sum_{i=1}^p \alpha_i Mw_i}{\sum_{i=1}^p \alpha_i} \right) + \left( \frac{\sum_{j=1}^r \beta_j Mw_j}{\sum_{j=1}^r \beta_j} \right)$$

【 0 0 5 3 】

前述の式中、 $w_i$  は、成分 ( A ) の i 番目の成分の配合量  $w_i$  (重量による量) を、成分 ( A ) に含有されるケイ素原子の結合した水素原子の H (モル) 数と、成分 ( B ) に含有されるアルケニル基の数  $V_i$  (モル) との比 ( $= H (\text{モル}) / V_i (\text{モル})$ ) により除した値であり、すなわち、 $w_i = w_i /$  であり、 $w_j$  は成分 ( B ) の j 番目の成分の配合量 (重量による量) を表し、 $M_{w_i}$  は、成分 ( A ) の i 番目の成分の数平均分子量を表し、かつ  $M_{w_j}$  は成分 ( B ) の j 番目の成分の数平均分子量を表す。前述の数平均分子量 (  $M_w$  ) は、核磁気共鳴 ( NMR ) による測定値により決定される値である。

【 0 0 5 4 】

本明細書に記載の式に基づき、架橋点数及びオルガノポリシロキサンの硬化後の架橋点

間の単位重量当たりの分子量を特定の範囲内に調節するよう分子設計することにより、得られるシリコーンエラストマー硬化物品が、トランスデューサーの部材として好適な電気特性及び機械的特性を有するよう調節することが可能である。このような分子設計により、優れた特性を有する誘電体材料、トランスデューサーの部材のための誘電体材料、特に誘電性エラストマー、及び更に、特にトランスデューサーの部材として使用するための材料として好適な、シリコーンエラストマー硬化物品及びシリコーンエラストマーを製造するための、付加硬化性オルガノポリシロキサン組成物を得ることが可能である。

【 0 0 5 5 】

[ 硬化剤 ( C ) ]

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、必須原材料として硬化剤 ( C ) を含む。

10

【 0 0 5 6 】

成分 ( C ) は、好ましくは、公知のヒドロシリル化反応触媒である。成分 ( C ) はヒドロシリル化反応を促進し得る物質であるならば、本発明に使用される成分 ( C ) に特に制限はない。この成分 ( C ) は、白金系触媒、ロジウム系触媒、及びパラジウム系触媒により例示される。高触媒活性のため、特に白金族元素触媒及び白金族元素化合物触媒が成分 ( C ) として言及される。具体的制限するものではないが、白金系触媒の例は、白金微粉、白金黒、塩化白金酸、アルコール改質塩化白金酸、オレフィン - 白金錯体、白金 - カルボニル錯体、例えば、白金ビス - アセト酢酸)、白金ビス (アセチルアセタート)、又は同様物、塩化白金酸 - アルケニルシロキサン錯体、例えば、塩化白金酸 - ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体、塩化白金酸 - ビニルテトラメチルシクロテトラシロキサン錯体、又は同様物、白金 - アルケニルシロキサン錯体、例えば、白金 - ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体、白金 - テトラビニルテトラメチルシクロテトラシロキサン錯体、又は同様物、並びに塩化白金酸及びアセチレンアルコール間の錯体である。ヒドロシリル化反応に対し高触媒活性であることに起因し、成分 ( C ) の推奨例は、白金 - アルケニルシロキサン錯体であり、特に白金 1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン錯体である。

20

【 0 0 5 7 】

これに加えて、白金 - アルケニルシロキサン錯体の安定性の更なる向上のため、これらの白金 - アルケニルシロキサン錯体は、1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン、1, 3 - ジアリル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン、1, 3 - ジビニル - 1, 3 - ジメチル - 1, 3 - ジフェニルジシロキサン、1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラフェニルジシロキサン、1, 3, 5, 7 - テトラメチル - 1, 3, 5, 7 - テトラビニルシクロテトラシロキサン、若しくは同様物などのアルケニルシロキサンオリゴマー、又はジメチルシロキサンオリゴマー、又は同様物などのオルガノシロキサンオリゴマーに溶解させることもできる。具体的には、アルケニルシロキサンオリゴマーに溶解させた白金 - アルケニルシロキサン錯体の使用が好ましい。

30

【 0 0 5 8 】

成分 ( C ) の使用量は、特に制限されるものではなく、本組成物のポリシロキサン成分の付加反応を促進可能な任意の量であってよい。ポリシロキサン成分の全重量に対し、成分 ( C ) (例えば、白金) 中に含有される白金族金属元素の濃度は、通常、0.01 ~ 500 ppm の範囲であり、好ましくは 0.1 ~ 100 ppm の範囲であり、更に好ましくは 0.1 ~ 50 ppm の範囲である。

40

【 0 0 5 9 】

[ 誘電性無機微粒子 ( D ) 及びその他の微粒子 ( E<sub>0</sub> ) の併用 ]

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、必須原材料として硬化性オルガノポリシロキサン組成物、室温、1 kHz にて 10 以上の比誘電率を有する誘電粒子 ( D )、及び室温、1 kHz にて 10 未満の比誘電率を有する微粒子 ( E<sub>0</sub> ) を含有することを特徴とする。

【 0 0 6 0 】

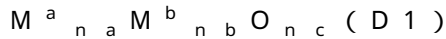
50

[ 誘電性無機微粒子 ( D ) ]

前述の硬化性オルガノポリシロキサンを含む硬化物品中に誘電性無機微粒子を支持することにより、トランスデューサーに必要とされる物理特性及び電気特性硬化物品の両方を満たす。

【 0 0 6 1 】

例えば、誘電性無機微粒子は、以下に掲載される式 ( D 1 ) により表される金属酸化物 ( D 1 ) ( 本明細書において、以降の場合により「金属酸化物 ( D 1 ) 」として略記される ) の中から選択され得る：



( 式中、

$M^a$  は、周期表の第 2 族の金属であり、

$M^b$  は、周期表の第 4 族の金属であり、

$n_a$  は、0.9 ~ 1.1 の範囲の数であり、

$n_b$  は、0.9 ~ 1.1 の範囲の数であり、

$n_c$  は、2.8 ~ 3.2 の範囲の数である )。

10

【 0 0 6 2 】

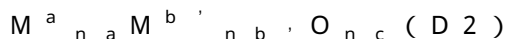
好ましい、金属酸化物 ( D 1 ) における、周期表の第 2 族の金属  $M^a$  としては、ベリリウム ( B e )、マグネシウム ( M g )、カルシウム ( C a )、ストロンチウム ( S r )、及びバリウム ( B a ) が挙げられる。チタン ( T i ) は、周期表の第 4 族の金属  $M^b$  の好ましい例として言及される。式 ( X 1 ) により表される金属酸化物の粒子において、 $M^a$  及び  $M^b$  は、それぞれ単一の原子であってもよく、又は 2 種以上の原子であってもよい。

20

【 0 0 6 3 】

金属酸化物 ( D 1 ) の具体例としては、チタン酸バリウム、チタン酸カルシウム、及びチタン酸ストロンチウムが挙げられる。

更に、例えば、誘電無機微粒子は、次式により表される金属酸化物 ( 本明細書において、以降で「金属酸化物 ( D 2 ) 」として略記できる ) の中から選択され得る：



( 式中、

$M^a$  は、周期表の第 2 族の金属であり、

$M^{b'}$  は、周期表の第 5 族の金属であり、

$n_a$  は、0.9 ~ 1.1 の範囲の数であり、

$n_{b'}$  は、0.9 ~ 1.1 の範囲の数であり、

$n_c$  は、2.8 ~ 3.2 の範囲の数である )。

30

【 0 0 6 4 】

好ましい、金属酸化物 ( D 2 ) における、周期表の第 2 族の金属  $M^a$  としては、ベリリウム ( B e )、マグネシウム ( M g )、カルシウム ( C a )、ストロンチウム ( S r )、及びバリウム ( B a ) が挙げられる。好ましい、周期表の第 5 族の金属原子  $M^{b'}$  としては、スズ ( S n )、アンチモン ( S b )、ジルコニウム ( Z r )、及びインジウム ( I n ) が挙げられる。式 ( X 2 ) により表される金属酸化物の粒子において、 $M^a$  及び  $M^{b'}$  は、それぞれ単一の原子であってもよく、又は 2 種以上の原子であってもよい。

40

【 0 0 6 5 】

金属酸化物 ( D 2 ) の具体例としては、すず酸マグネシウム、すず酸カルシウム、すず酸ストロンチウム、すず酸バリウム、アンチモン酸マグネシウム、アンチモン酸カルシウム、アンチモン酸ストロンチウム、アンチモン酸バリウム、ジルコン酸マグネシウム、ジルコン酸カルシウム、ジルコン酸ストロンチウム、ジルコン酸バリウム、インジウム酸マグネシウム、インジウム酸カルシウム、インジウム酸ストロンチウム、インジウム酸バリウム、又は同様が挙げられる。

【 0 0 6 6 】

更に、このような金属酸化物粒子と組み合わせて、チタン酸ジルコン酸鉛、チタン酸亜鉛、チタン酸鉛、酸化チタン、又は同様物など ( 特に、前述のもの以外の酸化チタン複合

50

体酸化物)などのその他の金属酸化物粒子の使用が許容され得る。更に、これらの例とは異なる金属元素を含む固溶体を誘電性無機微粒子(D)として使用することもできる。この場合、その他の金属原子はLa(ランタン)、Bi(ビスマス)、Nd(ネオジム)、Pr(プラセオジム)、又は同様物により例示される。

【0067】

このような無機微粒子のなかでも、誘電性無機微粒子(D)の好ましい例としては、酸化チタン、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸ジルコン酸鉛、及びチタン酸バリウム、並びにチタン酸バリウムのバリウム及びチタン部分が、カルシウム又はストロンチウムなどのアルカリ土類金属により部分的に置き換えられている金属酸化物複合体、ジルコニウム、又は希土類金属、例えば、イットリウム、ネオジム、サマリウム、又はジスプロシウムからなる群から選択される1種以上の無機微粒子が挙げられる。酸化チタン、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、並びにチタン酸バリウム及びジルコン酸バリウムのバリウム部分が、カルシウムにより部分的に置き換えられている金属酸化物複合体がより好ましく、並びに酸化チタン及びチタン酸バリウムが最も好ましい。

10

【0068】

誘電性無機微粒子(D)の形態には特に制限はなく、球状、平板状、針状、繊維状、又は同様の形態などの任意のものを使用できる。無機微粒子の粒径には特に制限はなく、例えば、球状微粒子がレーザー回折法により測定される場合、体積平均粒子径は、例えば0.01~1.0 $\mu\text{m}$ の範囲であり得る。成形加工性及び被膜形成能の観点から、平均粒子径は、好ましくは0.1~5 $\mu\text{m}$ の範囲である。無機微粒子が、平板状、針様、繊維状、又は同様の形態の不均質な微粒子である場合、このような微粒子のアスペクト比には特に制限はないものの、アスペクト比は通常は5以上であり得る。

20

【0069】

誘電性無機微粒子の粒径分布には特に制限はなく、誘電性無機微粒子は単分散系であってよく、あるいはより高密度を充填することにより、微粒子間の間隙部分を低減させることにより機械強度を向上させるよう、粒径を分散させることも可能である。粒径分布の指標として、レーザー光散乱法により測定される累積粒径分布曲線のうち累積面積10%( $D_{10}$ )の粒径に対する累積面積90%( $D_{90}$ )の粒径の比( $D_{90}/D_{10}$ )は、好ましくは2以上である。更に、粒径の分布状態(粒径及び粒子濃度の相関性)には何ら制限はなく、いわゆるプラトー形状の分布をもたせることも可能であり、又は多峰性、すなわち、二峰性(すなわち、2箇所に山状の分布を有する)、三峰性等の粒径分布をもたせることも可能である。

30

【0070】

本発明に使用する誘電性無機微粒子について上記されるものなどの粒径分布をもたらすためには、例えば、異なる平均径若しくは粒径分布を有する2種以上の微粒子を併用すること、篩分け若しくは同様の操作により得られた粒径部分の粒子をブレンドして所望の粒径画分をもたらすこと、又は同様の操作などの方法を採用してもよい。

【0071】

更に、これらの誘電性無機微粒子は、以下に記載の様々な種類の表面処理剤を用い処理することもできる。

40

【0072】

得られる硬化物品の機械特性及び誘電体特性を考慮すると、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物中の誘電性無機微粒子の配合量は、組成物の全体積に対し10%以上であってよく、好ましくは15%以上であり、更に好ましくは20%以上である。更に、この配合量は、組成物の全体積に対し好ましくは80%以下であり、更に好ましくは70%以下である。

【0073】

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する微粒子( $E_0$ )を更に含む。微粒子は、有機微粒子又は無機微粒子であってよい。それらの機能に何ら特定の制限は課されないものの、好ましくは導電性無機粒子又

50

は補強性無機粒子であり、より好ましくは補強性微粒子及び導電性微粒子の混合物である。

【 0 0 7 4 】

[ その他の無機粒子 ( E ) ]

好ましくは、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、導電性無機粒子、断熱無機粒子、及び補強性無機粒子からなる群から選択される 1 種以上の無機粒子 ( E ) を更に含み得る。

【 0 0 7 5 】

導電性無機粒子が導電率を付与する限り、利用する導電性無機粒子には特に制限はなく、かつ粒子状、フレーク状、及び繊維状 ( ウィスカーを含む ) などの任意の形態のものを  
10  
使用できる。導電性無機粒子の具体例としては、導電性カーボンブラック、グラファイト、  
単層カーボンナノチューブ、二層カーボンナノチューブ、多層カーボンナノチューブ、  
フラーレン、金属内包フラーレン、カーボンナノファイバー、気相成長モノ長 ( mono - length )  
炭素 ( V G C F )、カーボンマイクロコイル、又は同様物などの導電性炭素、並び  
に白金、金、銀、銅、ニッケル、スズ、亜鉛、鉄、アルミニウム、又は同様の粉末類などの  
金属粉末、同様に、アンチモンドープ酸化スズ、リンドープ酸化スズ、酸化スズ/アン  
チモンを用い表面処理した針状酸化チタン、酸化スズ、酸化インジウム、酸化アンチモン、  
アンチモン酸亜鉛、炭素、及び酸化スズにより表面処理されたグラファイト又は炭素ウ  
ィスカー、- 又は同様物などの被覆顔料、少なくとも 1 種の導電性酸化物、例えば、スズ  
20  
ドープ酸化インジウム ( I T O )、フッ素ドープ酸化スズ ( F T O )、リンドープ酸化スズ、  
及びリンドープ酸化ニッケルなどにより被覆された顔料、導電性を有しかつ酸化チタ  
ン粒子の表面に酸化スズ及びリンを有する顔料、以下に記載の様々な種類の表面処理剤を  
使用して場合により表面処理されたこれらの導電性無機粒子が挙げられる。このような導  
電性無機粒子は、1 種として、又は 2 種以上の組み合わせとして使用することもできる。  
好ましくは、 $10 \text{ m}^2 / \text{g}$  以上の B E T 比表面積を有する導電性微粒子である。

【 0 0 7 6 】

更に、導電性無機微粒子は、ガラス繊維、シリカアルミナ繊維、アルミナ繊維、カーボン  
ファイバー、若しくは同様の繊維などの繊維、ホウ酸アルミニウムウィスカー、チタン  
酸カリウムウィスカー、若しくは同様物などの針様補強材料、又は金属又は同様物などの  
導電性により表面被覆されたガラスビーズ、タルク、雲母、グラファイト、ウォラストナイト、  
30  
ドロマイト、若しくは同様物などの無機充填材料、であってよい。

【 0 0 7 7 】

導電性無機粒子を組成物に配合することにより、ポリシロキサン硬化物品の比誘電率を  
増大させることができる。硬化性オルガノポリシロキサン組成物に対するこのような導電  
性無機粒子の配合量は、好ましくは 0 . 0 1 ~ 1 0 重量 % の範囲であり、更に好ましくは  
0 . 0 5 ~ 5 重量 % の範囲である。配合量が前述の好ましい範囲から逸脱するとき、配合  
効果は得られず、又は硬化物品の絶縁破壊強度は低下し得る。

【 0 0 7 8 】

本発明で利用される誘電性無機粒子は、任意の一般的な公知の誘電無機材料であってよ  
い。すなわち、 $10^{10} \sim 10^{19} \text{ Ohm} \cdot \text{cm}$  の体積抵抗値を有する、任意の無機材料  
40  
の粒子を、制限なく使用することができ、及び粒子状、薄片状、及び繊維状 ( ウィスカー  
を含む ) などの任意の形態を使用できる。好ましい具体例としては、球状粒子、平板状粒  
子、及びセラミック繊維、アルミナ、雲母及びタルク又は同様物などの金属珪酸塩粒子、  
並びに石英、ガラス、又は同様物などが挙げられる。更に、このような誘電性無機粒子は  
、以下に記載の様々な種類の表面処理剤を使用して表面処理されてもよい。このような導  
電性無機粒子は、1 種として、又は 2 種以上の組み合わせとして使用することもできる。

【 0 0 7 9 】

誘電性無機粒子を組成物に配合することにより、ポリシロキサン硬化物品の機械強度及  
び絶縁破壊強度を増大させることが可能となり、比誘電率も、場合により増大が観察され  
50  
得る。硬化性オルガノポリシロキサン組成物に対するこのような誘電性無機粒子の配合量

は、好ましくは0.1~20重量%の範囲であり、更に好ましくは0.1~5重量%の範囲である。誘電性無機粒子の配合量が上記の好ましい範囲から逸脱するとき、配合効果は得られず、又は硬化物品の機械強度も低下し得る。

#### 【0080】

本発明において使用される補強性無機粒子の例は、ヒュームドシリカ、湿式シリカ、粉末シリカ、炭酸カルシウム、ケイソウ土、微粉石英、様々な種類の非アルミナ金属酸化粉末、ガラス繊維、炭素繊維、又は同様物である。更に、以下に記載の様々な種類の表面処理剤を使用する処理前に、このような補強性無機粒子を使用することもできる。本明細書において、補強性無機粒子の粒径又はBET比表面積には何ら制限はないものの、機械強度の改良の観点から、比表面積は、好ましくは $50\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $500\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは $50\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であり、ヒュームドシリカが特に好ましい。更に、分散性の改良の観点から、ヒュームドシリカは、好ましくは以下に記載のシリカカップリング剤を使用して表面処理される。しかしながら、(A)硬化性オルガノポリシロキサン組成物が付加硬化型オルガノポリシロキサン組成物であるとき、シラザンを使用し表面処理されたヒュームドシリカは補強性無機粒子として使用されない。これらの補強性無機粒子は、単一種として使用することもでき、又は2種以上の組み合わせとして使用することもできる。

#### 【0081】

補強性無機粒子を組成物に配合することにより、ポリシロキサン硬化物品の機械強度及び絶縁破壊強度を増大させることが可能となる。硬化性オルガノポリシロキサン組成物に対するこれらの補強性無機粒子の配合量は、好ましくは0.1~30重量%の範囲であり、更に好ましくは0.1~10重量%の範囲である。配合量が上記の好ましい範囲から逸脱するとき、配合効果及び無機粒子は得られず、硬化性オルガノポリシロキサン組成物の成形加工性は低下し得る。

#### 【0082】

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物には、熱伝導性無機粒子を更に含ませることもできる。熱伝導性無機粒子例は、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化ニッケル、酸化バナジウム、酸化銅、酸化鉄、酸化銀、又は同様物などの金属酸化物粒子、及び窒化アルミニウム、窒化ホウ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素、炭化ホウ素、炭化チタン、ダイヤモンド、ダイヤモンド様炭素、又は同様物などの無機化合物粒子である。酸化亜鉛、窒化ホウ素、炭化ケイ素、及び窒化ケイ素が好ましい。これらの熱伝導性無機粒子を組成物に配合することにより、ポリシロキサン硬化物品の熱伝導率を増大させることが可能となる。硬化性オルガノポリシロキサン組成物に対して、これらの補強性無機粒子の配合量は、好ましくは0.1~30重量%の範囲である。

#### 【0083】

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の好ましい実施形態として、全オルガノポリシロキサン組成物に対し10~90重量%の量で成分(D)、及び0.05~20重量%の量で成分(E<sub>0</sub>)を含む組成物が挙げられる。より好ましくは、組成物は、5~90重量%の硬化性オルガノポリシロキサン、室温、1kHzにて10以上の比誘電率を有する10~93.9重量%の誘電性無機微粒子(D)、室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する1~20重量%の補強性微粒子(E<sub>1</sub>)、室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する0.05~10重量%の導電性微粒子(E<sub>2</sub>)を含む。

#### 【0084】

[無機粒子又は同様物の表面処理]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物に使用される前述の誘電性無機微粒子(D)及び前述のその他の微粒子(E<sub>0</sub>)の部分又は全量を、少なくとも1種の表面処理剤の使用により表面処理することもできる。表面処理の種類に特に制限はなく、このような表面処理の例は、親水化処理及び疎水化処理である。疎水化処理が好ましい。疎水化処理を施した無機粒子を使用するとき、オルガノポリシロキサン組成物中の無機粒子の充填度

10

20

30

40

50



を増加させることも可能となる。更に、組成物の粘度を抑えることで、成形加工性が向上される。

【0085】

表面処理剤を使用して無機粒子を処理（又は被覆処理）することにより、前述の表面処理を実施することもできる。疎水化に使用される表面処理剤の例は、有機チタン化合物、有機ケイ素化合物、有機ジルコニウム化合物、有機アルミニウム化合物、及び有機リン化合物からなる群から選択される少なくとも1種の表面処理剤である。表面処理剤は、単一種として使用することもでき、又は2種以上の組み合わせとして使用することもできる。

【0086】

有機チタン化合物の例は、アルコキシチタン、チタンキレート、チタンアクリレート、又は同様物などのカップリング剤である。このような化合物のなかでも好ましいカップリング剤の例は、テトライソプロピルチタナート又は同様物などのアルコキシチタン化合物、及びテトライソプロピルビス（ジオクチルホスファート）チタナート又は同様物などのチタンキレートである。

【0087】

有機ケイ素化合物の例は、シラン、シラザン、シロキサン、又は同様物などの低分子量有機ケイ素化合物、及びポリシロキサン、ポリカルボシロキサン、又は同様物などの有機ケイ素ポリマー又はオリゴマーである。好ましいシランの例は、いわゆるシランカップリング剤である。このようなシランカップリング剤の代表例としては、アルキルトリアルコキシシラン（メチルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、又は同様物など）、有機官能基含有トリアルコキシシラン（グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、エポキシシクロヘキシルエチルトリメトキシシラン、メタクリルオキシプロピルトリメトキシシラン、アミノプロピルトリメトキシシラン、又は同様物など）である。好ましいシロキサン及びポリシロキサンとしては、ヘキサメチルジシロキサン、1,3-ジヘキシル-テトラメチルジシロキサン、トリアルコキシシリル単末端化（single-terminated）ポリジメチルシロキサン、トリアルコキシシリル単末端化ジメチルビニル単末端化ポリジメチルシロキサン、トリアルコキシシリル単末端化有機官能基単末端化ポリジメチルシロキサン、トリアルコキシシリル両末端化（doubly terminated）ポリジメチルシロキサン、有機官能基両末端化ポリジメチルシロキサン、又は同様物が挙げられる。シロキサンを使用するとき、シロキサン結合の数nは、好ましくは2～150の範囲である。好ましいシラザンの例は、ヘキサメチルジシラザン、1,3-ジヘキシル-テトラメチルジシラザン、又は同様物である。好ましいポリカルボシロキサンの例は、ポリマー主鎖内にSi-C-C-Si結合を有するポリマーである。

【0088】

有機ジルコニウム化合物の例は、テトライソプロポキシジルコニウム又は同様物、及びジルコニウムキレートなどのアルコキシジルコニウム化合物である。

【0089】

有機アルミニウム化合物の例は、アルコキシアルミニウム及びアルミニウムキレートである。

【0090】

有機リン化合物の例は、亜リン酸エステル、リン酸エステル、及び亜リン酸キレートである。

【0091】

これらの表面処理剤のなかでも、有機ケイ素化合物が好ましい。このような有機ケイ素化合物のなかでも、シラン、シロキサン、及びポリシロキサンが好ましい。前述の通り、アルキルトリアルコキシシラン及びトリアルコキシシリル単末端化ポリジメチルシロキサンの使用が最も好ましい。

【0092】

前述の無機粒子の総量に対する表面処理剤の比は、好ましくは、0.1重量%以上10

10

20

30

40

50

重量%以下であり、この範囲は、更に好ましくは0.3重量%以上5重量%以下である。更に、処理濃度は供給処理剤に対する供給無機粒子の比(重量比)であり、好ましくは、処理後に過剰な処理剤が取り除かれる。

#### 【0093】

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の好ましい実施形態として、必要に応じ原材料：(A11)分子の両末端に、ケイ素原子を結合した水素原子を有し、かつ0.01~1.0%の重量含量で水素原子を有する、少なくとも1種のオルガノヒドロジェンポリシロキサン、(A12)単一分子内に、少なくとも3個のケイ素原子を結合した水素原子を有し、かつ0.03~2.0%の重量含量で水素原子を有する少なくとも1種のオルガノヒドロジェンポリシロキサン、(A2)単一分子内に少なくとも2個のアルケニル基を有し、かつ0.05~0.5重量%のアルケニル基を有する少なくとも1種のオルガノポリシロキサン、(C1)ヒドロシリル化反応触媒、(D)室温、1kHzにて10以上の比誘電率を有する誘電性無機微粒子、及び(E<sub>0</sub>)室温、1kHzにて10未満の比誘電率を有する微粒子、を含む組成物が言及される。

10

#### 【0094】

本明細書において、(A11)は、好ましくはジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサンである。好ましい(A12)の例としては、トリメチルシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー及びジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン-メチルヒドロジェンシロキサンコポリマーが挙げられる。一方、成分(A2)の例は、ジメチルビニルシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサンである。機械特性、誘電体特性、耐熱性、又は同様の特性などの、トランスデューサー材料特性を更に最適化する目的で、ポリマーのメチル基の部分を実チル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、又はフェニル基により置き換えることもできる。

20

#### 【0095】

水素原子の重量含量及びアルケニル基の重量含量が前述の範囲内であるならば、(A11)、(A12)、及び(A2)の分子量には特に制限はない。しかしながら、シロキサン単位の数好ましくは5~1,500である。

#### 【0096】

##### [表面処理の方法]

本発明のトランスデューサー用途のための硬化性オルガノポリシロキサン組成物中の前述の成分(D)、前述の成分(E<sub>0</sub>)の表面処理の方法に特に制限はないものの、表面処理は、好ましくは、硬化性オルガノポリシロキサンの少なくとも部分、前述の成分(D)、前述の成分(E<sub>0</sub>)、及び1種以上の表面処理剤を、機械的手段により混練することによりなされる。具体的には、好ましい表面処理剤はシラザン、オルガノポリシロキサン、シランカップリング剤又はこれらの混合物であり、硬化性組成物は、好ましくは、2軸押し機、2軸混練機、及び一枚羽根式押し機からなる群から選択される少なくとも1種の機械的手段を使用して、硬化性オルガノポリシロキサンの少なくとも部分、前述の成分(D)、前述の成分(E<sub>0</sub>)、及び1種以上の表面処理剤を混練することによる微粒子の表面処理工程を含む製造方法により得られる。

30

40

#### 【0097】

##### [添加剤(F)]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、離型性又は絶縁破壊特性を改良するための添加剤(F)を更に含み得る。このポリシロキサン組成物を硬化させることにより薄型シートとして得られる電氣的に活性なシリコーンエラストマーシートは、トランスデューサーを構成する電氣的に活性なフィルム(誘電体層又は電極層)としての利点を備え使用することもできる。しかしながら、薄型フィルムの成型中のシリコーンエラストマーシートの離型性が乏しいとき、特に、誘電体膜が高速で製造されるとき、誘電体膜は取り出しに起因する損傷を受け得る。しかしながら、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物は優れた離型性を有し、したがって本硬化性オルガノ

50

ポリシロキサン組成物は、フィルムを損傷させずにフィルムの産生速度を改良させ得るといって有利なものである。この添加剤は、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物のこれらの特徴を更に改良し、この添加剤は、単一の種類のものとして、又は2種以上の組み合わせとして使用することもできる。その一方で、添加剤の名称通り、シリコーンエラストマーシートの絶縁破壊強度を改良するため、絶縁破壊特性を改良するための添加剤が使用される。更に、このような成分(F)のうちいくつかは、前述の成分(E<sub>0</sub>)と実質的に重複し得る。

#### 【0098】

使用可能な離型改良剤(すなわち、離型剤)例は、カルボン酸型離型剤、エステル型離型剤、エーテル型離型剤、ケトン型離型剤、アルコール型離型剤、又は同様物である。このような離型剤は、単一種として使用することもでき、又は2種以上の組み合わせとして使用することもできる。これに加え、前述の離型剤はケイ素原子を含有しないものの、ケイ素原子を含有する離型剤を使用することも可能であり、あるいはこれらの離型剤の混合物を使用することも可能である。

10

#### 【0099】

ケイ素原子を含有しない離型剤も選択することができ、例えば、飽和又は不飽和脂肪族カルボン酸、例えば、パルミチン酸、ステアリン酸、又は同様物など、このような脂肪族カルボン酸のアルカリ金属塩(ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸カルシウム、又は同様物); 脂肪族カルボン酸及びアルコールのエステル(2-エチルヘキシルステアラート、グリセリントリステアラート、ペンタエリスリトールモノステアラート、又は同様物など)、脂肪族炭化水素(液体パラフィン、パラフィンワックス、又は同様物)、エーテル(ジステアリルエーテル、又は同様物)、ケトン(ジステアリルケトン、又は同様物)、高級アルコール(2-ヘキサデシルオクタデカノール、又は同様物)、及びこのような化合物の混合物からなる群から選択される。

20

#### 【0100】

ケイ素原子含有離型剤は、好ましくは非硬化シリコーン系離型剤である。このようなシリコーン型離型剤の具体例としては、非有機変性シリコーン油、例えば、ポリジメチルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリ(ジメチルシロキサン-メチルフェニルシロキサン)コポリマー、ポリ(ジメチルシロキサン-メチル(3,3,3-トリフルオロプロピル)シロキサン)コポリマー、又は同様物など、並びに変性シリコーンオイル、例えば、アミノ変性シリコーン、アミノポリエーテル変性シリコーン、エポキシ変性シリコーン、カルボキシル変性シリコーン、ポリオキシアルキレン変性シリコーン、又は同様物などが挙げられる。このようなケイ素原子含有離型剤は、線状、部分分岐型線状、又は環状などの任意の構造を有し得る。これに加え、25℃下では、このようなシリコーンオイルの粘度には特に制限はない。この粘度は、好ましくは10~100,000 mPa·sの範囲であり、更に好ましくは50~10,000 mPa·sの範囲である。

30

#### 【0101】

硬化性オルガノポリシロキサンの総量に対する離型改良剤の配合量には特に制限はないものの、この量は、好ましくは0.1重量%以上30重量%以下である。

#### 【0102】

他方、絶縁破壊性改良剤は、好ましくは電気絶縁改良剤である。絶縁破壊性改良剤の例は、アルミニウム又はマグネシウム水酸化物又は塩、粘土鉱物、及びこのような混合物である。具体的には、絶縁破壊特徴改良剤は、ケイ酸アルミニウム、硫酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、焼成粘土、モンモリロナイト、ハイドロタルサイト、タルク、及びこのような剤の混合物からなる群から選択することもできる。これに加え、必要に応じて、この絶縁改良剤を、前述の表面処理方法により表面処理することもできる。

40

#### 【0103】

この絶縁改良剤の配合量には特に制限はない。この配合量は、硬化性オルガノポリシロキサンの総量に対し好ましくは0.1重量%以上30重量%以下の範囲である。

50

## 【0104】

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、誘電体官能基を有する前述の反応性オルガノポリシロキサンとは異なる別のオルガノポリシロキサンを含み得る。

## 【0105】

## 〔硬化機序〕

同様の方法において、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、分子中に、高誘電性官能基、及び縮合硬化反応、付加硬化反応、過酸化物硬化反応、又は光硬化反応により反応し得る少なくとも1つの基を有する化合物を更に含み得る。前述の硬化反応により、この高誘電性官能基が、得られる硬化物品（すなわち、電氣的に活性なシリコンエラストマー）に導入される。

10

## 【0106】

## 〔高誘電性官能基の導入〕

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物に関し、前述の反応性オルガノポリシロキサンの部分又は全部は、高誘電性官能基を更に有する反応性オルガノポリシロキサンであってもよい。

## 【0107】

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物を硬化することにより得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーを誘電体層に使用する場合、誘電体層の比誘電率は好ましくは高く、かつエラストマーの比誘電率を向上させる目的で高誘電性官能基を導入することもできる。

20

## 【0108】

具体的には、誘電特性は、硬化性オルガノポリシロキサン組成物、並びに高誘電特性を付与するための成分を硬化性オルガノポリシロキサン組成物に添加するなどの方法、硬化性オルガノポリシロキサン組成物を構成するオルガノポリシロキサン成分に高誘電性基を導入する方法、又はこのような方法の組み合わせなどにより、硬化性オルガノポリシロキサン組成物を硬化することにより得られる硬化電気活性シリコンエラストマーに関し増加し得る。このような特定の実施形態及び導入可能な高誘電体官能基を以下に例示する。

## 【0109】

第1の実施形態では、高誘電性基を有する有機ケイ素化合物を含む硬化性オルガノポリシロキサン組成物から、トランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物が形成される。この硬化性組成物において、硬化性組成物に含有される反応性オルガノポリシロキサンの部分又は全部は、高誘電性官能基を更に有する反応性オルガノポリシロキサンであり、硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーの比誘電率は増大される。

30

## 【0110】

第2の実施形態では、高誘電体基を有する有機ケイ素化合物が硬化性オルガノポリシロキサン組成物に添加され、混合物を硬化することで、増大された比誘電率を有する電氣的に活性なシリコンエラストマーが得られる。高誘電体基を有する有機ケイ素化合物を、硬化のために使用される成分とは別個に本硬化性組成物に加えることもできる。

## 【0111】

第3の実施形態では、高誘電基、及び硬化性組成物中に含有される反応性オルガノポリシロキサンとの反応性を有する官能基を有する有機化合物を硬化性オルガノポリシロキサン組成物に添加することにより、硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーの比誘電率が増大する。本硬化性組成物中の反応性オルガノポリシロキサンと反応性である有機化合物の官能基により、有機化合物及びオルガノポリシロキサン間に結合が形成される結果として、硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーに高誘電基が導入される。

40

## 【0112】

本発明の第4の実施形態では、硬化性オルガノポリシロキサン組成物と相溶性であり、かつ高誘電基を有する有機化合物を、硬化性オルガノポリシロキサン組成物に添加するこ

50

とにより、硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーの比誘電率が増大する。本硬化性組成物中の有機化合物及びオルガノポリシロキサン間が混和性であることから、これらの高誘電基を有する有機化合物は、硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーマトリックスに組み込まれる。

【0113】

本発明の高誘電基に特に制限はなく、かつ高誘電基は、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物を硬化することにより得られる、得られる硬化物品の誘電特性を基を含有しない場合の誘電特性と比較して増大させることのできる任意の基であってよい。制限するものではないが、本発明において使用される高誘電基の例を以下に挙げる。

【0114】

a) ハロゲン原子及びハロゲン原子含有基

ハロゲン原子に特に制限はなく、ハロゲン原子の例は、フッ素原子及び塩素原子である。ハロゲン化アルキル基、ハロゲン化アリール基、及びハロゲン化アリールアルキル基により例示されるものなどのフッ素原子及び塩素原子から選択される1種以上のうち1つ以上の原子を有する有機基としてハロゲン原子含有基を選択することもできる。ハロゲン含有有機基の具体例としては、クロロメチル基、3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、及びペルフルオロアルキル基が挙げられるがこれらに限定されない。このような基の導入により、本発明の硬化物品の離型性、及び組成物から得られた硬化物品の離型性の改良を見込むことが可能となる。

【0115】

b) 窒素原子含有基

窒素原子含有基の例は、ニトロ基、シアノ基（例えば、シアノプロピル基、及びシアノエチル基）、アミド基、イミド基、ウレイド基、チオウレイド基、及びイソシアネート基である。

【0116】

c) 酸素原子含有基

酸素原子含有基の例は、エーテル基、カルボニル基、及びエステル基である。

【0117】

d) 複素環基

複素環基の例は、イミダゾール基、ピリジン基、フラン基、ピラン基、チオフェン基、フタロシアニン基、及びこのような基の錯体である。

【0118】

e) ホウ素含有基

ホウ素含有基の例は、ボレートエステル基及びホウ酸塩基である。

【0119】

f) リン含有基

リン含有基の例は、ホスフィン基、ホスフィンオキシド基、ホスホン酸エステル基、亜リン酸エステル基、及びリン酸エステル基である。

【0120】

g) 硫黄含有基

硫黄含有基の例は、チオール基、チオエーテル基、スルホキシド基、スルホン基、チオケトン基、スルホン酸エステル基、及びスルホンアミド基である。

【0121】

[ その他の任意選択的な原材料：硬化遅延剤又は同様物 ]

本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、通常、オルガノポリシロキサン組成物に配合される添加剤を含み得る。本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の目的を損なわなければ、硬化遅延剤（硬化抑制剤）、難燃剤、耐熱性改良剤、着色剤、溶媒、又は同様物などの任意の添加剤を配合可能である。硬化性オルガノポリシロキサン組成物が付加反応硬化型オルガノポリシロキサン組成物である場合、硬化遅延剤（硬化抑制剤）の例には、2-メチル-3-ブ

10

20

30

40

50

チン - 2 - オール、3, 5 - ジメチル - 1 - ヘキシシ - 3 - オール、2 - フェニル - 3 - ブチン - 2 - オール、又は同様物などのアルキンアルコール、3 - メチル - 3 - ペンテン - 1 - イン、3, 5 - ジメチル - 3 - ヘキセン - 1 - イン、又は同様物などのエニン化合物、及びベンゾトリアゾールが挙げられるがこれらに限定されない。硬化遅延剤（硬化抑制剤）が利用される濃度は、総組成物（重量基準）に対し好ましくは、1 ~ 50, 000 ppmの範囲である。

#### 【0122】

##### [ハイブリッド式]

本発明の目的を損なわなければ、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物を、オルガノポリシロキサン以外のポリマーと組み合わせることによるハイブリダイゼーションが可能である。オルガノポリシロキサンよりも高誘電率を有するポリマーを、オルガノポリシロキサンとハイブリダイゼーションさせることにより、本発明の組成物の誘電率、及び組成物から得られる硬化物品の誘電率を増大させることも可能である。ハイブリダイゼーションは、オルガノポリシロキサンと非オルガノポリシロキサンポリマーとのいわゆるポリマーブレンド、並びにオルガノポリシロキサンとその他のポリマーとを共に結合させる（すなわち、いわゆる共重合）ことによる縮合ポリマーの形成を包含する。

#### 【0123】

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、縮合硬化性、付加硬化性、過酸化物硬化性、又は光硬化性であるものの、付加硬化性オルガノポリシロキサン組成物が好ましい。この硬化性システムには、アクリル基、メタクリル基、エポキシ基、又はチオール基に対し前述の誘電官能基を付加する方法による、オルガノポリシロキサン分子鎖の導入を更に包含させることもできる。付加硬化反応に加えて、この光硬化性部分又は電子ビーム硬化性部分を使用することにより、光硬化反応又は電子ビーム硬化反応を使用することも可能である。反応を併用する場合、前述の硬化性組成物には、光又は電子ビーム（（メタ）アクリレートエステル及び多官能性（メタ）アクリレート化合物など）により硬化可能なモノマー及び/又はオリゴマーとして公知の化合物を更に添加することもできる。加えて、いわゆる光増感剤を添加することもできる。

#### 【0124】

##### [機械特性]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物の硬化により得られるトランスデューサーのための部材である誘電体シリコーンエラストマーは、厚さ2.0mmのシートに熱成型することにより、JIS K 6249に基づき測定される以下の機械特性を有することが可能である。しかしながら、本誘電体シリコーンエラストマー及びその他の必要とされる電気特性用途に従って、これらの機械特性範囲外の機械特性を有する誘電体シリコーンエラストマーを使用することも可能である。

(1) 室温でのヤング率(MPa)は0.1~10MPaの範囲に設定することができ、特に好ましい範囲は0.1~2.5MPaである。

(2) 室温での引き裂き強さ(N/mm)は1N/mm以上に設定することができ、特に2N/mm以上の範囲である。

(3) 室温での引き裂き強さ(MPa)は1MPa以上に設定することができ、特に好ましくは2MPa以上の範囲である。

(4) 破断点伸び(%)は100%以上に設定することができ、トランスデューサーの変位量の観点から、特に好ましくは200~1,000%の範囲である。

#### 【0125】

##### [誘電特性]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物の硬化により得られるトランスデューサーの部材である誘電シリコーンエラストマーは、以下に記載の誘電特性を有する。具体的には、本発明の1つの重要な特徴として、本発明の組成物による上記のものなどの機械特性の獲得に加え、組成物は低周波領域において優れた比誘電率を示す。

(1) 硬化性オルガノポリシロキサン組成物が厚さ0.07mmのシートに熱成型されるとき、絶縁破壊強度(V/μm)は20V/μm以上に設定することができる。好ましい絶縁破壊強度はトランスデューサーの用途に従って変化するものの、30V/μm以上の範囲の絶縁破壊強度が特に好ましい。

(2) 硬化性オルガノポリシロキサン組成物を厚さ1mmのシートに熱成型するとき、1MHzの測定周波数かつ23の測定温度で測定される比誘電率は3.0以上に設定することができる。好ましい比誘電率は、誘電体層に必要とされる形態及びトランスデューサーの種類に従って変化するものの、前述の測定条件下で特に好ましい比誘電率範囲は5.0以上である。

#### 【0126】

##### [製造方法]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、硬化性オルガノポリシロキサン成分、硬化触媒、室温、1kHzにて10以上の比誘電率を有する誘電性無機微粒子、前述の成分(E<sub>0</sub>) (好ましくは少なくとも1種の無機粒子)及びその他の添加剤を、押出機又は混練機(例えば、2軸押し機、2軸混練機、及び一枚羽根式押し機からなる群から選択される少なくとも1種の機械的手段)に添加し、次に混合物を混練することにより製造することができる。具体的には、少なくとも5,000(L/h)の自由体積を有する2軸押し機を使用して、反応性オルガノポリシロキサン成分、誘電性無機微粒子、及び表面処理剤を混練することにより、本発明は、充填剤を高濃度(例えば、少なくとも80重量%)で含むシリコンゴム複合体(マスターバッチ)を形成することもできる。次に、その他の反応性オルガノポリシロキサン成分、硬化触媒、及びその他の成分が好ましくは添加され、混練され、硬化性オルガノポリシロキサン組成物が製造される。

#### 【0127】

更に、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、好ましくは、2軸押し機、2軸混練機、及び一枚羽根式押し機からなる群から選択される少なくとも1種の機械的手段を使用して、少なくとも一部の硬化性オルガノポリシロキサン、前述の成分(D)、前述の成分(E<sub>0</sub>)、及び1種以上の表面処理剤を混練し、充填剤の含有量を、前述の混合手順により調製される組成物の50質量%以上、より好ましくは80質量%以上に調節することにより得られる中間体を含む。

#### 【0128】

前述の製造方法により得られるトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の硬化性オルガノポリシロキサン組成物中に、誘電性無機微粒子が良好にかつ高密度に分散され、したがって、良好な電気特性及び機械特性を有するトランスデューサーの部材を製造することが可能である。加えて、トランスデューサーの部材の製造中に均一なフィルム様硬化物品を得ることも可能であり、得られるフィルム様硬化物品の電気特性及び機械特性は優れており、かつ積層又は同様のプロセスの際の取り扱い性が優れている。

#### 【0129】

前述の混練プロセスにおいて、加硫剤(硬化触媒)を含有しないシリコンゴム化合物(マスターバッチ)の形成中の温度には特に制限はない。しかしながら、この温度は40~200の温度に設定され、100~180の範囲に設定することができる。2軸押し機又は同様の装置を使用する連続プロセスにおいて、処理中の滞留時間を約30秒~5分間に設定することもできる。

#### 【0130】

##### [本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の使用]

本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物の硬化又は半硬化により得られる電氣的に活性なシリコンエラストマーの誘電特性及び機械特性により、人工筋肉、アクチュエーター、センサー、及び電気生成構成要素(electricity generating elements)からなる群から選択されるトランスデューサーの部材として特に有用性がある。具体的には、当該部材は、硬化性オルガノポリシロキサン組成物をシート様又はフィルム様形状に成型後

10

20

30

40

50

、一般的に、加熱、高エネルギー線照射、又は同様の処理により硬化される。硬化性オルガノポリシロキサン組成物のフィルム様形状への成型方法に特に制限はないものの、その方法は、公知の様々な被覆方法；硬化性オルガノポリシロキサン組成物を、所望の形状のスロットを取り付けた押出機に通過させることによる成型方法、その他の方法により例示される。

【0131】

[エラストマーフィルム及び積層]

この種類のフィルム様硬化性オルガノポリシロキサン組成物の厚みは、例えば、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 5,000\ \mu\text{m}$ の範囲に設定することができる。前述のコーティング方法、及び揮発性溶媒の非存在又は存在に依存して、得られる硬化物品の厚みは、組成物の塗布時の厚みよりも薄くすることもできる。

10

【0132】

前述の方法によるフィルム様硬化性オルガノポリシロキサン組成物の製造後、熱硬化、室温硬化、又は高エネルギー線照射による硬化を実施し、かつ所望により、誘電性無機微粒子に対し、対象とする方位方向に電場若しくは磁場をかけることもでき、又は所定の期間にわたって磁場又は電場をかけることにより充填剤を配向させた後で、硬化させることもできる。各硬化操作若しくは各硬化操作中の条件に対し特に制限はないものの、硬化性オルガノポリシロキサン組成物が付加型の硬化性オルガノポリシロキサン組成物である場合、硬化は、好ましくは $90 \sim 180$ の温度範囲において、この温度範囲を $30\ \text{秒} \sim 30\ \text{分}$ 間維持することにより実施される。

20

【0133】

トランスデューサーのためのシリコーンエラストマーには特に制限はなく、この厚みは例えば、 $1 \sim 2,000\ \mu\text{m}$ であってよい。本発明のトランスデューサーのためのシリコーンエラストマーは、1層又は2層以上の層として重ねることもできる。更に、誘電性エラストマー層の両端部に電極層を提供することもでき、重ねられた複数の電極層、及び誘電性エラストマー層から構成される、トランスデューサーそのものの構成に使用することもできる。このような構成のための、トランスデューサーのためのシリコーンエラストマーの単層あたりの厚みは、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 1,000\ \mu\text{m}$ であってよい。このような層が少なくとも2層重ねられる場合、1層あたりの厚みは $0.2\ \mu\text{m} \sim 2,000\ \mu\text{m}$ であり得る。

30

【0134】

前述の方式で重ねられた2層以上のシリコーンエラストマー硬化層の成型方法には特に制限はないものの、方法は、(1)硬化性オルガノポリシロキサン組成物を基材に対し被覆すること(被覆中、硬化シリコーンエラストマー層が得られ、次に同じ硬化層に硬化性オルガノポリシロキサン組成物が更に塗布され、繰り返し塗布及び硬化され、積層物とされる)、(2)硬化性オルガノポリシロキサン組成物を未硬化又は半硬化状態で積層方法において基材に対し被覆し、硬化性オルガノポリシロキサン組成物(積層方法において被覆されたもの)を完全に硬化すること、あるいは(1)及び(2)の方法を併用する方法、などを使用することもできる。

【0135】

例えば、硬化性オルガノポリシロキサン組成物はダイコーティングにより基材に対し塗布することができ、硬化することができ、重ねることにより2層以上のこのようなシリコーンエラストマー硬化層を形成することができ、シリコーンエラストマー硬化層は、本発明において製造する電極層に取り付けることもできる。この構成に関し、重ねられた2以上のシリコーンエラストマー硬化層は好ましい誘電体層であり、電極は好ましくは導電性層である。

40

【0136】

ダイコーティングによる高速コーティングが可能であり、かつこのコーティング方法は高生産性である。オルガノポリシロキサン組成物を含有する単層を被覆後に本発明の多層構成体を有するトランスデューサーは、異なるオルガノポリシロキサン組成物を含有する

50



層を被覆することにより製造してもよい。更に、それぞれのオルガノポリシロキサン組成物を含有する複数の層を同時に被覆することによる製造も可能である。

【0137】

トランスデューサーのための部材である薄型フィルム様シリコーンエラストマーは、前述の硬化性オルガノポリシロキサン組成物を基材に対し塗布し、次にこの組立体(assembly)を室温にて、及び加熱により、又は紫外線又は同様の化学線などの高エネルギー線照射を用い、硬化することで得ることもできる。加えて、薄型フィルム様誘電体シリコーンエラストマーが重ねられるとき、未硬化オルガノポリシロキサン組成物を硬化層に塗布し、次に連続的に硬化することもでき、又は未硬化の硬化性オルガノポリシロキサン組成物を複数の層として重ね、次にこの層を同時に硬化することもできる。

10

【0138】

前述の薄型フィルム様シリコーンエラストマーは、トランスデューサーのための誘電体層として特に有用である。薄型フィルム様シリコーンエラストマーの両末端に電極層を配置することにより、トランスデューサーを形成することも可能である。更に、導電性無機粒子を本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物に配合することにより、電極層として機能性を提供することも可能である。更に本発明の特許明細書における「電極層」は、時として単に「電極」として参照される。

【0139】

トランスデューサーのための前述の部材の一実施形態は、シート様又はフィルム様である。膜厚は概して $1\ \mu\text{m} \sim 2,000\ \mu\text{m}$ であり、フィルムは単層、2層以上の層、又は更に複数の積層体である構造を有し得る。更に、所望される場合、誘電体層として使用するとき、重ねられた電氣的に活性なシリコーンエラストマー層は $5\ \mu\text{m} \sim 10,000\ \mu\text{m}$ の膜厚で使用することができ、あるいはこのような層を重ねてより厚みをもたせることもできる。

20

【0140】

トランスデューサーのための部材であるフィルム様シリコーンエラストマー層は、同じフィルム様シリコーンエラストマー、あるいは物理特性の異なる2層以上のフィルム様シリコーンエラストマーを重ねることにより形成することができ、又は予め硬化させた組成物を重ねてトランスデューサーのための部材を形成することもできる。加えて、フィルム様シリコーンエラストマー層の機能は誘電体層又は電極層であってよい。具体的には、トランスデューサーのための好ましい部材において、誘電体層の厚みは $1 \sim 1,000\ \mu\text{m}$ であり、電極層の厚みは $0.05\ \mu\text{m} \sim 100\ \mu\text{m}$ である。

30

【0141】

本発明のトランスデューサーは、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物を硬化することにより製造されるトランスデューサーのためのこの部材を有するものとして特徴付けられ、本発明のトランスデューサーは、特に高積層構造(すなわち、2層以上の誘電体層)を含む構造を有し得る。本発明のトランスデューサーは、3層以上の誘電体層を含む構造を更に有し得る。この種類の高積層構造を有するトランスデューサーは、複数の層を含むことにより大きな力を生成可能である。加えて、層を重ねることにより、単層を使用することにより得られ得るものよりも大きな変位を得ることも可能である。

40

【0142】

電極は、本発明のトランスデューサーのための誘電体層の両末端に含ませることもできる。利用される電極物質は、金属及び合金、例えば、金、白金、銀、パラジウム、銅、ニッケル、アルミニウム、チタン、亜鉛、ジルコニウム、鉄、コバルト、スズ、鉛、インジウム、クロム、モリブデン、マンガン、又は同様物など、金属酸化物、例えば、酸化インジウムスズ化合物(ITO)、酸化アンチモンズズ化合物(ATO)、酸化ルテニウム、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化スズ、及び同様物など、炭素材料、例えば、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーン、カーボンナノシート、カーボン繊維、カーボンブラック、又は同様物など、並びに導電性樹脂、例えば、ポリ(エチレン-3,4-ジオキシチオフ

50

エン) (PEDOT)、ポリアニリン、ポリピロール、又は同様物などにより例示される。導電性エラストマー、及び樹脂に分散した導電性充填剤を有する導電性樹脂を使用できる。

【0143】

電極は、前述の導電性物質のなかでも1つの物質を単独で含んでもよく、又は2つ以上のこのような導電性物質を含んでもよい。電極が2種以上の導電性物質を含む場合、導電性物質のうちの1つを活性物質として機能させ、残部を電極の抵抗性を低下させるための導電性物質として機能させることもできる。

【0144】

本発明のトランスデューサーのための誘電体層の合計厚さは、 $10\ \mu\text{m} \sim 2,000\ \mu\text{m}$  ( $2\ \text{mm}$ )の厚みに設定できるものの、この合計厚さは特に $200\ \mu\text{m}$ 以上の値に設定することもできる。詳細には、誘電体層を形成する誘電体シリコンエラストマー層の単層当たりの厚さは、好ましくは $0.1 \sim 500\ \mu\text{m}$ であり、この厚みは特に好ましくは $0.1 \sim 200\ \mu\text{m}$ である。これらのエラストマー薄層を2層以上積層することにより、単層を使用する場合と比較して、絶縁破壊電圧量、誘電率、及び変異量などの特性を改良することも可能である。

【0145】

本発明において、用語「トランスデューサー」は、ある種のエネルギーを別種のエネルギーへと変換するための構成要素、機械、又は装置を意味するものである。このトランスデューサーは、電気エネルギーの機械エネルギーへの変換のための人工筋肉及びアクチュエーター；機械エネルギーの電気エネルギーへの変換のためのセンサー及び発電素子；電気エネルギーの音エネルギーへの変換のためのスピーカー、マイクロフォン、及びヘッドフォン；化学エネルギーの電気エネルギーへの変換のための燃料電池；及び電気エネルギーの光エネルギーへの変換のための発光ダイオード、により例示される。

【0146】

本発明のトランスデューサーは、本発明のトランスデューサーの誘電体及び機械特性に起因して、特に人工筋肉、アクチュエーター、センサー、又は発電素子として使用することができる。人工筋肉は、例えば、ロボット、介護機器、リハビリテーション訓練装置、又は同様の用途などの用途への使用が予測される。アクチュエーターとしての実施形態を本発明の実施例として以下に例証する。

【0147】

[図1~4]

図1は、誘電体層が積層されている本発明の実施形態のアクチュエーター1の断面図を示す。本実施形態では、誘電体層は、例えば2層の誘電体層から構成される。アクチュエーター1には、誘電体層10a及び10b、電極層11a及び11b、ワイヤ12、及び電源13が取り付けられる。電極層11a及び11bは、誘電体層の各接触面を被覆しており、これらの電極層はそれぞれワイヤ12を介し電源13に接続されている。

【0148】

アクチュエーター1は、電極層11及び電極層11b間に電圧を印加することにより駆動することもできる。電圧を印加することにより、誘電体層10a及び10bは誘電特性に起因してより薄くなり、結果として電極層11a及び11b面に対して平行に伸長する。すなわち、電気エネルギーを、力又は移動若しくは変異の機械エネルギーに変換することが可能である。

【0149】

図2は、本発明の実施形態のアクチュエーター2の断面図を示す。この実施形態では、誘電体層及び電極層が積層される。本実施形態により、例えば、誘電体層は3層から構成され、かつ電極層は4層から構成される。アクチュエーター2には、誘電体層20a、20b、及び20c、電極層21a、21b、21c、及び21d、ワイヤ22、並びに電源23が取り付けられている。電極層21a、21b、21c、及び21dは、それぞれ、誘電体層の各接触面を被覆しており、これらはそれぞれワイヤ22を介して電源23に

10

20

30

40

50

接続されている。電極層は、異なる電圧側に交互に接続され、電極層 2 1 a 及び 2 1 c は、電極層 2 b 及び 2 1 d とは異なる面に接続される。

【 0 1 5 0 】

電極層 2 1 a 及び電極層 2 1 b 間の電圧印加、電極層 2 1 b 及び電極層 2 1 c 間の電圧印加、及び電極層 2 1 c 及び電極層 2 1 d 間の電圧印加により、アクチュエーター 2 を駆動することも可能である。電圧を印加することにより、誘電体層 2 0 a、2 0 b、及び 2 0 c は誘電特性に起因してより薄くなり、結果として電極層の 2 1 a、2 1 b、2 1 c、及び 2 1 d 面に対して平行に伸長する。すなわち、電気エネルギーを、力又は移動若しくは変異の機械エネルギーに変換することが可能である。

【 0 1 5 1 】

アクチュエーターの実施形態を本発明のトランスデューサーの例として記載したものの、本発明のトランスデューサーの外側から機械的エネルギー（圧力又は同様のエネルギーなど）が印加されるとき、相互に絶縁された電極層間の電気エネルギーとして、異なる電位を生成することが可能である。これはすなわち、機械エネルギーの電気エネルギーへの変換についてのセンサーとして使用することが可能である。このセンサーについての実施形態を以下に記載する。

【 0 1 5 2 】

図 3 は、本発明の実施形態のセンサー 3 の構造を示す。センサー 3 は、誘電体層 3 0 が、マトリックス様のパターンで配置され、上側の電極層 3 1 a、3 1 b、及び 3 1 c と、下側の電極層 3 2 a、3 2 b、及び 3 2 c との間に配設された、構造を有する。本実施形態により、例えば、電極層をそれぞれ垂直方向及び水平方向に 3 列のマトリックスパターンとして配設することができる。それぞれの電極層の、誘電体層 3 0 と接触していない面は、誘電層により保護することもできる。加えて、誘電体層 3 0 には、オルガノポリシロキサンを含む同じ誘電体層を 2 層以上含ませることもできる。

【 0 1 5 3 】

外的な力がこのセンサー 3 の表面に印加されると、上側電極層及び下側電極層間の誘電体層 3 0 の厚みは圧のかけられた位置で変化し、この変化に起因して、電極層間の静電容量において変化が生じる。これらの電極層間の静電容量の変化に起因する電極層間の電位差を測定することにより、外力を検出することが可能である。すなわち、この実施形態は、機械エネルギーの電気エネルギーへの変換のためのセンサーとして使用することもできる。

【 0 1 5 4 】

更に、誘電体層を挟み込む対向する電極層は、本実施形態のセンサー 3 において 3 対として形成され、電極の数、大きさ、位置、又は同様の事柄は、用途に応じ適切に選択することができる。

【 0 1 5 5 】

発電素子は、機械エネルギーの電気エネルギーへの変換のためのトランスデューサーである。この発電素子を、波力、水力、水力、又は同様物などの自然エネルギーにより電気生成を開始する、並びに振動、衝撃、圧変化、又は同様の事柄に起因する電気生成を開始する装置のために使用することもできる。この発電素子の実施形態を以下に記載する。

【 0 1 5 6 】

図 4 は、本発明の実施形態の発電素子 4 の断面図を示す。この実施形態では、誘電体層が積層されている。本実施形態では、誘電体層は、例えば 2 層の誘電体層から構成される。発電素子 4 は、誘電体層 4 0 a 及び 4 0 b と、電極層 4 1 a 及び 4 1 b から構成される。電極層 4 1 a 及び 4 1 b は、それぞれの接触している誘電体層の一表面を被覆するように配置されている。

【 0 1 5 7 】

電極層 4 1 a 及び 4 1 b は、未記載の負荷部に電氣的に接続されている。この発電素子 4 は、電極層 4 1 a 及び 4 1 b 間の距離を変化させ、静電容量を変化させることにより電気エネルギーを生成し得る。すなわち、誘電体層 4 0 a 及び 4 0 b により形成される電場

10

20

30

40

50

に起因して静電荷誘起状態である電極層41a及び41b間の要素の形状における変化に起因して、電荷分布には偏りが生じ、電極層間の静電容量はこの偏りに起因して変化し、電極層間に電位差が生じる。

【0158】

本発明の実施形態において、図4に示す発電素子4の電極層41a及び41b面に対し平行方向に圧縮力を印加された状態(上図)から、同様の図において示す通りの圧縮力を非印加の状態(下図)への変化に起因して、電極層41a及び41b間に電位差が生じ、電力としての電位差の変化の出力により発電素子の機能を認識することが可能である。すなわち、機械エネルギーの電気エネルギーへの変換も可能である。更に、複数の要素を基材上に配置して、このような複数の要素を直列又は並列に接続させることにより多量の電気を生成する電気生成装置を構成することも可能である。

10

【0159】

本発明のトランスデューサーは、空气中、水中、真空中、又は有機溶媒中で作動し得る。加えて、本発明のトランスデューサーをトランスデューサーの使用環境に応じ適切に封止することもできる。封止方法に特に制限はなく、この封止方法は、樹脂材料又は同様物を使用して封止することにより例示される。

【0160】

産業上の利用可能性

トランスデューサーの製造のため、本発明のトランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物を適切に使用することもできる。本発明のトランスデューサーのための、硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、単に未硬化の組成物であるというよりは、反応性オルガノポリシロキサンが部分的に反応しており、硬化が不完全な状態にある、いわゆるBステージの材料を含み得る。本発明のBステージの材料は、ゲル様である状態の、又は流動性を有する状態の材料により例示される。したがって、本発明の実施形態は、トランスデューサーのための硬化性オルガノポリシロキサン組成物の硬化反応が部分的に進行している状態の部材も含み得る。このとき、トランスデューサーのための部材はゲル様の状態であり又は流体である。更に、半硬化状態のこの種類のトランスデューサーのための部材は、単層又は薄型フィルム様シリコンエラストマーの積層体から構成することもできる。

20

【実施例】

30

【0161】

本発明を具体的に示す目的で、実施例を以下に掲載する。しかしながら、これらの実施例は本発明の範囲を制限するものとして理解されてはならない。更に、以下に示す「%」は重量パーセントを表す。

【0162】

(実施例1)

25 にて2,000 mPa・sの粘度を有し、両末端がジメチルビニルシロキシ基により保護されているジメチルポリシロキサン(A<sub>22</sub>) (ビニル含量0.23%) 14.22%に、平均径1.0 μmの球状チタン酸バリウム85.35% (Fuji Titanium Industry Co., Ltd.製, HPBT-1B)、トリメトキシシリル末端およびジメチルビニル末端を有するポリシロキサン(平均重合度=25) 0.356%、及び1,1,3-トリメチル-3,3-ジフェニル-1-カルボキシデシルジシロキサン0.071%を加えた。Rossミキサーを使用して均一に混合した後、混合物を更に150 にて30分間加熱混合し、シリコンエラストマーベース1を得た。

40

【0163】

更に、25 にて2,000 mPa・sの粘度を有し、かつ両末端がジメチルビニルシロキシ基により保護されているジメチルポリシロキサン(A<sub>22</sub>) (0.23%ビニル含量) 50.00%に、Carbon Black (Cancar Corporationにより製造、Thermax Floform N990) 50.00%を添加した。Rossミキサーを使用して均一に混合した後、混合物を更に150 にて30分間加

50

熱混合し、シリコーンエラストマーベース 2 を得た。

【 0 1 6 4 】

シリコーンエラストマーベース 1 及びシリコーンエラストマーベース 2 に、表 1 に記載の配合比で、ジメチルポリシロキサン (  $A_{22}$  )、分子鎖両末端がジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン (  $A_{112}$ 、SiH 含量 = 0.015% )、分子鎖両末端がトリメチルシロキシ基で封鎖されたジメチルシロキサン - メチルヒドロジェンシロキシコポリマー (  $A_{121}$ 、0.75% SiH 含量 )、ジメチルビニルシロキシ基二重末端化メチルポリシロキサンに溶解させた 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の白金錯体 0.67% (白金として)、並びに反応調節剤としてテトラメチルテトラビニルシクロテトラシロキサンを添加した。均一になるまで混合物を混合し (約 10 分間)、シリコーンエラストマー組成物を得た。ここで、本シリコーンエラストマー組成物中の全ビニル基に対する全 SiH 官能基のモル比 (SiH 基 / ビニル基) は 1.3 である。

10

【 0 1 6 5 】

ここで、反応性オルガノポリシロキサンが  $M_a M^R_b D_c D^R_d T_e T^R_f Q_g$  により表されるとき、 $(a + c) / (b + d + e + f + g)$  の値が 3 未満であるオルガノポリシロキサンの硬化性オルガノポリシロキサン組成物中の全シロキサン成分に対する重量部分 (X) は、 $X = 1.5\%$  である。硬化性オルガノポリシロキサン組成物中のシロキサン成分の全量に対する二重分子鎖末端化反応性オルガノポリシロキサンの重量分画 (Y) は、98.5% である。単一分子内に硬化反応性基を少なくとも 2 つ有し、かつ硬化反応可能な 2 つの基間の平均分子量 10,000 未満を有する反応性オルガノポリシロキサン (S) と、単一分子内に硬化反応可能な基を少なくとも 2 つ有し、かつ硬化反応可能な 2 つの基間の平均分子量 10,000 以上かつ 150,000 以下を有する反応性オルガノポリシロキサン (L) との配合比 (重量比 S / L) は、1.3 / 98.7 である。

20

【 0 1 6 6 】

それに対し、前述のポリオルガノシロキサン原材料の化学構造、ケイ素結合した水素原子の含有量、アルケニル基の含有量、及び数平均分子量に基づき、単位重量当たりの架橋点数 (J 値) は  $20.7 \mu\text{mol} / \text{g}$  であると算出され、架橋点間の分子量 (K 値) は約 556,000 であると算出された。

【 0 1 6 7 】

このシリコーンエラストマー組成物を 150℃ にて 15 分間圧縮硬化し、次に 150℃ にて 60 分間後硬化した。JIS K 6249 に基づき、得られた硬化物品に対しヤング率、引張り強さ、破断点伸び、及び引き裂き強さを測定した。機械強度を測定する目的で、厚さ 2 mm のシートを作製した。厚さ 6 mm のシートのデュロメータ A 硬さは、JIS K 6253 をもとに測定した。

30

【 0 1 6 8 】

加えて、このシリコーンエラストマー組成物を 150℃ で 15 分間圧縮硬化して、厚さ 0.07 mm のシートを作製した。絶縁破壊強度は電気的な絶縁破壊電圧油試験機、すなわち PORTATEST 100A - 2 (Soken Electric Co., Ltd. により製造) を使用して測定される通りのものであった。同様の方法で、シリコーンエラストマー組成物を 150℃ で 15 分間圧縮効果し、厚さ 1 mm のシートを製造した。23℃ の温度かつ 1 MHz 測定周波数条件下で、Ando Electric Co., Ltd. により製造された TR - 1100 誘電率 - tangent 測定装置を用い、比誘電率を測定した。結果を表 1 に示す。

40

【 0 1 6 9 】

実施例 2 ~ 29 及び比較例 1 ~ 3

架橋剤  $A_1$  及びポリマー  $A_2$  の添加量及び化学的な構造を変更したことを除き、実施例 1 と同様の手順を実施し、あるいは必要とされる場合、表 1 に掲載される微粒子を使用してシリコーンゴム組成物を得た。同様の方式で前述の X、Y、S / L、J、及び K 値を算出した。得られた組成物を同様の方式で加熱及び硬化し、機械強度及び電気特性を評価し

50

た。これらの結果を表1に示す。加えて、表中、上記されない架橋剤及びポリマーの化学構造は以下の通りのものである。

- A<sub>2 1</sub> : 分子鎖両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖されたポリジメチルシロキサン  
 A<sub>2 2</sub> : 分子鎖両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖されたポリジメチルシロキサン  
 A<sub>2 3</sub> : ビニル官能化MQ樹脂  
 A<sub>1 1 1</sub> : 分子鎖両末端がジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン  
 A<sub>1 1 2</sub> : 分子鎖両末端がジメチルヒドロジェンシロキシ基で封鎖されたポリジメチルシロキサン  
 A<sub>1 2 1</sub> : 分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖されたジメチルシロキサン - メチルヒドロジェンシロキシコポリマー 10  
 A<sub>1 2 2</sub> : 分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖されたジメチルシロキサン - メチルヒドロジェンシロキシコポリマー  
 (F1) 反応調節剤: テトラメチルテトラビニルシクロテトラシロキサン  
 (F2) 反応調節剤: 2 - フェニル - 3 - ブチン - 2 - オール (含有量: 0.5 質量%)  
 (C) Pt 触媒: 白金 1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン錯体  
 微粒子: ( ) 製品名  
 シリコン表面処理したチタン酸バリウム 20  
 シリカ1 (NX90G)  
 シリカ2 (RDX300)  
 カーボンブラック1 (N990)  
 カーボンブラック2 (Denka Black 100%)  
 気相法カーボンファイバー (VGCF)  
 グラフェン (Grapheme) シート (XG-H)  
 酸化チタン (PF-711)  
 酸化亜鉛1 (Kadox 911)  
 酸化亜鉛2 (XX503R)  
 酸化亜鉛3 (23-K) 30  
 マグネタイト (KN-320)  
 アルミナ1 (Al-170)  
 雲母 (MK-100)  
 水酸化アルミニウム (Al) (H-42M)  
 アルミナ2 (Alu C805)  
 【0170】  
 「硬化シリコンエラストマー薄型フィルムの電気機械試験」  
 【0171】  
 (実施例29 v. 比較例4)  
 本発明 (実施例 # 29) に基づく硬化薄膜には、カーボンブラック及びシリコンオイル ([Asbury 導電性炭素グレード5303] / [Dow Corning FS1265フルオロシリコンオイル] = 1 / 7 (w/w)) から構成される電極ペーストを刷毛により塗布し、コーティングした。活性なEAP領域を確定する電極印加 (回路) 直径は、10mm ~ 20mmの範囲とした。電界と厚さひずみとの関係を分析するため、Dow Corning 電気機械的試験機 (SRI international Inc.) を用い電気機械試験を実施した。測定条件は次の通りのものである。  
 1) 温度及び湿度: 21 ~ 23、かつ相対湿度35 ~ 52%  
 2) 初期膜厚: 77 μm  
 3) 2軸プリストレッチ: 25%  
 4) 2軸ストレッチ後の膜厚: 49 μm 50

5) 電圧パターンは0.5 Hz 方形波型とした。「ゼロ」ボルトと、試験電圧条件とを比較したときに電気回路直径に生じている変化により、作動時放射方向ひずみが定義される。厚さひずみは、シリコン試料の非圧縮性に起因する放射方向ひずみに関連する。試験電圧を「最終的な」膜厚(再伸長及び作動後の膜厚)により除することによって、電界を定義する。

【0172】

電界(V/um)の関数として、対照材料(比較例4)としてのSylgard 186と共に厚さひずみ(%)を図5に示す。

【0173】

図5実施例29及び比較例4についての電界(V/um)の関数としての厚さひずみ(%)

【0174】

【表 1】

[表 1-1] (実施例 1 ~ 8 の組成)

実施例		1	2	3	4	5	6	7	8
直鎖ポリマー	反応性官能基:含量 (重量%)								
A21	ビニル基:0.95	21.58	23.74	26.35	40.30	44.05	25.31	26.71	39.52
A22	ビニル基:0.23								
分枝状ポリマー									
A23	ビニル基:1.50			0.27					
架橋剤									
A111	Si-H基:0.155	3.02	3.32	17.09	2.32	2.54	1.46	1.54	3.33
A112	Si-H基:0.015	0.34	0.37	0.17	0.26	0.28	0.16	0.17	0.03
A121	Si-H基:0.75								
A122	Si-H基:0.83	0.03	0.03	0.05	0.05	0.06	0.03	0.03	0.05
(F1)反応調節剤1		0.04	0.04	0.06	0.06	0.07	0.04	0.04	0.06
(C)Pt触媒									
無機微粒子	A:比表面積(m <sup>2</sup> /g) B:平均粒径(um)								
シリコーン表面処理した チタン酸バリウム	A:2.2	70.00	70.00	50.00	50.00	50.00	70.00	70.00	50.00
シリカ1	A:60								
シリカ2	A:209								
カーボンブラック1	A:9.5	5.00		5.00	7.00	3.00	3.00	1.50	7.00
カーボンブラック2	A:65								
気相法カーボンファイバー	A:13								
グラフェン(Grapheme)シート	A:60~80			1.00					
酸化チタン	B:0.4								
酸化亜鉛1	B:0.25								
酸化亜鉛2	B:0.12								
酸化亜鉛3	B:1.0								
マグネサイト	B:0.2								
アルミナ1	B:0.3								
雲母	B:2.0								
Al(OH)3	B:3~5								
アルミナ2	B:1.0								
合計(質量%)		100	100	100	100	100	100	100	100

【 0 1 7 5 】



【表 2】

【表 1-2】 (実施例 9 ~ 16 の組成)

実施例		9	10	11	12	13	14	15	16
直鎖ポリマー	反応性官能基:含量 (重量%)								
A21	ビニル基:0.95	43.19	24.81	26.19	24.01	24.01	24.89	80.12	25.85
A22	ビニル基:0.23								
分枝状ポリマー									
A23	ビニル基:1.50								
架橋剤									
A111	Si-H基:0.155	3.64	2.09	2.21	3.07	3.07	3.18	6.59	3.23
A112	Si-H基:0.015	0.04	0.02	0.02	0.34	0.34	0.35	0.07	0.36
A121	Si-H基:0.75	0.03	0.06	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.10
A122	Si-H基:0.83	0.04	0.07	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.12
(F1)反応調節剤1									
(C)Pt触媒									
無機微粒子	A:比表面積(m <sup>2</sup> /g) B:平均粒径(μm)								
シリコーン表面処理した チタン酸バリウム	A:2.2	50.00	70.00	70.00	70.00	70.00	70.00	10.00	70.00
シリカ1	A:60								
シリカ2	A:209	3.00	3.00	1.50	2.50	2.50	1.50	3.00	0.5
カーボンブラック1	A:9.5								
カーボンブラック2	A:65								
気相法カーボンファイバー	A:13								
グラフェン(Grapheme)シート	A:60~80								
酸化チタン	B:0.4								
酸化亜鉛1	B:0.25								
酸化亜鉛2	B:0.12								
酸化亜鉛3	B:1.0								
マグネサイト	B:0.2								
アルミナ1	B:0.3								
雲母	B:2.0								
Al(OH)3	B:3~5								
アルミナ2	B:1.0								
合計(質量%)		100	100	100	100	100	100	100	100

【 表 3 】

【表 1-3】 (実施例 17~24 の組成)

実施例		17	18	19	20	21	22	23	24
直鎖ポリマー	反応性官能基:含量 (重量%)								
A21	ビニル基:0.95	25.85	26.20	25.85	25.75	25.75	25.75	25.75	25.75
A22	ビニル基:0.23								
分枝状ポリマー									
A23	ビニル基:1.50								
架橋剤									
A111	Si-H基:0.155	3.23	3.27	3.23	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
A112	Si-H基:0.015								
A121	Si-H基:0.75	0.36	0.36	0.36	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
A122	Si-H基:0.83	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.700	0.700	0.700
(F1)反応調節剤1									
(F2)反応調節剤2									
(C)Pt触媒		0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.05	0.05	0.05
無機微粒子	A:比面積(m <sup>2</sup> /g) B:平均粒径(μm)	70.00	70.00	70.00					
シリコーン表面処理した チタン酸バリウム	A:2.2								
シリカ1	A:60								
シリカ2	A:209								
カーボンブラック1	A:9.5								
カーボンブラック2	A:65								
気相法カーボンファイバー	A:13								
グラフェン(Grapheme)シート	A:60~80	0.5	0.1	0.5	63.0	63.0	63.0	63.0	63.0
酸化チタン	B:0.4								
酸化亜鉛1	B:0.25				10.0				
酸化亜鉛2	B:0.12								
酸化亜鉛3	B:1.0								
マグネサイト	B:0.2								
アルミナ1	B:0.3								
雲母	B:2.0								
Al(OH)3	B:3~5								
アルミナ2	B:1.0								
合計(質量%)		100	100	100	100	100	100	100	100

【 0 1 7 7 】

10

20

30

40

【 表 4 】

[表 1 - 4] (実施例 25 ~ 29 の組成)

実施例		25	26	27	28	29
直鎖ポリマー	反応性官能基:含量 (重量%)					
A21	ビニル基:0.95					
A22	ビニル基:0.23	25.9	25.9	25.9	29.3	29.5
分枝状ポリマー						
A23	ビニル基:1.50					
架橋剤						
A111	Si-H基:0.155					2.00
A112	Si-H基:0.015					
A121	Si-H基:0.75	0.50	0.50	0.50	0.50	0.15
A122	Si-H基:0.83	0.03				
(F1)反応調節剤1						
(F2)反応調節剤2		0.700	0.700	0.700	0.700	0.700
(C)Pt触媒		0.04	0.05	0.05	0.05	0.05
無機微粒子	A:比表面積(m2/g) B:平均粒径(um)					
シリコーン表面処理した チタン酸バリウム	A:2.2	62.8	62.8	62.8	62.8	61.0
シリカ1	A:60					
シリカ2	A:209					
カーボンブラック1	A:9.5					
カーボンブラック2	A:65					
気相法カーボンファイバー	A:13					
グラフェン(Grapheme)シート	A:60~80					
酸化チタン	B:0.4	10				
酸化亜鉛1	B:0.25					
酸化亜鉛2	B:0.12					
酸化亜鉛3	B:1.0					
マグネサイト	B:0.2			10		
アルミナ1	B:0.3					
雲母	B:2.0					
Al(OH)3	B:3~5		10			
アルミナ2	B:1.0					
合計(質量%)		100	100	100	100	100

【 0 1 7 8 】

## 【表 5】

[表 1 - 5] (比較例 1 ~ 3 の組成)

比較例		1	2	3
直鎖ポリマー	反応性官能基:含量 (重量%)			
A21	ビニル基:0.95			4.60
A22	ビニル基:0.23	28.25	33.40	63.82
分枝状ポリマー				
A23	ビニル基:1.50			
架橋剤				
A111	Si-H基:0.155	1.50	2.70	
A112	Si-H基:0.015			
A121	Si-H基:0.75		0.07	1.20
A122	Si-H基:0.83	0.17		
(F1)反応調節剤1		0.04		0.04
(F2)反応調節剤2			0.700	
(C)Pt触媒		0.04	0.05	0.04
無機微粒子	A:比表面積(m <sup>2</sup> /g) B:平均粒径(μm)			
シリコン表面処理した チタン酸バリウム	A:2.2	70.0	63.1	
シリカ1	A:60			
シリカ2	A:209			30.3
カーボンブラック1	A:9.5			
カーボンブラック2	A:65			
気相法カーボンファイバー	A:13			
グラフェン(Grapheme)シート	A:60~80			
酸化チタン	B:0.4			
酸化亜鉛1	B:0.25			
酸化亜鉛2	B:0.12			
酸化亜鉛3	B:1.0			
マグネタイト	B:0.2			
アルミナ1	B:0.3			
雲母	B:2.0			
Al(OH)3	B:3~5			
アルミナ2	B:1.0			
合計(質量%)		100	100	100

10

20

30

【 0 1 7 9 】

【 表 6 】

【表 1 - 6】 実施例 1 ～ 7 の組成、構造因子、及び物理特性値

実施例		1	2	3	4	5	6	7
組成及び構造因子	X値	1.5%	1.5%	1.1%	0.7%	0.7%	0.7%	0.7%
	Y値	98.5%	98.5%	98.9%	99.3%	99.3%	99.3%	99.3%
	S成分画分	1.5%	1.5%	1.1%	6.1%	6.1%	6.1%	6.1%
	L成分画分	98.5%	98.5%	98.9%	93.9%	93.9%	93.9%	93.9%
	J値	20.7	20.7	8.7	11.0	11.0	11.0	11.0
	K値	55608	55608	122882	102218	102218	102218	102218
物理的特性値								
硬度	単位							
引張り強度	シヨアA	49.5	48.6	15.8	33.4	22.4	38.9	31.3
破断伸度	MPa	2.8	3.0	1.9	3.5	2.0	2.5	2.1
引き裂き強度	%	212%	231%	529%	604%	440%	408%	386%
ヤング率	N/mm	5.0	5.4	3.4	6.7	2.7	7.2	4.9
絶縁破壊強度	MPa	2.3	1.9	0.6	0.9	0.6	1.2	1.0
比誘電率	V/um	18.5	9.3	15.0	50.1	44.8	46.9	42.3
		13.3	130.8	7.7	4.7	4.8	7.7	7.9

【 0 1 8 0 】

10

20

30

40

【 表 7 】

【表 1-7】 実施例 8～14 の組成、構造因子、及び物理特性値

実施例		8	9	10	11	12	13	14
組成及び構造因子		X値 Y値 S成分百分 L成分百分 J値 K値	0.2% 99.8% 8.0% 92.0% 1.4 809183	0.2% 99.8% 8.0% 92.0% 1.4 809183	0.2% 99.8% 8.0% 92.0% 1.4 809183	0.2% 99.8% 8.0% 92.0% 1.4 809183	1.4% 98.6% 1.4% 98.6% 22.6 47381	1.4% 98.6% 1.4% 98.6% 22.6 47381
物理的特性値		単位						
硬度		単位						
引張り強度		シヨアA	19.4	10.9	20.4	14.2	49.3	51.2
破断伸度		MPa	3.9	2.4	1.9	1.8	2.9	3.1
引き裂き強度		%	104.4%	109.7%	96.5%	128.0%	195%	168%
ヤング率		N/mm	20.2	4.0	13.7	9.5	4.3	4.8
絶縁破壊強度		MPa	0.5	0.3	0.5	0.4	2.2	2.5
比誘電率		V/um	45.0	38.2	39.3	35.3	28.7	9.3
			4.9	4.8	7.9	8.1	10.9	72.3
								48.6
								2.8
								190%
								4.3
								2.3
								13.8
								24.7

【 0 1 8 1 】

10

20

30

40

【 表 8 】

【表 1 - 8】 実施例 1 5 ~ 2 1 の組成、構造因子、及び物理特性値

実施例		15	16	17	18	19	20	21
組成及び構造因子	X値	0.2%	1.3%	1.3%	1.3%	1.3%	1.5%	1.5%
	Y値	99.8%	98.7%	98.7%	98.7%	98.7%	98.5%	98.5%
	S成分画分	7.8%	1.3%	1.3%	1.3%	1.3%	1.9%	1.9%
	L成分画分	92.2%	98.7%	98.7%	98.7%	98.7%	98.1%	98.1%
	J値	1.4	22.6	22.6	22.6	22.6	29.5	29.5
	K値	809183	47381	47381	47381	47381	41669	41669
物理的特性値								
硬度	単位							
引張り強度	シヨアA	6.9	44.8	44.8	44.5	43.4	69.0	75.0
破断伸度	MPa	0.8	1.9	1.9	1.5	1.5	4.0	4.1
引き裂き強度	%	765%	188%	200%	137%	160%	127%	146%
ヤング率	N/mm	1.8	3.3	3.3	3.2	3.4	6.1	7.3
絶縁破壊強度	MPa	0.2	1.8	1.9	1.7	1.8	4.2	5.0
比誘電率	V/um	43.8	24.5	19.9	16.4	16.8	26.0	21.8
		2.6	9.9	11.2	10.0	11.4	9.6	11.8

【 0 1 8 2 】

10

20

30

40

【 表 9 】

【表 1 - 9】 実施例 2 2 ~ 2 8 の組成、構造因子、及び物理特性値

実施例		22	23	24	25	26	27	28
組成及び構造因子	X値	1.5%	1.5%	1.5%	1.8%	1.8%	1.8%	1.6%
	Y値	98.5%	98.5%	98.5%	98.2%	98.2%	98.2%	98.4%
	S成分画分	1.9%	1.9%	1.9%	1.8%	1.8%	1.8%	1.6%
	L成分画分	98.1%	98.1%	98.1%	98.2%	98.2%	98.2%	98.4%
	J値	29.5	29.5	29.5	35.4	35.4	35.4	35.4
	K値	41669	41669	41669	33932	33932	33932	33932
物理的特性値								
硬度	単位							
引張り強度	シヨアA	71.0	69.0	70.0	63.0	68.7	60.7	57.0
破断伸度	MPa	4.6	4.3	3.0	3.2	3.8	3.7	4.0
引き裂き強度	%	207%	139%	85%	117%	172%	174%	170%
ヤング率	N/mm	7.7	6.2	8.1	5.6	7.0	5.7	5.3
絶縁破壊強度	MPa	4.5	4.4	5.9	4.2	4.7	3.5	2.6
比誘電率	V/um	39.4	68.8	70.2	24.3	60.9	66.0	67.0
		11.2	8.8	8.2	11.1	10.5	10.9	9.1

【 0 1 8 3 】

10

20

30

40



## 【表 10】

【表 1-10】 実施例 29、比較例 1～3 の組成、構造因子、及び物理特性値

実施例		29	比較例		
			1	2	3
組成及び構造因子	X値	0.5%	0.7%	0.2%	1.8%
	Y値	99.5%	99.3%	99.8%	98.2%
	S成分画分	6.6%	5.7%	7.7%	8.4%
	L成分画分	93.4%	94.3%	92.3%	91.6%
	J値	3.3	1.9	1.2	37.9
	K値	525657	898077	1522116	30685
物理的特性値	単位				
硬度	シヨアA	24.1	35.5	14.9	34.0
引張り強度	MPa	2.4	2.0	1.0	7.8
破断伸度	%	544%	365%	467%	481%
引き裂き強度	N/mm	13.4	4.7	10.6	15.5
ヤング率	MPa	0.6	1.6	0.4	0.7
絶縁破壊強度	V/um	47.2	37.0	38.7	57.5
比誘電率		7.8	10.8	4.9	2.8

10

## 【0184】

20

表 1 に示す通り、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物は、硬化性オルガノポリシロキサン成分、10 以上の比誘電率を有する誘電性無機微粒子、10 未満の比誘電率を有する微粒子を有しており、したがってシリコンエラストマーには、優れた機械特性（破断点伸びにより表される通り）及び誘電特性（誘電定数により表される通り）がもたらされていた。加えて、架橋構造及び無機微粒子を最適化することにより、望まれるトランスデューサー用途に従って材料を設計することが可能である。具体的には、本発明の硬化性オルガノポリシロキサン組成物から得られるシリコンエラストマーは、低電圧領域においてさえ高誘電特性を実現する。

## 【符号の説明】

## 【0185】

30

## 1、2 アクチュエーター

10 a、10 b、20 a、20 b、20 c 誘電体層

11 a、11 b、21 a、21 b、21 c、21 d 電極層（導電性層）

12、22 ワイヤ

13、23 電源

## 3 センサー

30 誘電体層

31 a、31 b、31 c 上側電極層

32 a、32 b、32 c 下側電極層

## 4 発電素子

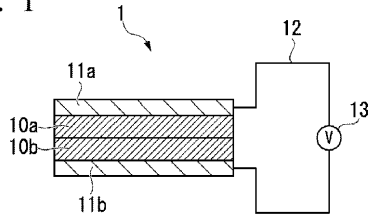
40 a、40 b 誘電体層

41 a、41 b 電極層

40

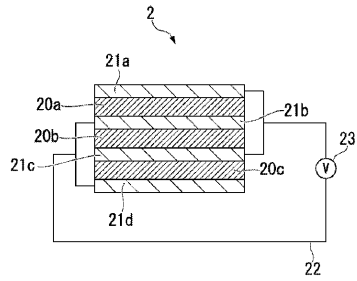
【図1】

FIG. 1



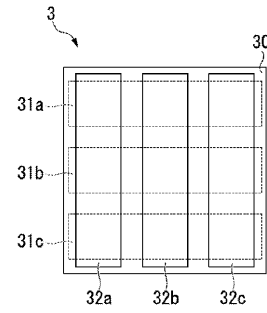
【図2】

FIG. 2



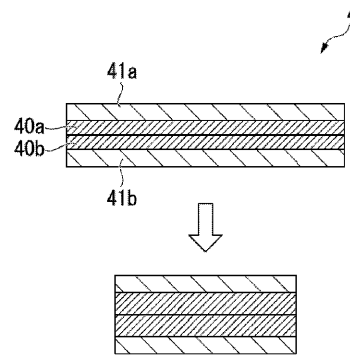
【図3】

FIG. 3

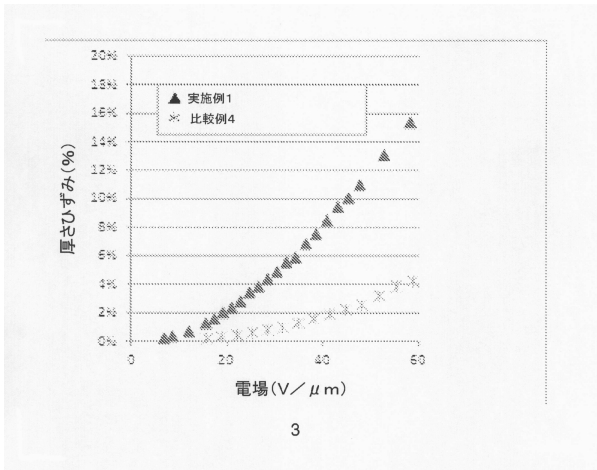


【図4】

FIG. 4



【図5】



## フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I
C 0 8 K	3/22 (2006.01)	C 0 8 K 3/22
C 0 8 K	3/24 (2006.01)	C 0 8 K 3/24
C 0 8 K	3/08 (2006.01)	C 0 8 K 3/08

(31)優先権主張番号 61/746,598

(32)優先日 平成24年12月28日(2012.12.28)

(33)優先権主張国 米国(US)

(74)代理人 100108453

弁理士 村山 靖彦

(72)発明者 藤澤 豊彦

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 福井 弘

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 古川 晴彦

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 ピーター・チェシャー・ハップフィールド

イギリス・S A 3 3 6 A A・トレパイクハン・ダイフェド・パーク・ワイ・ゲッリ・ヘンフウィッチ・ロード・(番地なし)

(72)発明者 ホン・サブ・キム

アメリカ合衆国・カリフォルニア・9 5 0 1 4・クパチーノ・パークビュー・コート・1 9 7 0 1

(72)発明者 北浦 英二

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 ケント・アール・ラーソン

アメリカ合衆国・ミシガン・4 8 6 4 2・ミッドランド・ノース・エラズ・ロード・4 3 2 8

(72)発明者 西海 航

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 小川 琢哉

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 大西 正之

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 尾崎 弘一

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

(72)発明者 脇田 啓二

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内

審査官 中村 英司

(56)参考文献 国際公開第2 0 1 1 / 1 2 5 7 5 3 (WO, A 1)

特開平0 5 - 0 2 0 9 2 4 (JP, A)

特開2 0 1 0 - 0 6 8 6 6 7 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4

H 0 2 N 1 1 / 0 0