



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2022년03월31일  
(11) 등록번호 10-2379808  
(24) 등록일자 2022년03월24일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C08J 5/18 (2006.01) C08G 77/08 (2006.01)  
C08G 77/12 (2006.01) C08G 77/20 (2006.01)  
C08G 77/24 (2006.01) H01B 3/46 (2006.01)

(52) CPC특허분류  
C08J 5/18 (2021.05)  
C08G 77/08 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2018-7031697

(22) 출원일자(국제) 2017년04월12일  
심사청구일자 2020년03월27일

(85) 번역문제출일자 2018년10월31일

(65) 공개번호 10-2018-0136969

(43) 공개일자 2018년12월26일

(86) 국제출원번호 PCT/JP2017/015028

(87) 국제공개번호 WO 2017/183541  
국제공개일자 2017년10월26일

(30) 우선권주장  
JP-P-2016-086460 2016년04월22일 일본(JP)

(56) 선행기술조사문헌  
KR1020140030254 A\*  
JP2001139894 A\*  
JP08506841 A  
JP2003113244 A  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
듀폰 도레이 스페셜티 머티리얼즈 가부시키키가이샤  
일본국 도쿄도 치요다쿠 나가타초 2초메 11반 1코

(72) 발명자  
후쿠이 히로시  
일본 2990108 지바 이치하라-시 치구사카이간 2-2  
썬/오 다우 코닝 도레이 캄파니 리미티드  
마사토미 토루  
일본 2990108 지바 이치하라-시 치구사카이간 2-2  
썬/오 다우 코닝 도레이 캄파니 리미티드  
추다 타케아키  
일본 2990108 지바 이치하라-시 치구사카이간 2-2  
썬/오 다우 코닝 도레이 캄파니 리미티드

(74) 대리인  
장훈

전체 청구항 수 : 총 10 항

심사관 : 안국현

(54) 발명의 명칭 **고유전성 필름, 그의 용도 및 제조 방법**

**(57) 요약**

본 발명은 유전율이 높고, 필름의 폭 방향에 대하여 실질적으로 평탄하면서 균일한 것을 특징으로 하는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름, 그의 용도 및 제조 방법의 제공을 목적으로 한다. 필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께와 중앙의 두께 차가 5.0% 이내이고, 필름 중앙의 두께가 50~1000 μm의 범위에 있는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름. 이러한 필름은 프라이머 층과 평탄화 층을 구비하고 있을 수 있으며, 압연 공정에 의해 얻어질 수도 있고, 또한 박리층을 구비한 세퍼레이터 사이에서의 경화에 의해 얻어질 수도 있다.

(52) CPC특허분류

*C08G 77/12* (2013.01)

*C08G 77/20* (2013.01)

*C08G 77/24* (2013.01)

*H01B 3/46* (2013.01)

---

**명세서**

**청구범위**

**청구항 1**

필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께와 중앙의 두께 차가 5.0% 이내이고, 필름 중앙의 두께가 50 내지 1000 μm의 범위에 있는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름으로서,

상기 고유전성 필름은 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 탄소 원자수 1 내지 10의 알킬렌기이며, p는 1 내지 8의 범위의 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기인 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시킴으로써 형성되고,

여기서 상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물은

(A) 하기 구조식 (I):



{식 중, R<sup>1</sup>은 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 1 내지 8의 범위의 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기 또는 탄소수 2 내지 12의 알케닐기이며, R<sup>2</sup>는 동일하거나 또는 독립적으로 탄소수 1 내지 12의 알킬기, 탄소수 6 내지 20의 아릴기, 탄소수 7 내지 20의 아르알킬기, 수산기, 또는 탄소수 1 내지 6의 알콕시기이고, 모든 R<sup>1</sup> 중 적어도 2개는 탄소수 2 내지 12의 알케닐기이며, 모든 R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup> 중 10몰% 이상은 상기 플루오로알킬기이고, e1은 양의 수이고, e2는 0 또는 양의 수이고, 5<e1+e2<500을 만족하는 수이다}

로 표시되는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산,

(B) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산으로서, (A) 성분의 알케닐기의 함계량 1몰에 대하여 본 성분 중의 규소 결합 수소 원자가 0.1 내지 1.0몰이 되는 양,

(C) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매, 및

(D) (A) 내지 (C) 성분의 합 100질량부에 대하여 0 내지 2000질량부의 용매

를 함유하는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 2**

◆청구항 2은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항에 있어서, 필름 폭이 30 mm 이상이고, 필름 면적이 900 mm<sup>2</sup> 이상이며, 1 kHz 및 25℃에서의 비유전율이 4 이상인, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 3**

◆청구항 3은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 실질적으로 투명하고, 필름 중앙의 두께가 100 내지 900 μm의 범위에 있는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 4**

◆청구항 4은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 23℃에서의 전단 저장 탄성률이 10<sup>3</sup> 내지 10<sup>5</sup> Pa의 범위에 있는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 5**

제1항 또는 제2항에 있어서, 프라이머 층 및 상기 프라이머 층 위에 적층된 평탄화 층을 포함하는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 6**

◆청구항 6은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제5항에 있어서, 두께 5 내지 40 μm의 프라이머 층 및 상기 프라이머 층 위에 적층된 두께 10 내지 800 μm의 평탄화 층을 포함하며, 상기 프라이머 층 및 평탄화 층이 모두 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물인, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 7**

◆청구항 7은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 고유전성 필름이 압연 가공되는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 8**

제1항 또는 제2항에 있어서, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에서 경화됨으로써 형성된 평탄화 층을 갖는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 9**

◆청구항 9은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항에 있어서, 상기 (A)가 하기 평균 구조식 (II):



{식 중, R<sup>Vi</sup>는 탄소수 2 내지 12의 알케닐기이며, R<sup>2</sup>는 상기와 동일한 기이며, R<sup>3</sup>은 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이고, e1' 및 e2'는 5<e1'+e2'+2<500을 만족하는 수이며, (e1')/(e1'+e2')의 값은 0.5 내지 1.0의 범위이고, e2'는 0 또는 양의 수이다}

로 표시되는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 함유하는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 10**

◆청구항 10은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항에 있어서, 상기 (B) 성분이 분자 중에 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산인, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 11**

◆청구항 11은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제1항 또는 제2항에 있어서, 전자 재료 또는 표시 장치용 부재로서 사용하기 위한, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

**청구항 12**

제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름이 박리층을 구비한 시트형 기재에 적층된 구조를 갖는 적층체.

**청구항 13**

제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름을 갖는 전자 부품.

**청구항 14**

제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름을 갖는 표시 장치.

**청구항 15**

한 면에 도전층이 형성되어 있는 기재 및 상기 기재의 도전층 또는 그 반대측 면에 부착되어 있는 제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름을 갖는 터치 패널.

**청구항 16**

공정 (I): 기재 위에 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 두께가 40 μm 이하가 되도록 도포하고, 경화시켜 프라이머 층을 얻는 공정, 및

공정 (II): 상기 공정 (I) 후, 프라이머 층 위에 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 고유전성 필름 전체의 필름 중앙의 두께가 50 내지 1000 μm가 되도록 도포하고, 경화시켜 평탄화 층을 얻는 공정을 갖는, 제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.

**청구항 17**

◆청구항 17은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.◆

제16항에 있어서, 상기 공정 (I)에 있어서, 기재가 박리면을 갖는 평면형 기재이며, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 박리면 위에 도포되는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.

**청구항 18**

플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 전 또는 경화 후에 압연 가공을 수행하는 것을 특징으로 하는, 제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.

**청구항 19**

플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼운 상태에서 경화시키는 것을 특징으로 하는, 제1항 또는 제2항에 기재된 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.

**청구항 20**

삭제

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 유전율이 높고, 필름의 폭 방향에 대하여 실질적으로 평탄하면서 균일한 것을 특징으로 하는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름(highly dielectric film), 그의 용도 및 제조 방법에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 폴리실록산계 감압 접착제 조성물은 아크릴계나 고무계 감압 접착제 조성물과 비교하여 전기 절연성, 내열성, 내한성, 각종 피착체에 대한 점착성이 우수하기 때문에, 내열성 점착 테이프, 전기 절연성 점착 테이프, 히트 실 테이프(heat seal tape), 도금 마스킹 테이프 등에 사용되고 있다. 이들 폴리실록산계 감압 접착제 조성물은 그의 경화 기구에 따라 부가 반응 경화형, 축합 반응 경화형, 피옥사이드 경화형 등으로 분류된다. 실온 방치 혹은 가열에 의해 신속하게 경화하고 부생물을 발생하지 않기 때문에, 부가 반응 경화형 감압 접착제 조성물이

범용되고 있다.

- [0003] 폴리실록산계 감압 접착제의 상기 특성 및 높은 투명성을 살려, 최근 스마트 디바이스 등의 첨단 일렉트로닉스 표시 소자 분야로의 응용이 검토되고 있다. 이러한 디바이스는 전극층, 표시층을 포함하는 복수층으로 이루어지는 필름을 투명 기재 사이에 끼운 구조를 취하고 있으며, 전극층, 표시층의 보호 및 층간 접착성 개량을 목적으로, 내열·내한성, 투명성이 높은 폴리실록산계 감압 접착제가 유효하게 작용하는 것이 기대된다.
- [0004] 이들 스마트 기기 중에서, 압력 센서 등 센서 용도에 요구되는 감압 접착제의 재료 특성으로서, 우수한 투명성 이외에 고유전 특성을 들 수 있다. 센서 감도를 높이기 위해서는, 일정 전압하에서의 높은 정전 용량을 얻을 필요가 있으며, 이를 위해서는, 사용하는 재료에 높은 비유전율이 요구된다. 비유전율이 높은 폴리머 재료로서 폴리비닐리덴 플루오라이드 및 폴리비닐리덴 플루오라이드계 공중합체가 있으며, 이들이 압전 재료 및 초전 재료로서 이용할 수 있다는 것이 알려져 있다. 예를 들어, 일본 공개특허공보 제2010-108490호(특허문헌 1)에는, 비닐리덴 플루오라이드-테트라플루오로에틸렌 공중합체를 포함하는 투명 압전 시트가 기재되어 있으며, 이를 터치 패널에 이용하는 것이 기재되어 있다. 또한, 일본 공개특허공보 제2011-222679호(특허문헌 2)에는, 비닐리덴 플루오라이드-테트라플루오로에틸렌 공중합체에 더하여, 비닐리덴 플루오라이드-트리플루오로에틸렌 공중합체, 및 폴리비닐리덴 플루오라이드를 투명 압전 시트의 투명 압전체 막의 재료로서 이용하는 것이 기재되어 있다. 한편, 비닐리덴 플루오라이드계 폴리머는 그의 높은 결정성 때문에, 필름 등의 성형품을 제조하기 위한 가공성이 떨어진다는 과제가 있다.
- [0005] 한편, 투명성 및 가공성이 우수한 범용 폴리머 재료의 비유전율은 통상 2~4의 값이지만, 폴리머 구조를 적절히 설계함으로써 이 값을 5~7 또는 그 이상으로 높이는 것이 가능하다. 폴리실록산의 비유전율을 높이기 위해서는, 규소 상의 치환기로서 플루오로알킬기를 도입하는 것이 유효하다는 것은 이미 알려져 있으며, 본 발명자들도 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물이 높은 비유전율을 가지고, 트랜스듀서 재료로서 유효하다는 것을 개시했다(국제 특허 공개공보 제2014-105959호, 특허문헌 3).
- [0006] 한편, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 포함하는 감압 접착제에 대해서도 이미 연구되고 있다. 예를 들어, 미국 특허공보 제5436303호(특허문헌 4)에는,  $R_3SiO_{1/2}$  단위(식 중, R은 알킬기) 및  $SiO_{4/2}$  단위로 이루어지고, 실라놀기를 갖는 MQ 레진 및 플루오로알킬실리콘을 포함하는 감압 접착제가 개시되어 있다. 또한, 국제 특허 공개공보 제1994-6878호(특허문헌 5)에는, 플루오로알킬실리콘과 비닐 모노머로 이루어지는 코폴리머 및 이를 포함하는, 용매내성이 양호한 감압 접착제가 기재되어 있다. 이들 기술에서는, 감압 접착의 열쇠가 되는 MQ 레진은 플루오로알킬기를 가지고 있지 않으며, 투명성이 불분명하고, 실제 기재되어 있지 않다. 한편, 미국 특허공보 제7253238호(특허문헌 6)에는, 구조를 규정한  $R_3SiO_{1/2}$  단위(식 중, R은 알킬기),  $R(CH_2=CH)SiO_{2/2}$  단위(식 중, R은 알킬기) 및  $SiO_{4/2}$  단위로 이루어지는, 플루오로알킬기 함유 MQ 레진 및 이를 포함하는 감압 접착제가 기재되어 있다. 또한, 일본 특허공보 제5066078호(특허문헌 7)에는, 제조법이 한정된 플루오로알킬기 함유 MQ 레진 및 이를 포함하는 감압 접착제가 개시되어 있다. 아울러, 일본 공개특허공보 제2010-502781호(특허문헌 8)에는, 플루오로알킬실리콘 감압 접착제 조성물 및 실리콘 라이너로 이루어지는 적층체도 개시되어 있다. 그러나, 이들 감압 접착제 조성물에 있어서는, 과산화물 경화 시스템만이 개시되어 있고, 경화 속도가 크며, 또한 성형 가공 시의 수축이 거의 없어, 소망의 경화 조건을 설정하기 쉬운 부가형 경화 시스템에 대해서는 검토되어 있지 않다. 또한, 유전 특성에 대해서도 검토되지 않았으며, 그 기재도 시사도 이루어지지 않았다. 따라서, 투명성이 우수하고, 비유전율이 높은 부가 경화형 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산, 이를 포함하는 감압 접착제 적층체 필름, 및 감압 접착제 적층체 필름으로 구성되는 표시 디바이스에 대해서는 현재까지 보고되어 있지 않다.
- [0007] 한편, 광학적으로 투명한 실리콘계 감압 접착제 필름 및 이를 이용한 터치 패널 등의 표시 디바이스의 제조는 일본 공표특허공보 제2014-522436호(특허문헌 9) 또는 일본 공표특허공보 제2013-512326호(특허문헌 10) 등에서 개시되어 있으나, 이들 실리콘계 감압 접착제 필름의 성능은 여전히 개선의 여지를 남기고 있다.
- [0008] 이들 선행 기술을 감안하여, 본건 출원인은 특정한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물을 이용함으로써 상기 과제를 해결할 수 있다는 것을 찾아내어 국제 특허 출원번호 제PCT/JP2015/006198호(특허문헌 11) 및 제PCT/JP2016/001299호(특허문헌 12)에 관한 유전성 재료를 제안하고 있다. 이들 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물은 우수한 투명성을 가지며, 감압 접착제로서의 기능이 우수하고, 필름 등의 성형품을 제조하기 위한 양호한 가공성을 갖는 동시에, 비유전율이 높다는 이점을 갖는다. 아울러, 성형 가공 시의 수축이 거의 없고 경화 속도가 커서 소망의 경화 조건을 설정하기 쉽다는 이점을 갖는다.

**선행기술문헌**

**특허문헌**

- [0009] (특허문헌 0001) 특허문헌 1: 일본 공개특허공보 제2010-108490호
- (특허문헌 0002) 특허문헌 2: 일본 공개특허공보 제2011-222679호
- (특허문헌 0003) 특허문헌 3: 국제 특허 공개공보 제2014-105959호
- (특허문헌 0004) 특허문헌 4: 미국 특허공보 제5436303호
- (특허문헌 0005) 특허문헌 5: 국제 특허 공개공보 제1994-6878호
- (특허문헌 0006) 특허문헌 6: 미국 특허공보 제7253238호
- (특허문헌 0007) 특허문헌 7: 일본 특허공보 제5066078호
- (특허문헌 0008) 특허문헌 8: 일본 공개특허공보 제2010-502781호
- (특허문헌 0009) 특허문헌 9: 일본 공표특허공보 제2014-522436호
- (특허문헌 0010) 특허문헌 10: 일본 공표특허공보 제2013-512326호
- (특허문헌 0011) 특허문헌 11: 국제 특허 출원번호 제PCT/JP2015/006198호
- (특허문헌 0012) 특허문헌 12: 국제 특허 출원번호 제PCT/JP2016/001299호

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

- [0010] 한편, 본원 발명자들은 상기 특허문헌 11, 특허문헌 12에서 제안한 유전성 재료에 있어서 새로운 과제를 발견했다. 이들 유전성 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물은 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 이용하는 경우, 필름상으로 성형되어 이용하는 것이 요구되는 경우가 있으며, 균일한 필름상 경화물을 얻는 것이 바람직하다. 그러나, 경화성 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 조성물은 유전성을 부여하는 플루오로알킬기 및 주쇄인 오가노폴리실록산이 높은 표면장력을 갖기 때문에, 특히 박리층을 구비한 기재 위에 도포한 경우, 특히 50 μm 이상의 두께로 도포한 경우에 도막이 불균일한 상태로 형성되는 경향이 있다. 이러한 불균일한 도막을 그대로 경화하여 얻어진 고유전성 필름 재료는, 막 두께가 불균일해지며, 터치 패널 등의 유전층에 이용한 경우, 부재간의 간극이나 기포의 원인이 되어 성능면에서 악영향을 끼치는 경우가 있다.
- [0011] 게다가, 경화성 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 조성물의 경화물인 유전성 필름을 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 이용하는 경우, 취급 작업성의 관점에서, 박리층을 갖는 세퍼레이터 위에 유전성 필름을 적층하고 사용 시에는 유전성 필름을 떼어 내어서 이용하는 것이 바람직하지만, 상기 경화성 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 구비한 기재 위에 도포한 경우, 특히 50 μm 이상의 두께로 도포한 경우에 도막의 양 말단이 부풀어오른 불균일한 도막이 형성되며, 이를 경화시켜 이루어지는 필름상 경화물의 양 단부가 부풀어올라 필름 중앙 부분이 움푹 패인 형상이 되어, 터치 패널 등의 유전층에 이용한 경우, 부재간의 간극이나 기포의 원인이 되어 성능면에서 악영향을 끼치는 경우가 있다.
- [0012] 이러한 불균일한 필름이 형성되는 것은, 경화성 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 조성물의 경화물인 유전성 필름의 가일층의 응용 전개를 도모함에 있어서 해결해야 할 과제이며, 공지의 방법으로는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물을 이용하여 유전 특성, 균일성 및 평탄성이 우수한 유전성 필름을 제공할 수 없다.
- [0013] 이 때문에, 상기 특허문헌 11, 특허문헌 12에서 제안한 것과 동등 이상의 유전성 등의 특성을 구비하고, 또한 균일성, 필름의 폭 방향으로의 평탄성이 우수한 고유전성 필름의 제공, 및 그의 용도 및 제조 방법을 제공하는

것을 목적으로 한다.

**과제의 해결 수단**

- [0014] 상기 과제를 해결하기 위해 예의 검토한 결과, 본 발명자들은 필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께와 중앙의 두께 차가 5.0% 이내이고, 필름 중앙의 두께가 50~1000 μm의 범위에 있는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름에 의해 상기 과제를 해결할 수 있다는 것을 찾아내어 본 발명에 도달했다. 당해 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물은, 투명성이 우수하고, 비유전율이 높은 새로운 감압 접착제 재료로서 이용 가능하다. 아울러, 이러한 균일성, 필름의 폭 방향으로의 평탄성이 우수한 고유전성 필름은 후술하는 프라이머 층 및 프라이머 층 위에 적층된 평탄화 층으로 구성되는 고유전성 필름일 수 있고, 원료가 되는 경화성 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼운 상태에서 경화·적층함으로써 평탄화 층을 형성시킨 고유전성 필름일 수 있으며, 원료가 되는 경화성 조성물의 압연 가공에 의해 얻어진 고유전성 필름일 수도 있다.
- [0015] 게다가, 본 발명자들은 상기 플루오로알킬기가 트리플루오로프로필기일 때 상기 과제를 보다 바람직하게 해결할 수 있다는 것, 상기 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물 원료로서 하기 평균 구조식 (II):
- [0016] 
$$R^{Vi} R^2_2 Si (OSiR^3)_{e1'} (OSiR^2)_{e2'} OSi R^{Vi} R^2_2 \quad (II)$$
- [0017] {식 중, R<sup>Vi</sup>는 탄소수 2~12의 알케닐기이며, R<sup>2</sup>는 상기와 동일한 기이며, R<sup>3</sup>은 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이고, 또한 e는 5<e1'+e2'+2<500을 만족하는 수이고, (e1')/(e1'+e2')의 값은 0.5~1.0의 범위이다.}
- [0018] 로 표시되는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 함유하는 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는 경우에, 상기 과제를 더욱더 바람직하게 해결할 수 있다는 것을 찾아내어 본 발명에 도달했다.
- [0019] 즉, 본 발명의 목적은,
- [0020] [1] 필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께와 중앙의 두께 차가 5.0% 이내이고, 필름 중앙의 두께가 50~1000 μm의 범위에 있는, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름
- [0021] 에 의해 달성된다.
- [0022] 바람직하게는, 본 발명의 목적은 하기의 고유전성 필름에 의해 달성된다.
- [0023] [2] 필름 폭이 30 mm 이상이고, 필름 면적이 900 mm<sup>2</sup> 이상이며, 1 kHz, 25℃에서의 비유전율이 4 이상인 것을 특징으로 하는, [1]에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0024] [3] 실질적으로 투명하고, 필름 중앙의 두께가 100~900 μm의 범위에 있는, [1] 또는 [2]에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0025] [4] 23℃에서의 전단 저장 탄성률이 10<sup>3</sup>~10<sup>5</sup> Pa의 범위에 있는 [1]~[3] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0026] 특히, 바람직하게는, 본 발명의 목적은 경화성 조성물에 대하여 프라이머 층 및 평탄화 층을 마련한 필름, 압연 가공에 의해 얻어진 필름 또는 박리층을 마련한 세퍼레이터 사이에서의 경화에 의해 평탄화 층을 마련한 필름에 의해 해결된다. 아울러, 이들 필름은 무용매(solvent free)로서 설계하는 것이 가능한 동시에 바람직하다. 즉, 본 발명의 목적은 하기의 고유전성 필름에 의해 달성된다.
- [0027] [5] 프라이머 층 및 프라이머 층 위에 적층된 평탄화 층으로 구성되는, [1]~[4] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0028] [6] 두께 5~40 μm의 프라이머 층 및 프라이머 층 위에 적층된 두께 10~800 μm의 평탄화 층으로 구성되며, 상기 프라이머 층 및 평탄화 층이 모두 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물인, [1]~[5] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0029] [7] 압연 가공되어 이루어지는 것을 특징으로 하는, [1]~[6] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가

노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.

- [0030] [8] 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에서 경화됨으로써 형성된 평탄화 층을 갖는, [1]~[7] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0031] [8-1] 용매를 실질적으로 함유하지 않는 것을 특징으로 하는, [1]~[8] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0032] 또한, 본 발명의 목적은 하기의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는 고유전성 필름에 의해 달성된다.
- [0033] [9] 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이  $(C_pF_{2p+1})-R-$  ( $R$ 은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며,  $p$ 는 1~8의 범위의 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기인 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는, [1]~[8] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0034] [10] (A) 하기 구조식 (I):
- [0035]  $R^1R^2_2Si(OSiR^1R^2)_{e1}(OSiR^2_2)_{e2}OSiR^1R^2_2$  ( I )
- [0036] {식 중,  $R^1$ 은  $(C_pF_{2p+1})-R-$  ( $R$ 은 상기와 동일한 기이며,  $p$ 는 1~8의 범위의 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기 또는 탄소수 2~12의 알케닐기이며,  $R^2$ 는 동일 또는 독립적으로 탄소수 1~12의 알킬기, 탄소수 6~20의 아릴기, 탄소수 7~20의 아르알킬기, 수산기 혹은 탄소수 1~6의 알콕시기이고, 또한 모든  $R^1$  중, 적어도 2개는 탄소수 2~12의 알케닐기이며, 모든  $R^1$  및  $R^2$  중 10몰% 이상은 상기 플루오로알킬기이고,  $e1$ 은 양의 수이고,  $e2$ 는 0 또는 양의 수이고,  $5 < e1 + e2 + 2 < 500$ 을 만족하는 수이다.}
- [0037] 로 표시되는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산,
- [0038] (B) 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산 (A) 성분의 알케닐기의 함계량 1몰에 대하여 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~1.0몰이 되는 양,
- [0039] (C) 유효량의 하이드로실릴화 반응용 촉매, 및
- [0040] (D) 용매 (A)~(C) 성분의 합 100질량부에 대하여 0~2000질량부
- [0041] 를 함유하는, 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는, [1]~[9] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0042] [11] 상기 (A)가 하기 평균 구조식 (II):
- [0043]  $R^{Vi}R^2_2Si(OSiR^3R^2)_{e1'}(OSiR^2_2)_{e2'}OSiR^{Vi}R^2_2$  ( I I )
- [0044] {식 중,  $R^{Vi}$ 는 탄소수 2~12의 알케닐기이며,  $R^2$ 는 상기와 동일한 기이며,  $R^3$ 은  $(C_pF_{2p+1})-R-$  ( $R$ 은 상기와 동일한 기이며,  $p$ 는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이고, 또한  $e1'$  및  $e2'$ 는  $5 < e1' + e2' + 2 < 500$ 을 만족하는 수이며,  $(e1') / (e1' + e2')$ 의 값은 0.5~1.0의 범위이고,  $e2'$ 는 0 또는 양의 수이다.}
- [0045] 로 표시되는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 함유하는, [10]에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0046] [12] 상기 (B) 성분이 분자 중에  $(C_pF_{2p+1})-R-$  ( $R$ 은 상기와 동일한 기이며,  $p$ 는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산인, [10]에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름.
- [0047] 또한, 본 발명의 목적은 상기 고유전성 필름의 용도 및 당해 고유전성 필름을 구비한 적층체 및 그의 용도이며, 이하의 발명에 의해 달성된다.
- [0048] [13] [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 전자

재료 또는 표시 장치용 부재로서의 사용.

- [0049] [14] [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름이 박리층을 구비한 시트상 기재에 적층된 구조를 갖는 적층체.
- [0050] [15] [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름을 갖는 전자 부품 또는 표시 장치.
- [0051] [16] 한 면에 도전층이 형성되어 있는 기재 및 상기 기재의 도전층 또는 그 반대측 면에 부착되어 있는 [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름을 갖는 터치패널.
- [0052] 아울러, 본 발명의 목적은 상기 고유전성 필름의 제조 방법의 발명에 의해 달성된다.
- [0053] [17] 공정 (I): 기재 위에 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 두께가 40  $\mu\text{m}$  이하가 되도록 도포하고, 경화시켜 프라이머 층을 얻는 공정, 및
- [0054] 공정 (II): 상기 공정 (I) 후, 프라이머 층 위에 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 고유전성 필름 전체의 필름 중앙의 두께가 50~1000  $\mu\text{m}$ 가 되도록 도포하고, 경화시켜 평탄화 층을 얻는 공정을 갖는, [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.
- [0055] [18] 상기 공정 (I)에 있어서, 기재가 박리면을 갖는 평면상 기재이며, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 박리면 위에 도포되는 것을 특징으로 하는, [17]에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.
- [0056] [19] 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 전 혹은 경화 후에 압연 가공을 수행하는 것을 특징으로 하는, [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.
- [0057] [20] 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼운 상태에서 경화시키는 것을 특징으로 하는, [1]~[12] 중 어느 하나에 기재한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름의 제조 방법.

**발명의 효과**

- [0058] 본 발명에 의하면, 균일성, 필름의 폭 방향으로의 평탄성이 우수한 동시에, 비유전율이 높은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지는 고유전성 필름을 제공할 수 있다. 당해 고유전성 필름은, 취급 작업성이 우수하고, 유전층, 특히 트랜스듀서 등의 유전층을 형성하는 유전성 필름 내지 시트상 부재이며, 겔, 엘라스토머, 접착제 등의 기능을 가질 수도 있다. 더욱더 바람직하게는, 당해 고유전성 필름은 감압 접착층, 특히 감압 접착 필름은 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 바람직하게 이용할 수 있으며, 특히 당해 감압 접착 필름을 포함하는 터치 패널 등의 표시 디바이스를 제공할 수 있는 이점이 있다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0059] 이하, 본 발명의 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름에 대하여 상세히 설명한다.
- [0060] [두께, 균일성 및 평탄성]
- [0061] 본 발명의 고유전성 필름은, 필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께와 중앙의 두께 차가 5.0% 이내이고, 필름 중앙의 두께가 50~1000  $\mu\text{m}$ 의 범위에 있는 것을 특징으로 한다. 필름의 폭 방향이란 필름의 길이 방향과 직각 방향이며, 일반적으로는 원료가 되는 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 방향에 대하여 평면 방향에 직각인 방향을 의미한다. 아울러, 필름의 권취가 수행되는 경우에는 권취되는 방향이 길이 방향이며, 필름의 폭 방향은 그에 직각인 방향이다. 사변형 또는 대략 사변형의 필름에 있어서는, 필름의 폭 방향은 장축 방향에 직각인 방향이며, 정사각형 또는 대략 정사각형 필름에 있어서는 당해 정사각형 필름의 각 변에 직각 또는 평행한 방향 중 어느 하나를 폭 방향으로 할 수도 있다.
- [0062] 본 발명의 고유전성 필름은, 필름의 폭 방향에 대하여 말단의 두께( $\mu\text{m}$ )와 중앙의 두께( $\mu\text{m}$ )의 차(절대값)가

5.0% 이내이며, 4.0% 이내인 것이 바람직하고, 3.5% 이내인 것이 특히 바람직하다. 아울러, 당해 필름은 양 단(端)의 부풀어오름을 포함하여 실질적으로 면 위에 요철이 없는 평탄하면서 균일한 구조인 것이 바람직하며, 필름 폭 방향의 두께의 최대 변위(차)가 5.0% 이내인 것이 바람직하고, 필름 전체에 있어서 두께의 최대 변위(차)가 5.0% 이내이고, 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 필름인 것이 특히 바람직하다.

[0063] 본 발명의 고유전성 필름은, 필름 중앙의 두께가 50 μm를 초과하는 일정한 두께를 갖는 필름 재료이면서 필름 내의 두께의 차가 거의 없는, 실질적으로 평탄한 구조를 가지고 있는 것을 특징으로 한다. 구체적으로는, 필름의 폭 방향에 대하여 필름 중앙의 두께가 50~1000 μm의 범위이고, 필름 중앙의 두께가 100~900 μm의 범위에 있는 것이 바람직하며, 필름 중앙의 두께가 200~800 μm의 범위에 있는 것이 특히 바람직하다. 필름 중앙의 두께가 상기 하한 미만에서는, 막 두께가 너무 얇기 때문에 유전성 필름으로서의 용도가 한정되는 경우가 있으며, 상기 상한을 초과하면 단층으로서 취급할 때 막 두께가 너무 두껍기 때문에 박형화가 요구되는 터치 패널 등의 용도에 적합하지 않은 경우가 있다.

[0064] 아울러, 본 발명의 고유전성 필름은 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 필름이기 때문에, 단층뿐만 아니라 복수의 필름층을 중첩시켜 균일한 두께의 유전성 필름층을 형성할 때, 필름 사이의 요철에서 유래하는 기포의 말려들어 감, 변형 및 결함이 발생하기 어렵다는 이점을 갖는다. 즉, 본 발명의 고유전성 필름은 50~1000 μm의 두께를 갖는 것이지만, 복수의 필름을 중첩시켜 1000 μm를 초과하는 유전성 필름층을 형성하여, 각종 트랜스듀서에 이용되는 대용량의 유전층을 형성하는 목적으로 이용하는 것이 가능하다. 당해 필름층으로 이루어지는 유전층을 구성하는 유전성 필름은 본원 발명의 범위에 포함된다.

[0065] 본 발명의 고유전성 필름은 일정한 크기(면적)를 갖는 것이 바람직하며, 필름 폭이 30 mm 이상이고, 필름 면적이 900 mm<sup>2</sup> 이상인 것이 바람직하다. 이러한 필름은, 예를 들어 사방 30 mm 이상의 유전성 필름이며, 필름 폭이 50 mm 이상이고, 길이가 50 mm 이상인 유전성 필름이 특히 바람직하다. 본 발명의 고유전성 필름은 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 필름이며, 박리층 위라도 원료의 경화성 조성물을 균일하게 도포하여 경화시킨 구조를 가질 수 있기 때문에, 길이 방향에 대해서는 롤 위에 권취가 가능한 길이라도 제한 없이 이용할 수 있다. 또한 말할 것도 없이, 당해 고유전성 필름은 소망의 크기, 형상으로 절단하여 이용할 수도 있다.

[0066] [투명성]

[0067] 본 발명의 고유전성 필름은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물이며, 착색제나 입자 지름이 큰 필러 등을 배합하지 않는 경우에는 실질적으로 투명하다. 특히, 본 발명의 고유전성 필름은 실질적으로 투명한 감압 접착제층으로서 사용할 수 있다. 여기서, 실질적으로 투명이란, 두께 50~1000 μm의 필름상 경화물을 형성시킨 경우, 육안으로 투명한 것을 의미하는 것이며, 대체로 파장 450 nm의 광의 투과율이 공기의 값을 100%로 한 경우에 80% 이상이다.

[0068] [비유전율]

[0069] 본 발명의 고유전성 필름은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물이며, 1 kHz, 25℃에서의 비유전율이 4 이상이고, 5 이상인 것이 바람직하며, 6 이상인 것이 보다 바람직하다. 후술하는 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이 트리플루오로프로필기 등의 특정한 플루오로알킬기인 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 경화물을 이용함으로써, 비교적 용이하게 비유전율이 6 또는 7인 고유전성 필름이 설계 가능하다.

[0070] [기계적 물성]

[0071] 본 발명의 고유전성 필름을 터치 패널 등의 전자 재료, 표시 장치용 전자 부재, 특히 센서 등의 트랜스듀서 재료로서의 용도로 이용하는 경우에는, 23℃에서의 전단 저장 탄성률이 10<sup>3</sup>~10<sup>5</sup> Pa의 범위에 있는 것이 바람직하고, 1.0×10<sup>3</sup>~5.0×10<sup>4</sup> Pa의 범위에 있는 것이 보다 바람직하다.

[0072] 그 밖의 기계적 물성으로서, 본원의 실시예 등에 기재한 방법으로 정의되는 압축 잔류 변형(%)이 10% 미만인 것이 바람직하고, 5% 미만인 것이 보다 바람직하고, 4% 이하인 것이 특히 바람직하다. 아울러, 본 발명의 고유전성 필름에서는, 압축 잔류 변형(%)이 3% 미만인 재료도 설계 가능하다.

[0073] 마찬가지로, 본 발명의 고유전성 필름은 본원의 실시예 등에 기재한 방법에서 정의되는 압축률(%)이 15% 이상인 것이 바람직하고, 18% 이상인 것이 보다 바람직하고, 20% 이상인 것이 특히 바람직하다.

- [0074] [점착력]
- [0075] 본 발명의 고유전성 필름을 감압 접착제 또는 감압 접착층으로서 이용하는 경우에는, 두께 100  $\mu\text{m}$ 의 고유전성 필름의 양면에 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET) 기재(두께 50  $\mu\text{m}$ )를 붙인 시험편에 대하여, 23 $^{\circ}\text{C}$ , 습도 50%의 환경에서 수행하고, 속도 300 mm/min, 180도의 각도로 떼어 낸 경우, 그 점착력이 5 N/m 이상인 것이 바람직하고, 10 N/m 이상인 것이 보다 바람직하다. 아울러, 실용상, 본 발명의 고유전성 필름을 밀착시키는 기재 자체에 각종 처리를 기초로 하는 점착력을 부여할 수 있는 경우, 점착력이 없는 고유전성 필름을 이용할 수 있는 것은 말할 것도 없다.
- [0076] [고유전성 필름의 구조 및 제조 방법]
- [0077] 본 발명의 고유전성 필름은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지며, 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 필름이다. 이러한 평탄한 고유전성 필름은 기재 위에 얇게 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지는 프라이머 층을 형성시키고, 당해 프라이머 층 위에 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지는 평탄화 층을 형성한 구조에 의해 실현 가능하다. 또한, 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼운 상태에서 경화함으로써 평탄화 층을 형성한 구조에 의해 실현 가능하다. 또한, 이러한 평탄한 고유전성 필름은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 도공(塗工)하고, 압연 가공 후에 가열 등에 의해 필름상으로 경화시킴으로써 실현 가능하다. 아울러, 프라이머 층 및 평탄화 층을 이용하여 얻은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지는 필름을 다시 압연 가공할 수도 있으며, 박리층을 마련한 세퍼레이터 사이에서 도공 내지 경화된 필름을 다시 압연 가공할 수도 있다. 이하, 이들의 구조 및 제조 방법에 대하여 설명한다.
- [0078] [프라이머 층 및 평탄화 층을 갖는 구조 및 제조법]
- [0079] 본 발명의 고유전성 필름은 후술하는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 두께가 40  $\mu\text{m}$  이하가 되도록 도포하고, 경화시켜 프라이머 층을 얻는 공정 후, 당해 프라이머 층 위에, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 경화 후의 고유전성 필름 전체의 필름 중앙의 두께가 50~1000  $\mu\text{m}$ 가 되도록 도포하고, 경화시켜 평탄화 층을 얻는 공정을 적어도 갖는 고유전성 필름의 제조 방법에 의해 얻을 수 있다. 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물로 이루어지는 얇은 프라이머 층은 고유전성 필름 전체의 특성을 손상시키지 않고, 당해 프라이머 층 위에 균일하게 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도포할 수 있으며, 프라이머 층 없이 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 경우와 달리, 표면이 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄화 층을 형성할 수 있다. 아울러, 상기 경화성 오가노폴리실록산 조성물을, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 끼운 상태에서 특정한 막 두께가 되도록 경화함으로써 평탄화 층을 형성하는 경우에는, 프라이머 층을 얻는 공정을 반드시 가질 필요는 없다.
- [0080] 본 발명에 관한 고유전성 필름은 후술하는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상 기재, 테이프상 기재 또는 시트상 기재(이하, 「필름상 기재」라고 한다)에 도공한 후, 소정의 온도 조건하에서 가열함으로써 경화시킴으로써, 상기 기재의 표면에 형성할 수 있다. 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 이루어지는 경화층, 특히 필름상 유전층은 적층 터치스크린 또는 플랫 패널 디스플레이의 구축 및 이용에 바람직하다.
- [0081] 상기 기재는 특히 박리면을 갖는 평면상 기재이며, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 박리면 위에 도포되는 것이 바람직하다. 이러한 기재는 세퍼레이터로서 기능하므로, 기재 위에 적층된 본 발명의 고유전성 필름은 약간의 힘으로 원활하게 박리층으로부터 떼어 내어 목적으로 하는 전자 기기 등에 부착 내지 접착시킬 수 있기 때문에, 취급 작업성이 우수하다는 이점을 갖는다.
- [0082] 상기 프라이머 층 및 평탄화 층을 갖는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물은 도포량을 컨트롤하는 것만으로 소망의 두께로, 실질적으로 요철을 갖지 않는 평탄한 고유전성 필름을 설계할 수 있다는 이점이 있으며, 후술하는 압연 가공을 수행하지 않아도 직접 소망의 필름 폭 및 길이를 갖는 고유전성 필름을 효율적으로 생산할 수 있는 이점이 있다.
- [0083] 경화하여 프라이머 층을 구성하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물과 경화하여 평탄화 층을 구성하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 동일할 수도 상이할 수도 있으나, 실질적으로 조성이 동일한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 이용하는 것이 생산성의 견지에서 바람직하다. 단, 프라이머 층에 이용하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물로서, 경화 후의 두께가 40  $\mu\text{m}$ 가 되는 두

개로 기재에의 균일 도포성이 우수한 조성을 선택하고, 평탄화 층을 구성하는 경화성 오가노폴리실록산으로서, 조성 또는 폴리머 구조가 상이한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 선택할 수도 있으며, 프라이머 층의 조성 설계와 평탄화 층의 조성 설계에 따라서는, 본 발명의 보다 바람직한 실시 양태가 되는 경우가 있을 수 있다.

[0084] 기재의 종류로서 판지, 골판지, 클레이 코팅지, 폴리올레핀 라미네이트지, 특히는 폴리에틸렌 라미네이트지, 합성 수지 필름·시트, 천연 섬유포, 합성 섬유포, 인공 피혁포, 금속박이 예시된다. 특히, 합성 수지 필름·시트가 바람직하며, 합성 수지로서 폴리이미드, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 폴리염화비닐, 폴리염화비닐리덴, 폴리카보네이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 나일론이 예시된다. 특히 내열성이 요구되는 경우에는, 폴리이미드, 폴리에테르 에테르 케톤, 폴리에틸렌 나프탈레이트(PEN), 액정 폴리아릴레이트, 폴리아미드 이미드, 폴리에테르 술폰 등의 내열성 합성 수지의 필름이 바람직하다. 한편, 표시 디바이스 등 시인성이 요구되는 용도에서는, 투명 기관, 구체적으로는 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 폴리염화비닐리덴, 폴리카보네이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, PEN 등의 투명 재료가 바람직하다.

[0085] 상기 기재는 필름상 또는 시트상인 것이 바람직하다. 그 두께는 특별히 제한되지 않으나, 통상 5~300 μm 정도이다. 또한, 지지 필름과 감압 접착층의 밀착성을 향상시키기 위해, 프라이머 처리, 코로나 처리, 예칭 처리, 플라즈마 처리된 지지 필름을 이용할 수도 있다. 또한, 필름상 기재의 감압 접착층 면과 반대면에는 손상 방지, 오염 방지, 지문 부착 방지, 방현, 반사 방지, 대전 방지 등의 처리 등의 표면 처리된 것일 수도 있다.

[0086] 프라이머 층 또는 평탄화 층의 기재로의 도공 방법으로서, 그라비아 코팅, 오프셋 코팅, 오프셋 그라비아, 오프셋 전사 롤 코터 등을 이용한 롤 코팅, 리버스 롤 코팅, 에어나이프 코팅, 커튼 플로 코터 등을 이용한 커튼 코팅, 콤파 코팅, 메이어 바, 그 밖의 공지의 경화층을 형성하는 목적으로 사용되는 방법이 제한 없이 사용될 수 있다.

[0087] 본 발명의 고유전성 필름이 감압 접착제층, 특히 실질적으로 투명한 감압 접착제 필름인 경우, 당해 경화층은 박리 코팅능을 갖는 박리층을 구비한 필름 기재 위에 박리 가능한 상태로 점착한 적층체 필름으로서 취급하는 것이 바람직하다.

[0088] [압연 가공을 이용한 제조법]

[0089] 본 발명의 고유전성 필름은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포한 후, 경화 반응 전 혹은 경화 반응 후에 압연 가공을 수행함으로써도 얻을 수 있다. 압연 가공은 경화 내지 반경화 상태의 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물 또는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 반경화물에 대하여 수행할 수도 있지만, 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 압연 가공한 후, 가열 등에 의해 경화시켜 평탄하면서 균일한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물을 얻는 것이 바람직하다. 또한, 압연 가공을 수행하는 경우, 후술하는 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 도공한 적층체 전체를 압연 가공한 후, 가열 등에 의해 경화시켜 평탄하면서 균일한 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물을 얻는 것이 특히 바람직하다.

[0090] 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하는 양은 특별히 제한되는 것은 아니나, 경화 후의 필름의 두께가 50 μm 이상이고, 압연 가공이 가능한 두께인 것이 필요하다.

[0091] 압연 가공은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하고, 롤 압연 등의 공지의 압연 방법을 이용하여 수행할 수 있다. 아울러, 경화 내지 반경화 상태의 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물 또는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 반경화물을, 필요에 따라, 대략 시트상으로 성형한 후, 압연 가공을 수행할 수도 있다. 압연 가공 후의 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물의 고유전성 필름은, 필름 중앙의 두께가 50~1000 μm의 범위인 것이 필요하다. 롤 압연의 경우, 롤 사이의 틈을 조정함으로써 소망의 두께의 고유전성 필름을 설계할 수 있는 이점이 있다.

[0092] 상기한 바와 같이, 압연 가공은 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 기재 위에 도포하고, 미경화 상태에서 수행하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 원료인 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 바람직하게는 박리층을 구비한 시트상 기재 위에 도포하고, 롤 압연 등으로 압연 가공한 후에, 평탄화된 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 가열 등에 의해 경화시켜 본 발명의 고유전성 필름을 얻을 수 있다.

[0093] 압연 가공 전의 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 기재로의 도공 방법, 기재 등은 상기와 동일하며, 상기 프라이머 층 및 평탄화 층을 갖는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물에 대하여 추가로 롤 압연 등의 압

연 가공을 수행할 수도 있다.

[0094] [박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에서의 경화를 이용한 제조법]

[0095] 상기한 바와 같이, 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 통상의 방법으로 박리층을 갖는 기재 위에 도포하면, 특히 경화 후의 필름의 두께가 50 μm 이상이 되는 경우에는, 프라이머 층을 이용하지 않는 한, 도포면이 움푹 패인 불균일한 표면을 형성하기 쉽다. 그러나, 도포면에 대하여 박리층을 갖는 기재를 적용하고, 미경화의 도포면을 각각의 기재(세퍼레이터) 사이에 끼우고, 물리적으로 균일화된 평탄화 층을 형성함으로써, 평탄화된 고유전성 필름을 얻을 수 있다. 당해 방법을 이용한 경우, 상기 프라이머 층을 이용하지 않고 평탄화된 고유전성 필름을 얻을 수 있다. 아울러, 상기 평탄화 층의 형성에 있어서는, 박리층을 갖는 세퍼레이터 사이에 미경화의 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 도포되어 이루어지는 적층체를 상기 롤 압연 등의 공지의 압연 방법을 이용하여 압연 가공하는 것이 바람직하다.

[0096] [플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물]

[0097] 본 발명의 고유전성 필름은 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 경화물이며, 바람직하게는 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이  $(C_pF_{2p+1})-R-$ (R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며, p는 1~8의 범위의 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기인 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산을 적어도 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화시켜 이루어지는 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는, 본 발명의 고유전성 필름은 이하의 (A)~(C) 성분, 임의로 (D) 성분을 함유하는, 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 얻어진 것인 것이 바람직하고, 이하 각 성분에 대하여 설명한다.

[0098] 이하의 (A)~(C) 성분 및 임의의 (D) 용매를 함유하여 이루어지는 것이며, 먼저 각 성분에 대하여 설명한다.

[0099] [(A) 성분]

[0100] (A) 성분은 경화성 조성물의 주제(主劑)이며, 분자 중에 적어도 2개의 탄소수 2~12의 알케닐기를 가지고, 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이  $(C_pF_{2p+1})-R-$ (R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며, p는 1 이상 8 이하의 정수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이며, 평균 중합도가 1000 이하인 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산이다.

[0101] (A) 성분은 플루오로알킬기를 일정량 이상 갖는 동시에, 분자 중에 적어도 2개의 알케닐기를 가지므로, (B) 성분과의 부가 반응(하이드로실릴화 반응)에 의해 가교하여, 성형성, 반응 제어성 및 투명성이 우수한 동시에, 비교적 높은 비유전율을 갖는 경화물을 제공한다. 그 구조는 특별히 제한되는 것은 아니며, 직쇄상, 분기쇄상, 환상 또는  $R^3SiO_{3/2}$  단위(3관능성 실록시 단위) 또는  $SiO_2$  단위(4관능성 실록시 단위)를 필수로 하는 수지상 오가노폴리실록산일 수 있다. 또한, 1종류 또는 2종류 이상의 분자 구조 또는 평균 중합도가 상이한 오가노폴리실록산의 혼합물일 수도 있다. 그러나, 유전층으로서 응용하는 경우에, 높은 압축률 및 양호한 회복 특성을 실현하는 동시에, 낮은 점착력이 요구되는 경우에는, 상기 3관능성 실록시 단위 또는 4관능성 실록시 단위를 갖지 않는 것이 바람직하다. 특히 바람직하게는, (A) 성분은 직쇄상 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산이다.

[0102] (A) 성분은 그의 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상, 바람직하게는 20몰% 이상, 보다 바람직하게는 40몰% 이상이  $(C_pF_{2p+1})-R-$ (R은 탄소 원자수 1~10의 알킬렌기이며, p는 1 이상 8 이하의 정수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이다. 플루오로알킬기의 함유량이 상기 하한 미만이면, 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 얻어지는 경화물의 비유전율이 저하되기 때문에 적합하지 않다. 아울러,  $(C_pF_{2p+1})-R-$ 로 표시되는 플루오로알킬기에서의 불소 원자의 함유량이 높은, 즉 p의 값이 큰, 예를 들어  $p \geq 4$ 이고, 또한 R인 알킬렌기의 탄소 원자수가 적은 경우에는, 상기 플루오로알킬기의 함유량이 상기 범위의 하한에 가까운 값이어도 본 발명의 기술적 효과를 나타낼 수 있다. 특히, (A) 성분 중의 불소 원자의 함유율은 10질량% 이상인 것이 바람직하다. 아울러, 플루오로알킬기로서 트리플루오로프로필기를 선택하는 경우, (A) 성분 중의 규소 원자 상의 모든 치환기의 40몰% 이상, 특히 50몰% 이상으로 하는 것이 본 발명의 가장 바람직한 형태 중 하나이다.

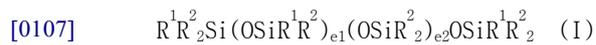
[0103]  $(C_pF_{2p+1})-R-$ 로 표시되는 플루오로알킬기는 본 발명의 (A) 성분에서의 필수 관능기이며, (B) 성분에서도 바람직한 관능기이다. 이러한 플루오로알킬기는 비유전율이 우수한 경화물을 제공하는 동시에, 각 성분이 불소 원자를 가짐으로써 각 성분의 상용성을 개선하고, 투명성이 우수한 경화물을 제공한다. 이러한 플루오로알킬기의 구체예로서는, 트리플루오로프로필기, 펜타플루오로부틸기, 헵타플루오로펜틸기, 노나플루오로헥실기, 운데카플루오로헵틸기, 트리데카플루오로옥틸기, 펜타데카플루오로노닐기, 헵타플루오로데실기이다. 그 중에서는, 유전

특성, 경제성, 제조 용이성, 얻어지는 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 성형 가공성의 관점에서 p=1인 기, 즉 트리플루오로프로필기가 바람직한 기이다.

[0104] (A) 성분은 분자 중에 적어도 2개의 탄소수 2~12의 알케닐기를 갖는다. 탄소수 2~12의 알케닐기로서는 경제성, 반응성의 관점에서 비닐기, 알릴기, 헥세닐기, 옥테닐기가 바람직하고, 비닐기 및 헥세닐기가 보다 바람직하게 사용된다. (A) 성분 중의 그 밖의 규소 원자 결합 관능기는 특별히 제한되는 것은 아니나, 탄소수 1~12의 알킬기, 탄소수 6~20의 아릴기, 탄소수 7~20의 아르알킬기, 수산기 혹은 탄소수 1~6의 알콕시기를 들 수 있다. 탄소수 1~12의 알킬기로서는 경제성, 내열성을 고려하면 메틸기가 바람직하다. 탄소수 6~20의 아릴기로서는 경제성의 관점에서 페닐기, 메틸페닐(톨릴)기, 나프틸기가 바람직하다. 탄소수 7~20의 아르알킬기로서는 벤질기, 페네틸기가 바람직하게 사용된다. 또한, 탄소수 1~6의 알콕시기로서는 메톡시기, 에톡시기, n-프로폭시기가 바람직하다. 아울러, (A) 성분 중의 규소 원자 상의 모든 치환기의 일정량 이상은 상기 플루오로알킬기이며, 분자 중에 탄소수 2~12의 알케닐기를 2 이상 갖는 것이지만, 그 밖의 규소 원자 결합 관능기는 메틸기, 페닐기 또는 수산기인 것이 바람직하고, 메틸기 및 페닐기로부터 선택되는 것이 특히 바람직하다.

[0105] 바람직하게는, (A) 성분은 하기 구조식 (I)로 표시되는 일정량 이상의 플루오로알킬기를 가지며, 적어도 2개의 알케닐기를 갖는 1종류 이상의 직쇄상 오가노폴리실록산이다. 이러한 (A) 성분을 이용하여 얻어진 경화물은 점착력이 낮고, 높은 압축률 및 양호한 회복 특성을 나타낸다. 또한, 예를 들어 0℃ 이하의 저온하에서도 상기 물성의 변화가 적기 때문에, 터치 패널 등의 표시 디바이스의 유전층으로서 응용한 경우, 저압력하에서도 압력 응답성이 우수하고, 폭 넓은 온도 영역에서 안정된 높은 센서 감도를 실현할 수 있다.

[0106] 구조식:



[0108] 식 중, R<sup>1</sup>로 표시되는 치환기는 동일 또는 독립적으로 상기 플루오로알킬기 또는 탄소수 2~12의 알케닐기이며, 이들의 구체에는 상기와 동일하다. 또한, R<sup>2</sup>로 표시되는 치환기는 동일 또는 독립적으로 탄소수 1~12의 알킬기, 탄소수 6~20의 아릴기, 탄소수 7~20의 아르알킬기, 수산기 혹은 탄소수 1~6의 알콕시기이고, 또한 모든 R<sup>1</sup> 중, 적어도 2개는 탄소수 2~12의 알케닐기이다. 바람직하게는, (A) 성분 중의 탄소수 2~12의 알케닐기의 함유량은 0.01~1.00질량%, 0.02~0.25질량%일 수 있으며, 상기 플루오로알킬기 및 탄소수 2~12의 알케닐기 이외의 기는 메틸기, 페닐기 또는 수산기인 것이 바람직하고, 메틸기 또는 페닐기가 특히 바람직하다.

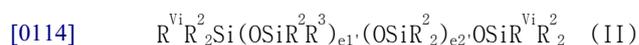
[0109] 아울러, 모든 규소 원자 상의 모든 치환기(R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>)의 10몰% 이상, 바람직하게는 20몰% 이상, 보다 바람직하게는 40몰% 이상이 상기 플루오로알킬기, 바람직하게는 트리플루오로프로필기이다. 플루오로알킬기의 함유량이 상기 하한 미만이면, 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 얻어지는 경화물의 비유전율이 저하되기 때문에 적합하지 않다.

[0110] 식 중, e1 및 e2의 값은 (A) 성분 중의 각 실록산 단위의 평균 중합도이며, e1은 양의 수이고, e2는 0 또는 양의 수이고, 또한 5<e1+e2+2<500을 만족한다. 아울러, 이들 값은 평균 중합도이며, (A) 성분이 2 이상의 성분으로 이루어지는 혼합물인 경우에는, 혼합물 전체로서 (A) 성분의 평균 중합도 e1+e2+2가 상기 범위가 된다. (A) 성분인 오가노폴리실록산의 중합도는 <sup>29</sup>Si NMR을 이용한 피크 강도의 적분비에 의해 결정 가능하며, 평균 중합도의 바람직한 범위에 대해서는 상기와 동일하다.

[0111] 본 발명의 (A) 성분은 상기 요건을 만족하는 1종의 오가노폴리실록산일 수도 있고, 또한 적어도 2종의 오가노폴리실록산의 혼합물일 수도 있다. 적어도 2종의 오가노폴리실록산인 경우, 그의 혼합물의 평균 중합도가 상기 범위일 수 있으며, 각각의 오가노폴리실록산이 분자 중에 2 이상의 탄소수 2~12의 알케닐기를 갖는 동시에, 규소 원자 상의 모든 치환기의 10몰% 이상이 상기 플루오로알킬기인 오가노폴리실록산인 것이 보다 바람직하다.

[0112] 본 발명의 (A) 성분에 있어서, 상기 플루오로알킬기는 측쇄에 있어도 분자쇄 말단에 있어도 무방하나, 특히 바람직하게는, 하기 구조식 (II)로 표시되는 분자쇄 양 말단에 탄소수 2~12의 알케닐기를 갖는 플루오로알킬기 함유 오가노폴리실록산 코폴리머이다.

[0113] 구조식:

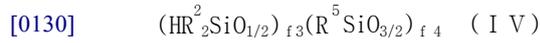
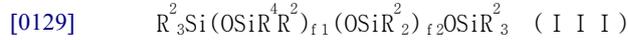


- [0115] 식 중,  $R^{Vi}$ 는 탄소수 2~12의 알케닐기이며, 상기와 동일한 기가 예시된다.
- [0116]  $R^2$ 는 상기와 동일한 기이며,  $R^3$ 은  $(C_pF_{2p+1})-R$ ( $R$ 은 상기와 동일한 기이며,  $p$ 는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이고, 상기와 동일한 기가 예시된다. 또한, 상기 구조에서,  $e1'$  및  $e2'$ 는  $5 < e1'+e2'+2 < 500$ 을 만족하는 수이며,  $(e1')/(e1'+e2')$ 의 값은 0.5~1.0의 범위이다. 아울러, 상기 범위에 있어서, 모든  $R^{Vi}$ ,  $R^2$  및  $R^3$  중 10몰% 이상은 상기 플루오로알킬기( $R^3$ )라는 조건은 자동적으로 충족된다. 즉,  $e1'+e2'+2 > 5$  및  $(e1')/(e1'+e2')$ 가 0.5 이상이므로,  $e1'+e2'$ 가 3보다 큰 동시에,  $e1'$ 은  $e2'$  이상의 값이므로,  $[R^3]=e1'/(2 \times e1'+2 \times e2'+6) \times 100$ 몰%의 값은  $1.5/12 \times 100=12.50$ 몰%보다 크다.
- [0117] 바람직하게는,  $R^{Vi}$ 는 비닐기 또는 헥세닐기이며,  $R^2$ 는 메틸기, 페닐기 또는 수산기이며, 상기 플루오로알킬기는 바람직하게는 트리플루오로프로필기이다.
- [0118] 식 중,  $(e1')/(e1'+e2')$ 가 0.5 이상인 것은, 코폴리머를 구성하는,  $OSiR^2R^3$ 로 표시되는 플루오로알킬기를 갖는 디실록산 단위의 수가 플루오로알킬기를 갖지 않는 디실록산 단위의 수 이상인 것을 의미한다.  $(e1')/(e1'+e2')$ 의 값은 0.6~1.0의 범위인 것이 바람직하고, 0.65~1.0의 범위인 것이 보다 바람직하다. 특히 바람직하게는,  $e2'$ 가 0이고, 상기 값은 1.0이다. 아울러, (A) 성분인 오가노폴리실록산의 중합도는  $^{29}Si$  NMR을 이용한 피크 강도의 적분비에 의해 결정 가능하며, 평균 중합도의 바람직한 범위에 대해서는 상기와 동일하다.
- [0119] 본 발명의 (A) 성분의 구체예로서는 양 말단 트리메틸실릴-폴리디메틸메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 트리메틸실릴-폴리메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리디메틸메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리디메틸메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리디메틸메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸페닐실릴-폴리디메틸메틸비닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리디메틸메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리디메틸메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리메틸비닐메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리디메틸메틸비닐메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리메틸 트리플루오로프로필실록산 등을 들 수 있다. 양 말단 디메틸비닐실릴-폴리디메틸메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체가 가장 바람직하다.
- [0120] 본 발명의 (A) 성분은, 그의 사용량은 (A)~(C) 성분의 합(전체를 100질량%로 한다)에 대하여 20~99질량%의 양이며, 바람직하게는 30~80질량%, 보다 바람직하게는 40~70질량%이다. 상기 범위의 상한 이하이면, 본 조성물을 경화하여 이루어지는 경화물의 역학 강도가 충분히 높고, 한편 상기 범위의 하한 이상이면, 바람직하게 당해 경화물이 저점착성의 탄성 겔층으로서 기능하기 때문이다.
- [0121] [(B) 성분]
- [0122] (B) 성분은 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 가교제이며, 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산이다. 당해 오가노하이드로젠 폴리실록산은 불소 원자를 가질 수도 갖지 않을 수도 있으나, 불소 함유기를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산인 것이 바람직하다.
- [0123] (B) 성분인 오가노하이드로젠 폴리실록산의 분자 구조는 특별히 한정되지 않으며, 직쇄상, 환상, 수지상, 및 일부 분기를 갖는 직쇄상 중 어느 하나일 수 있으며, T 단위(즉,  $YSiO_{3/2}$ , Y는 규소 원자 결합 수소 원자, 1가 유기기(불소 원자 함유 유기기를 포함한다), 수산기 또는 알콕시기) 또는 Q 단위(즉,  $SiO_{4/2}$ )를 갖는 것일 수 있다. 또한, 점도도 특별히 한정되지 않으며, 취급의 용이함으로부터, 25℃에서의 점도는, JIS K7117-1에 준거하여 B형 점도계를 이용하여 측정할 경우에, 1~100,000 mPa·s의 범위인 것이 바람직하다. (A) 성분과의 혼합 용이성의 관점에서, 상온에서 액상인 것이 바람직하고, 규소 원자수 2~300의 오가노하이드로젠 폴리실록산이 특히 바람직하다.

- [0124] 규소 결합 수소 원자를 갖는 실록산 단위에 대해서도 제한은 없으며,  $(R_2HSiO_{1/2})$  단위,  $(RHSiO_{2/2})$  단위 및  $(HSiO_{3/2})$  단위 중 어느 단위여도 무방하나, 분자 중에 적어도 2개의 규소 결합 수소 원자를 가질 필요가 있다. 여기서, R은 오가노폴리실록산(A)에서 사용 가능한 동일 또는 상이한 탄소수 1-12의 알킬기, 탄소수 6-20의 아릴기, 탄소수 7-20의 아르알킬기, 수산기, 탄소수 1-6의 알콕시기, 및  $(C_pF_{2p+1})-R$  (R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이다.
- [0125] (A) 성분과의 친화성 및 본 발명의 경화성 조성물을 경화하여 얻어지는 경화물의 비유전율의 향상의 관점에서, (B) 성분인 오가노하이드로젠 폴리실록산은 분자 중에 불소 함유기, 바람직하게는 상기 플루오로알킬기, 특히 트리플루오로프로필기를 갖는 것이 바람직하다. 플루오로알킬기의 함유량은 특별히 한정되는 것이 아니나, 1분자 중에, 전체 유기기 중 바람직하게는 5-75몰%, 보다 바람직하게는 5-70몰%, 더욱더 바람직하게는 10-60몰%의 불소 원자 함유 유기기를 가질 수 있다.
- [0126] 바람직한 (B) 성분으로서는 M 단위(즉,  $R^6_3SiO_{1/2}$ ) 및 T 단위( $R^6SiO_{3/2}$ )로 이루어지는 레진상 오가노폴리실록산, M 단위 및 D 단위( $R^6_2SiO_{2/2}$ )로 이루어지는 선상 오가노폴리실록산, 및 M 단위, D 단위 및 T 단위 혹은 Q 단위로 이루어지는 레진상 오가노폴리실록산을 들 수 있다. M 단위 및 T 단위로 이루어지는 오가노폴리실록산으로서는, 예를 들어 M 단위의  $R^6$ 의 일부 또는 전부가 수소 원자이고, T 단위의  $R^6$ 의 일부 또는 전부가 불소 원자 함유 유기기, 예를 들어 3, 3, 3-트리플루오로프로필기를 갖는 것을 들 수 있다. M 단위 및 D 단위로 이루어지는 오가노폴리실록산으로서는, 예를 들어 M 단위의  $R^6$ 의 적어도 일부가 수소 원자이고, D 단위의  $R^6$ 의 일부 또는 전부가 상기 플루오로알킬기, 특히 3, 3, 3-트리플루오로프로필기를 갖는 것을 들 수 있다. M 단위, D 단위 및 T 단위로 이루어지는 오가노폴리실록산으로서는, M 단위의  $R^6$ 의 일부 또는 전부가 수소 원자이고, D 단위 및 T 단위의  $R^1$ 의 일부 또는 전부가 상기 플루오로알킬기, 예를 들어 3, 3, 3-트리플루오로프로필기인 것을 들 수 있다.
- [0127] 구체예로서는, 양 말단 트리메틸실릴-폴리디메틸메틸하이드로젠실록산 공중합체, 양 말단 트리메틸실릴-폴리메틸하이드로젠실록산, 양 말단 트리메틸실릴-폴리디메틸메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 트리메틸실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리디메틸메틸하이드로젠실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리디메틸실록산, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리디메틸메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리메틸트리플루오로프로필실록산, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸페닐실릴-폴리메틸하이드로젠실록산, 양 말단 디메틸페닐실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸페닐실릴-폴리디메틸메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸하이드로젠실릴-폴리메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리메틸하이드로젠메틸페닐실록산 공중합체, 양 말단 하이드록시디메틸실릴-폴리메틸하이드로젠메틸페닐메틸 트리플루오로프로필실록산 공중합체, 양 말단 디메틸트리플루오로프로필실릴-폴리메틸하이드로젠실록산, 디메틸메틸하이드로젠사이클로폴리실록산, 메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필사이클로폴리실록산, 디메틸메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필사이클로폴리실록산, 메틸페닐메틸하이드로젠메틸 트리플루오로프로필사이클로폴리실록산, 1, 1, 3, 5, 5-펜타메틸-3-트리플루오로프로필트리실록산, 트리스(디메틸실록시실릴)트리플루오로프로필실란,  $(Me_3SiO_{1/2})$  단위,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위 및  $(SiO_{4/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위 및  $(SiO_{4/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_3SiO_{1/2})$  단위,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위 및  $(TfpSiO_{3/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위 및  $(TfpSiO_{3/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_3SiO_{1/2})$  단위,  $(MeHSiO_{2/2})$  단위 및  $(TfpSiO_{3/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위,  $(MeHSiO_{2/2})$  단위 및  $(TfpSiO_{3/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,  $(Me_2HSiO_{1/2})$  단위,  $(TfpSiO_{3/2})$  단위 및  $(MeSiO_{3/2})$  단위로 이루어지는 폴리실록산,

(Me<sub>2</sub>HSiO<sub>1/2</sub>) 단위, (TfpSiO<sub>3/2</sub>) 단위 및 (PhSiO<sub>3/2</sub>) 단위로 이루어지는 폴리실록산, (Me<sub>2</sub>HSiO<sub>1/2</sub>) 단위 및 (PhSiO<sub>3/2</sub>) 단위로 이루어지는 폴리실록산, (Me<sub>2</sub>HSiO<sub>1/2</sub>) 단위, (TfpSiO<sub>3/2</sub>) 단위 및 (SiO<sub>4/2</sub>) 단위로 이루어지는 폴리실록산 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 단독으로 이용할 수도 있고, 또한 적어도 2종의 오가노폴리실록산의 혼합물일 수도 있다. 여기서, Me는 메틸기를, Ph는 페닐기를, Tfp는 트리플루오로프로필기를 나타낸다.

[0128] 본 발명에 있어서, 바람직한 (B) 성분은 직쇄상 또는 T 단위를 갖는 오가노하이드로젠 폴리실록산이며, 특히 하기 평균 단위식 (III) 또는 (IV)로 표시되는 오가노하이드로젠 폴리실록산이 예시된다.



[0131] 식 (III) 중, R<sup>4</sup>는 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기 또는 규소 원자 결합 수소 원자이며, 플루오로알킬기로서는 상기와 동일한 기가 예시되고, 바람직하게는 트리플루오로프로필기이다. R<sup>2</sup>는 상기와 동일한 기이며, 메틸기, 페닐기 또는 수산기이다. 또한, 식 (III) 중, 모든 R<sup>4</sup> 중, 적어도 2개는 규소 원자 결합 수소 원자이고, f1 및 f2는 0 또는 양의 수이고, 5<f1+f2<148을 만족하는 수이다. 보다 바람직하게는, R<sup>2</sup>는 메틸기이고, f1은 10<f1+f2<100의 범위의 수이며, 모든 R<sup>4</sup> 중, 적어도 5 몰% 이상이 상기 플루오로알킬기이고, 나머지 R<sup>4</sup>가 규소 원자 결합 수소 원자인 것이 바람직하다.

[0132] 식 (IV) 중, R<sup>5</sup>는 (C<sub>p</sub>F<sub>2p+1</sub>)-R-(R은 상기와 동일한 기이며, p는 상기와 동일한 수이다)로 표시되는 플루오로알킬기이며, R<sup>2</sup>는 상기와 동일한 기이고, 또한 f3 및 f4는 양의 수이고, 또한 f3+f4는 식 (IV)로 표시되는 오가노하이드로젠 폴리실록산의 중량 평균 분자량이 400~10000이 되는 범위의 수이다.

[0133] 본 발명의 (B) 성분은 공지의 제조 방법, 예를 들어 불소 원자 함유 유기기 혹은 비함유 유기기 및/또는 반응성 관능기를 갖는 알콕시실란류, 클로로실란류 또는 실록산류를 산 또는 염기 화합물 혹은 그 양자의 존재하 혹은 비존재하에서, 가수 분해 및 축합 반응을 적어도 포함하는 반응이나 개환 중합을 포함하는 반응으로 제조할 수 있다. 특히, 플루오로알킬기를 갖는 (B) 성분은 플루오로알킬기를 갖는 알콕시실란류를 원료로서 이용하는 가수 분해 및 축합 반응을 적어도 포함하는 방법이나 개환 중합 반응을 포함하는 방법으로 제조할 수 있다.

[0134] 본 발명의 조성물에서의 (B) 성분의 사용량은, (A) 성분 중의 알케닐기의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~3.0몰이 되는 양이다. 또한, 특히 (A) 성분이 본질적으로 직쇄상인 경우, (A) 성분 중의 알케닐기의 합계량 1몰에 대하여 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.1~1.0몰이 되는 양이 바람직하다. (B) 성분의 사용량이 상기 하한 미만이면, 본 조성물의 경화가 불충분해지는 경우가 있다. 한편, (B) 성분의 사용량이 상기 상한을 초과하면, 본 발명의 조성물을 경화시킨 경우에 탄성 겔을 얻을 수 없는 경우가 있으며, 점착력이 낮고, 높은 압축률 및 양호한 회복 특성을 나타내는 겔상 경화물 또는 엘라스토머상 경화물을 얻을 수 없는 경우가 있다. 보다 바람직한 (B) 성분의 사용량은, 본질적으로 직쇄상인 (A) 성분 중의 알케닐기의 합계량 1몰에 대하여, 본 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자가 0.2~0.80몰, 0.25~0.75몰, 더욱더 바람직하게는 0.35~0.75몰이 되는 양이다.

[0135] [(C) 성분]

[0136] (C) 성분인 하이드로실릴화 반응용 촉매는 하이드로실릴화 반응을 촉진할 수 있는 한 특정한 것으로 한정되지 않는다. 하이드로실릴화 반응 촉매로서 지금까지 많은 금속 및 화합물이 알려져 있으며, 이들 중에서 적절히 선택하여 본 발명에 이용할 수 있다. 하이드로실릴화 반응 촉매의 예로서, 구체적으로는 백금계 촉매, 팔라듐계 촉매, 로듐계 촉매가 예시되며, 바람직하게는 백금계 촉매이다. 이 백금계 촉매로서, 염화백금산, 염화백금산의 알코올 용액, 백금의 카보닐 착체, 백금의 알케닐실록산 착체, 백금의 올레핀 착체가 예시되며, 특히 (A) 성분과의 상용성이 양호하기 때문에, 백금의 알케닐실록산 착체인 것이 바람직하다. 이 백금의 알케닐실록산 착체에 있어서, 알케닐실록산으로서, 예를 들어 1, 3-디비닐테트라메틸디실록산, 1, 1, 3, 3-테트라비닐디메틸디실록산을 들 수 있다. 아울러, 하이드로실릴화 반응을 촉진하는 촉매로서는 철, 루테튬, 철/코발트 등의 비백금계 금속 촉매를 이용할 수도 있다.

[0137] 하이드로실릴화 반응용 촉매의 사용량은 유효량이며, 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 경화를 촉진

하는 양이면 특별히 한정되지 않는다. 구체적으로는, (A)~(C) 성분의 합(전체를 100질량%로 한다)에 대하여, 이 촉매 중의 금속 원자가 질량 단위로 0.01~1,000 ppm, 바람직하게는 (C) 성분 중의 백금 금속 원자가 0.1~500 ppm의 범위 내가 되는 양이다. 이는, (C) 성분의 함유량이 상기 범위의 하한 미만이면 경화가 불충분해지는 경우가 있으며, 상기 범위의 상한을 초과하면, 비경제적인 외에 얻어지는 경화물의 착색 등, 투명성에 악영향을 끼치는 경우가 있다.

[0138] [(D) 용매]

[0139] 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 그대로 경화 반응에 제공할 수 있으나, 한편 당해 조성물이 고형상인 경우나 점도(粘稠) 액상인 경우에는 그 혼화성 및 취급성을 향상시키기 위해, 필요에 따라, 유기 용매를 사용할 수도 있다. 특히, 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 필름상으로 도공하는 경우, 전체 점도가 100~50,000 mPa·s가 되는 범위로 용매를 이용하여 점도 조절을 하는 것이 바람직하며, 용매로 희석하는 경우, 상기 (A)~(C) 성분의 합(100질량부)에 대하여 0~2000질량부의 범위로 이용할 수 있다. 즉, 본 발명 조성물에 있어서, (D) 용매는 0질량부일 수도 있으며, 바람직하다. 특히, 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 저중합도의 폴리머를 선택하고 있기 때문에, 무용매로 하는 설계가 가능하고, 경화하여 얻어지는 필름 중에 불소계 용매, 유기 용매 등이 잔류하지 않아, 환경 부하의 문제 및 전자 디바이스에 대한 용매의 영향을 해소할 수 있는 이점이 있다.

[0140] 여기서 사용하는 유기 용매로서는, 조성물 중의 전체 구성 성분 또는 일부 구성 성분을 용해시킬 수 있는 화합물이면 그 종류가 특별히 한정되지 않으며, 비점이 80℃ 이상 200℃ 미만인 것이 바람직하게 사용된다. 예를 들어, i-프로필 알코올, t-부틸 알코올, 사이클로헥산올, 사이클로헥사논, 메틸 에틸 케톤, 메틸 이소부틸 케톤, 톨루엔, 크실렌, 메시틸렌, 1, 4-디옥산, 디부틸 에테르, 아니솔, 4-메틸아니솔, 에틸벤젠, 에톡시벤젠, 에틸렌 글리콜, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르, 에틸렌 글리콜 디에틸 에테르, 2-메톡시에탄올(에틸린 글리콜 모노메틸 에테르), 디에틸렌 글리콜 디메틸 에테르, 디에틸렌 글리콜 모노메틸 에테르, 1-메톡시-2-프로필 아세테이트, 1-에톡시-2-프로필 아세테이트, 옥타메틸사이클로테트라실록산 및 헥사메틸디실록산 등의 비할로젠계 용매, 트리플루오로메틸벤젠, 1, 2-비스(트리플루오로메틸)벤젠, 1, 3-비스(트리플루오로메틸)벤젠, 1, 4-비스(트리플루오로메틸)벤젠, 트리플루오로메틸 클로로벤젠, 트리플루오로메틸 플루오로벤젠, 하이드로플루오로 에테르 등의 할로젠계 용매를 들 수 있다. 이들 유기 용매는 단독으로 이용할 수도 있고, 2종 이상을 혼합하여 사용할 수도 있다. 경화성 조성물 중의 플루오로알킬기 함유량이 높을수록 상기 할로젠계 용매의 사용 비율을 높일 필요가 있다.

[0141] 여기서 사용하는 유기 용매의 양은 상기 (A)~(C) 성분의 합을 100질량부로 했을 때, 0~2,000질량부의 범위가 바람직하고, 5~500질량부, 10~300질량부가 보다 바람직하다. 아울러, 본 발명의 고유전성 필름의 용도에 따라 유기 용매의 양은 실질적으로 0질량부이며, 무용매로 하는 것이 바람직하다.

[0142] 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 25℃에서의 점도는 특별히 한정되지 않으나, 바람직하게는 100~100,000 mPa·s의 범위 내, 더욱더 바람직하게는 300~10,000 mPa·s, 특히 바람직하게는 1,000~8,000 mPa·s의 범위 내이다. 바람직한 점도 범위로 설정하는 목적으로, 상기 유기 용매의 사용량을 조정하는 것도 가능하다.

[0143] 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물에는 상기 성분 외에, 본 발명의 목적을 해치지 않는 한, 필요에 따라, 이들 이외의 성분을 첨가 배합할 수 있다. 다른 성분으로서, 하이드로실릴화 반응 억제제, 이형제, 절연성 첨가제, 접착성 향상제, 내열성 향상제, 충전제, 안료 그 밖의 종래 공지의 각종 첨가제가 예시된다. 예를 들어, 전체적인 점도 조정이나 유전성 향상 등의 기능성 개선을 목적으로 하여 무기 충전제를 배합할 수도 있다.

[0144] 하이드로실릴화 반응 억제제는 (A) 성분 및 (B) 성분 사이에서 일어나는 가교 반응을 억제하고, 상온에서의 가사 시간(可使時間)을 연장하여 보존 안정성을 향상하기 위해 배합하는 것이다. 따라서, 본 발명의 경화성 조성물에 있어서, 실용상 필연적으로 배합되는 성분이다.

[0145] 하이드로실릴화 반응 억제제로서, 아세틸렌계 화합물, 엔인 화합물, 유기 질소 화합물, 유기 인 화합물, 옥심 화합물이 예시된다. 구체적으로는, 3-메틸-1-부틴-3-올, 3, 5-디메틸-1-헥신-3-올, 3-메틸-1-펜틴-3-올, 1-에틸닐-1-사이클로헥산올, 페닐부틴올 등의 알킨 알코올; 3-메틸-3-펜텐-1-인, 3, 5-디메틸-1-헥신-3-인 등의 엔인 화합물; 1, 3, 5, 7-테트라메틸-1, 3, 5, 7-테트라비닐사이클로테트라실록산, 1, 3, 5, 7-테트라메틸-1, 3, 5, 7-테트라헥세닐사이클로테트라실록산 등의 메틸알케닐사이클로실록산; 벤조트리아졸이 예시된다.

- [0146] 하이드로실릴화 반응 억제제의 배합량은 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 상온에서의 가사 시간을 연장하여 보존 안정성을 향상하는 데 유효한 양이다. 통상, 성분 (A) 100질량%당 0.001~5질량%의 범위 내이며, 바람직하게는 0.01~2질량%의 범위 내이지만, 본 성분의 종류, 백금계 촉매의 성능과 함유량, (A) 성분 중의 알케닐기 양, (B) 성분 중의 규소 원자 결합 수소 원자량 등에 따라 적절히 선정할 수 있다.
- [0147] 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 박막상으로 경화하여 얻어지는 필름상 또는 시트상 경화물은 트랜스듀서를 구성하는 전기 활성 필름(유전층 또는 전극층)에 바람직하게 이용할 수 있는 것이지만, 박막 형성 시에 경화층의 이형성이 나쁘면, 특히 고속으로 유전성 필름을 제조한 경우에 이형에 기인하여 유전성 필름이 파손되는 경우가 있다. 또한, 터치 패널 등에 이용하는 유전층으로서는, 저압하에서의 감도 향상을 위해 접착성의 저감이 요구되는 경우가 있다. 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 필름에 데미지를 주지 않고 필름의 제조 속도를 향상시킬 수 있는 동시에, 그 밖의 이형제의 첨가에 의해 더욱더 접착성을 저감할 수 있는 경우가 있다.
- [0148] 본 발명에 관한 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 적용 가능한 이형성 향상 첨가제(=이형제)로서는, 예를 들어 카복실산계 이형제, 에스테르계 이형제, 에테르계 이형제, 케톤계 이형제, 알코올계 이형제 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 단독으로 이용할 수도 있고, 2종 이상을 조합하여 이용할 수도 있다. 또한, 상기 이형제로서는, 규소 원자를 포함하지 않는 것, 규소 원자를 포함하는 것 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다. 이들의 구체예는 특허문헌 3(국제 특허 공개공보 제2014-105959호)과 동일하다.
- [0149] 절연 파괴 특성 향상제는 전기 절연성 향상제인 것이 바람직하며, 알루미늄 또는 마그네슘의 수산화물 또는 염, 점토 광물 및 이들의 혼합물, 구체적으로는 규산알루미늄, 황산알루미늄, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 소성 클레이, 몬모릴로나이트, 하이드로탈사이트, 탈크 및 이들의 혼합물로 이루어지는 군으로부터 선택할 수 있다. 또한, 당해 절연성 향상제는 공지의 표면 처리 방법으로 처리되어 있을 수도 있다. 이들의 구체예는 특허문헌 3(국제 특허 공개공보 제2014-105959호)과 동일하다.
- [0150] 접착성 향상제는 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물이 경화 도중에 접촉하고 있는 기재에 대한 접착성 향상을 위한 것이다. 당해 조성물의 경화물인 유전층을 재박리하지 않는 경우에 유효한 첨가제이다. 접착성 향상제로서, 비닐트리에톡시실란, 알릴트리에톡시실란, 알릴트리에톡시실란, 3-글리시독시프로필트리에톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필트리에톡시실란 등의 유기 관능성 알콕시실란 화합물, 그의 실록산 유도체, 특히 불소 함유 유기기로 치환된 쇄상 또는 삼차원 수지상 실록산 유도체가 예시된다. 아울러, 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물에 대하여 저접착성이 요구되는 경우에는, 접착성 향상제를 첨가하지 않는 것이 바람직하다.
- [0151] 그 밖의 임의 성분으로서 본 발명의 기술적 효과를 해치지 않는 한, 페놀계, 퀴논계, 아민계, 인계, 포스파이트계, 황계, 티오에테르계 등의 산화 방지제; 트리아졸계, 벤조페논계 등의 광안정제; 인산 에스테르계, 할로겐계, 인계, 안티몬계 등의 난연제; 양이온계 계면활성제, 음이온계 계면활성제, 비이온계 계면활성제 등으로 이루어지는 1종류 이상의 대전방지제; 염료, 안료 등이 예시된다.
- [0152] 본 발명에 관한 조성물에 있어서, 충전제는 소망에 따라 이용할 수도, 이용하지 않을 수도 있다. 충전제를 이용하는 경우에는 무기 충전제 및 유기 충전제 중 어느 하나 또는 둘 다를 이용할 수 있다. 이용하는 충전제의 종류는 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 고유전성 충전제, 도전성 충전제, 절연성 충전제 및 보강성 충전제를 들 수 있으며, 이들의 1종 이상을 이용할 수 있다. 특히 본 발명의 조성물에는, 그 투명성, 도공성 및 취급 작업성을 해치지 않는 범위에서 점도의 조정 또는 기능성의 부여를 목적으로 하여, 고유전성 충전제, 도전성 충전제, 절연성 충전제 및 보강성 충전제로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 충전제를 함유할 수 있다. 충전제의 일부 또는 전부는 1종류 이상의 표면 처리제에 의해 표면 처리되어 있을 수도 있다.
- [0153] 충전제는 1종류 또는 2종류 이상일 수 있으며, 그 형상은 특별히 한정되는 것은 아니나, 입자상, 판상, 침상, 섬유상 등의 임의 형상의 것을 이용할 수 있다. 필러의 형상이 입자인 경우, 필러의 입자 지름은 특별히 한정되는 것은 아니나, 예를 들어 레이저 광 회절법으로 측정된 경우, 그의 체적 평균 입자 지름은, 예를 들어 0.001~500  $\mu\text{m}$ 의 범위로 할 수 있다. 또한, 필러의 사용 목적에 따라, 필러의 체적 평균 입자 지름은 300  $\mu\text{m}$  이하, 200  $\mu\text{m}$  이하, 100  $\mu\text{m}$  이하, 10  $\mu\text{m}$  이하 혹은 0.01  $\mu\text{m}$  이상, 0.1  $\mu\text{m}$  이상, 1  $\mu\text{m}$  이상으로 할 수 있다. 필러의 형상이 판상, 침상, 섬유상 등의 이방성인 경우, 필러의 종횡비는 1.5 이상, 5 이상 또는 10 이상일 수 있다. 체적 평균 입자 지름이 0.01  $\mu\text{m}$  이하이고, 또한 최대 입자의 입자 지름이 0.02  $\mu\text{m}$  이하인 미립

자를 이용하면, 실질적으로 투명성이 높은 경화물, 특히 유전층 필름을 제조할 수 있다.

- [0154] 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 상기 (A)~(C) 성분을 균일하게 혼합함으로써, 또한 필요에 따라, 그 밖의 임의 성분을 첨가하고 균일하게 혼합함으로써 조절할 수 있다. 각종 교반기 혹은 혼련기를 이용하여 상온에서 혼합할 수 있으나, 혼합 중에 경화하지 않는 성분의 조합이라면, 가열하에서 혼합할 수도 있다.
- [0155] 혼합 중에 경화하지 않으면, 각 성분의 배합 순서는 특별히 제한되는 것은 아니다. 혼합 후 즉시 사용하지 않을 때는, (B) 성분과 (C) 성분이 동일한 용기 내에 존재하지 않도록 복수의 용기에 나누어 보관해 두고, 사용 직전에 전체 용기 내의 성분을 혼합하는 것이 바람직하다.
- [0156] 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물의 경화 반응은 통상 당해 조성물을 가열 혹은 활성 에너지선에 노출시킴으로써 달성된다. 열에 의한 경화 반응 온도는 특별히 한정되지 않으나, 50℃ 이상 200℃ 이하가 바람직하고, 60℃ 이상 200℃ 이하가 보다 바람직하고, 80℃ 이상 180℃ 이하가 더욱더 바람직하다. 또한, 경화 반응에 걸리는 시간은 상기 (A), (B), (C) 성분의 구조에 의존하지만, 통상 1초 이상 3시간 이하이다. 일반적으로는, 90~180℃의 범위 내에서 10초~30분 유지함으로써 경화물을 얻을 수 있다.
- [0157] 경화 반응에 사용될 수 있는 활성 에너지선으로서는 자외선, 전자선 및 방사선 등을 들 수 있는데, 실용성의 점에서 자외선이 바람직하다. 자외선에 의해 경화 반응을 수행하는 경우는, 사용하는 자외선에 대하여 높은 활성을 갖는 하이드로실릴화 반응용 촉매, 예를 들어 비스(2, 4-펜탄디오네이트)백금 착체, (메틸사이클로펜타디에닐)트리메틸 백금 착체를 첨가하는 것이 바람직하다. 자외선 발생원으로는 고압 수은 램프, 중압 수은 램프, Xe-Hg 램프 및 닙 UV 램프 등이 바람직하며, 이때의 조사량은 100~8,000 mJ/cm<sup>2</sup>가 바람직하다.
- [0158] 본 발명의 경화물은 상기 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 이루어지는 것을 특징으로 한다. 경화물의 형상은 특별히 한정되지 않으며, 예를 들어 시트상, 필름상, 테이프상을 들 수 있다. 특히, 상기 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물은 경화 속도가 크고, 필름 등의 성형품을 제조하기 위한 가공성이 양호하여 소망의 두께, 형상의 경화물을 효율적으로 생산할 수 있다.
- [0159] 상기 경화물은 점착력이 작고, 탄성과 점성의 균형이 우수한 겔 또는 엘라스토머이며, 높은 비유전율, 높은 압축률 및 양호한 회복 특성 때문에, 기재 사이의 중간층에 이용한 경우, 압력 응답성이 우수한 동시에, 장시간에 걸쳐서 당해 특성이 유지된다는 현저한 물리 특성을 갖는다.
- [0160] [유전층으로서의 사용]
- [0161] 본 발명의 고유전성 필름은 특히 실질적으로 투명한 유전층으로서 사용할 수 있다.
- [0162] 본 발명의 플루오로알킬기 함유 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 경화하여 이루어지는 경화물은 전자 재료, 표시 장치용 부재 또는 트랜스듀서용 부재(센서, 스피커, 액추에이터 및 제너레이터용을 포함한다)로서 유용하며, 당해 고유전성 필름의 바람직한 용도는 전자 부품 또는 표시 장치의 부재이다. 특히, 투명한 고유전성 필름은 표시 패널 또는 디스플레이용 부재로서 바람직하며, 화면을 손가락 끝 등으로 접촉함으로써 기기, 특히 전자 기기를 조작 가능한 이른바 터치 패널 용도로 특히 유용하다.
- [0163] [표시 패널 또는 디스플레이용 부재]
- [0164] 본 발명의 고유전성 필름은 적층 터치스크린 또는 플랫 패널 디스플레이의 구축 및 이용에 사용할 수 있으며, 그의 구체적인 사용 방법은 유전층 또는 감압 접촉층의 공지의 사용 방법을 특별히 제한 없이 이용할 수 있다.
- [0165] 예를 들어, 본 발명의 고유전성 필름은 일본 공표특허공보 제2014-522436호 또는 일본 공표특허공보 제2013-512326호 등에서 개시된 광학적으로 투명한 실리콘층으로서, 터치 패널 등의 표시 디바이스의 제조에 이용할 수 있다. 예를 들어, 본 발명의 고유전성 필름은 점착성 용도로도 전용할 수 있으며, 일본 공표특허공보 제2013-512326호에 기재된 점착층 또는 점착 필름으로서, 특별히 제한 없이 이용할 수 있다.
- [0166] 일례로서, 본 발명에 관한 터치 패널은 한 면에 도전층이 형성되어 있는 전도성 플라스틱 필름 등의 기재 및 당해 도전층이 형성된 측 또는 그의 반대측 면에 부착되어 있는 본 발명의 고유전성 필름을 포함하는 터치 패널일 수 있다. 당해 기재는 시트상 또는 필름상 기재인 것이 바람직하며, 수지 필름 또는 유리판이 예시된다. 또한, 상기 전도성 플라스틱 필름은 한 면에 ITO 층이 형성되어 있는 수지 필름 또는 유리판, 특히 폴리에틸렌 테레프탈레이트 필름일 수 있다. 이들은 상기 일본 공표특허공보 제2013-512326호 등에 개시되어 있다. 아울러, 본 발명의 고유전성 필름의 밀착성 개선의 견지에서, 이들 기재 위에 상기 점착성 향상제(실록산 유도체 등)를 이

용하여 프라이머 처리를 수행하는 것이 특히 바람직하다. 또한, 고유전성 필름 표면을 활성화시킴으로써 접착성을 향상시키는 것도 가능하다. 이때, 필름에 대하여 플라즈마 처리나 코로나 방전 처리 등, 이미 알려진 표면 처리 방법을 이용할 수 있다.

[0167] 기타, 본 발명의 고유전성 필름은 터치 패널 등의 표시 디바이스의 제조에 이용하는 편광판용 접착 필름으로서 이용할 수도 있으며, 일본 공개특허공보 제2013-065009호에 기재된 터치 패널과 디스플레이 모듈 사이의 접합에 이용하는 감압 접착층으로서 이용할 수도 있다.

[0168] **산업상 이용 가능성**

[0169] 본 발명의 고유전성 필름의 용도로서는, 상기에 개시한 외에 아무런 제약이 없으며, 본 발명의 고유전성 필름은 텔레비전 수상기, 컴퓨터용 모니터, 휴대 정보 단말용 모니터, 감시용 모니터, 비디오 카메라, 디지털 카메라, 휴대전화, 휴대 정보 단말, 자동차 등의 계기반용 디스플레이, 다양한 설비·장치·기기의 계기반용 디스플레이, 자동 발매기, 현금 자동 입출금기 등, 문자나 기호, 화상을 표시하기 위한 각종 플랫폼 패널 디스플레이(FPD)에 사용할 수 있다. 장치로서는, CRT 디스플레이, 액정 디스플레이, 플라즈마 디스플레이, 유기 EL 디스플레이, 무기 EL 디스플레이, LED 디스플레이, 표면 전해 디스플레이(SED), 전계 방출형 디스플레이(FED) 등의 표시 장치나, 이들을 이용한 터치 패널에 응용이 가능하다.

[0170] **실시예**

[0171] 이하, 본 발명에 관하여 실시예를 들어 설명하지만, 본 발명은 이들에 의해 한정되는 것이 아니다. 이하에 나타내는 실시예에서는 하기 화합물 및 기재 필름을 이용했다. 아울러, 표 1 및 표 2에 있어서, 각 성분의 값은 각각의 질량%를 나타낸다.

[0172] · 성분 (a1): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머(실록산 중합도: 228, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 182, 디메틸실록산 단위수: 46, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계로 측정된 점도가 약 10,000 mPa·s이다.

[0173] · 성분 (a2): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 폴리머(실록산 중합도: 182, 플루오로알킬기의 함유량: 49몰%). 25도에서의 E형 점도계로 측정된 점도가 약 8,500 mPa·s이다.

[0174] · 성분 (a3): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸-디메틸실록산 코폴리머(실록산 중합도: 275, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 220, 디메틸실록산 단위수: 55, 플루오로알킬기의 함유량: 40몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 15,200 mPa·s.

[0175] · 성분 (a-T): 트리메틸실록산 단위(M<sup>m</sup>), 비닐디메틸실록산 단위(M<sup>v</sup>), 디메틸실록산 단위(D<sup>m</sup>), 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위(D<sup>f</sup>) 및 메틸실록산 단위(T<sup>m</sup>)(상기 M<sup>m</sup> 단위 1에 대하여 각각 4.8, 80, 306 및 5.7이 되는 몰 비, 플루오로알킬기의 함유량: 38몰%; M<sup>m</sup><sub>1.0</sub>M<sup>v</sup><sub>4.8</sub>D<sup>m</sup><sub>80</sub>D<sup>f</sup><sub>306</sub>T<sup>m</sup><sub>5.7</sub>). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 12,300 mPa·s.

[0176] · 성분 (B1): 디메틸하이드로실록시실록산 단위(M<sup>h</sup>)와 3, 3, 3-트리플루오로프로필실록산 단위(T<sup>F3Pr</sup>)로 구성되는 M<sup>h</sup><sub>1.3</sub>T<sup>F3Pr</sup>(Mw=1.11×10<sup>3</sup>). 아울러, 성분 (B1)의 중량 평균 분자량은 테트라하이드로푸란(THF)을 용매로 이용하여 GPC(겔 퍼미에이션 크로마토그래피)로 측정된 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량이다.

[0177] · 성분 (B2): 양 말단 디메틸하이드로실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸-디메틸실록산 코폴리머(실록산 중합도: 48, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 35, 디메틸실록산 단위수: 13, 플루오로알킬기의 함유량: 34몰%).

[0178] · 성분 (C1): 백금-양 말단 디메틸비닐실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 착체(실록산 중합도: 3, 백금 농도로 약 0.5중량%).

[0179] <하이드로실릴화 반응 억제제>

[0180] · 성분 (D1): 3-메틸-1-부틴-3-올

[0181] <필름 기재>

- [0182] 이하의 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET) 필름을 기재로서 이용했다.
- [0183] · 기재(E1) PET: FSB6(닛파사((Nippa Co., Ltd.) 제품, 두께 50 μm)
- [0184] · 기재(E2) PET: FSC6(닛파사 제품, 두께 50 μm)
- [0185] · 기재(E3) PET: 비와코트(다카라인코포레이션사(TAKARAINC. Co., Ltd.) 제품, 두께 50 μm)
- [0186] · 기재(E4) PET: MRV-50(미쯔비시쥬시가부시키가이샤(Mitsubishi Plastics, Inc.) 제품, 두께 50 μm)
- [0187] 이하의 실시예 1-1-1-4에서는, 성분 (a1) 비닐기 1몰당 성분 (B1)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 0.7몰이 되는 양으로 이용했다. 실시예 2에서는, 성분 (a2) 비닐기 1몰당 성분 (B1)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 0.5몰이 되는 양으로 이용했다. 실시예 4에서는, 성분 (a-T) 비닐기 1몰당 성분 (B1)과 (B2)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 1.0몰이 되는 양으로 이용했다.
- [0188] <비유전율의 측정>
- [0189] 웨인 커 사(Wayne Kerr Electronics) 제품 LCR6530P를 사용하여 비유전율을 측정했다. 측정에는 기재 필름 PET(케이테크놀로지사(J-Tech Corporation) 제품, FL50-3) 위에 두께 약 1.5-2.0 mm의 필름상으로 경화한 시료를 이용하여 수행했다. 실시예 1-1-1-4 및 2에 대해서는, 80도에서 15분 가열 후, 다시 150도에서 15분간 가열하여 경화시켰다. 실시예 3 및 4에 대해서는, 110도에서 10분 가열하여 경화시켰다.
- [0190] 아울러, 비유전율의 값은 실온, 주파수 1 kHz에 있어서, 실시예 1-1-1-4, 3 및 4에서 6이었으며, 실시예 2에서 7이었다.
- [0191] <투명성>
- [0192] 경화물 시트에 육안으로 일체의 흐림이 확인되지 않는 경우, 「투명」으로 평가했다. 이번 모든 실시예 (1-1-1-4, 3 및 4)에 있어서, 경화물은 모두 투명했다.
- [0193] <압축 성능의 측정>
- [0194] PET 기재(두께 50 μm, 도레이가부시키가이샤(Toray Industries, Inc.) 제품 등록 상표 루미러(Lumirror) S10) 위에, 경화물의 두께를 약 300 μm가 되도록 액상 재료의 양을 조절하여 도포 후, 상기와 동일한 조건으로 경화를 수행했다. 그 후, 동종의 PET 기재(등록 상표 루미러 S10)를 다시 경화물 위에 붙임으로써, PET 필름 사이에 경화 필름이 끼워진 샘플(이하, 「필름 샘플」이라고 한다)을 제작했다. 텍스처 애널리저 TA.XT Plus(에코세이키가부시키가이샤(EKO Instruments) 제품)를 이용하여 실온에서 측정을 수행했다. 평탄 프로브(6 mm 직경)를 매초 0.17 mm의 속도로 강하시키고, 최대 압축력 5 N에 달성 후, 압축력을 제거했다. 측정은 합계 8회 수행했다. 초기 필름 샘플의 두께(T0) 및 압축 후의 두께(T1)를 기초로, 이하의 식에 따라 압축률을 측정했다.
- [0195]  $\text{압축률}(\%) = \{(T0 - T1) / T0\} \times 100$
- [0196] 다시 프로브를 매초 0.17 mm의 속도로 원위치로 되돌린 후의 필름 샘플의 두께(T2)를 측정하고, 이하의 식에 따라 압축 잔류 변형으로서 측정된 결과를 표 1 및 실시예 3에 나타낸다.
- [0197]  $\text{압축 잔류 변형}(\%) = \{(T0 - T2) / T0\} \times 100$
- [0198] <동적 점탄성 측정>
- [0199] 동적 점탄성 측정에는 안톤 파 사(Anton Paar GmbH) 제품 MCR302를 이용했다. 본 발명의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 상기와 동일한 조건으로 경화시켰다. 그 후, 두께 약 1.5 mm, 직경 8 mm의 디스크상 시료를 제작하고, 평행 플레이트(parallel plate)법을 이용하여 -80도 혹은 -70도부터 150도까지 매분 3도의 속도로 승온하여 측정했다. 이때, 주파수 1 Hz, 변형 0.2%의 조건하, 23도에서의 전단 저장 탄성률을 표 1 및 실시예 3에 나타낸다.
- [0200] [실시예]
- [0201] <편면 도공 및 경화>
- [0202] 실시예 1-1부터 1-4는 이하와 같이 수행했다. 자동 도공기(테스터산교가부시키가이샤(Tester Sangyo Co., Ltd.) 제품, PI-1210)를 이용하여, 각종 필름 기재 위에 경화물의 두께가 약 20 μm가 되도록 표 1에 기재한 액상 재료를 프라이머 층으로서 도포했다. 그 후, 130℃에서 5분간 가열함으로써 경화시키고, 기재 필름 FL2-01(다카

라인코포레이션사 제품, 두께 75 μm)을 붙였다. 각 프라이머 층의 두께를 막 두께계로 측정했다. 표 1에 각 프라이머 층의 임의의 다섯 군데 이상에서 측정한 두께의 평균값을 나타낸다. 그리고 나서, FL2-01을 벗기고, 필름상 경화물의 두께가 약 280 μm가 되도록 표 1에 기재한 액상 재료를 다시 도포하고, 그 후 130℃에서 5분에 걸쳐서 경화시켰다. 최종적으로 필름상 경화물의 두께가 합계 약 300 μm가 되도록 했다. 표 1에 얻어진 필름상 경화물의 단부와 중앙부의 임의의 다섯 군데 이상에서 측정한 두께의 평균값을 각각 나타낸다. 또한, 표 1에 중앙부의 두께에 대한 단부와 중앙부의 두께 차의 비율(F%)을 이하의 식으로 산출하여 나타낸다. 아울러, 이 F%가 낮은 쪽이, 보다 얻어진 필름상 경화물의 두께가 균일하다고 할 수 있다.

[0203]  $F\% = \{(\text{단부의 두께} - \text{중앙부의 두께}) / \text{중앙부의 두께}\} \times 100$

[0204] 실시예 2 및 4에 대해서는, 경화 조건을 110℃에서 10분으로 한 이외는 실시예 1-1과 동일하게 수행했다.

[0205] [비교예]

[0206] <편면 도공 및 경화>

[0207] 표 2에 기재한 액상 재료를 각종 필름 기재 위에 경화물의 두께가 약 300 μm가 되도록 직접 도포한 이외는 각각 대응하는 실시예와 동일하게 수행했다. 표 2에 얻어진 경화물의 단부와 중앙부의 두께를 각각 막 두께계로 측정한 값을 나타낸다. 또한, 표 2에 중앙부의 두께에 대한 단부와 중앙부의 두께 차의 비율(F%)을 나타낸다. 아울러, 비교예 2에 대해서는, 프라이머를 이용하지 않는 경우, 상기 두께로 도포 내지 경화시킬 수 없었다.

표 1

[0208]

실시예 No.	1-1	1-2	1-3	1-4	2	4
성분 (a1)	99.08	99.08	99.08	99.08		
성분 (a2)					99.26	
성분 (a-T)						80.72
성분 (B1)	0.77	0.77	0.77	0.77	0.66	0.19
성분 (B2)						19.48
성분 (C1)	0.07	0.07	0.07	0.07	0.08	0.06
성분 (D1)	0.08	0.08	0.08	0.08		
기재 (E)	E1	E2	E3	E4	E1	E2
프라이머 두께(μm)	20	19	19	17	20	18
경화물 중앙 두께(μm)	287	284	297	289	305	298
경화물 단부 두께(μm)	296	293	300	294	302	302
F(%)(절대값)	3	3	1	2	1	1
비유전율	6				7	6
압축률(%)	20				17	
압축 잔류 변형(%)	0.1				0	
전단 저장 탄성률(Pa)	$4.2 \times 10^3$				$1.7 \times 10^4$	$8.0 \times 10^3$

표 2

[0209]

비교예 No.	1-1	1-2	1-3	1-4	2*	4
성분 (a1)	99.08	99.08	99.08	99.08		
성분 (a2)					99.26	
성분 (a-T)						80.72
성분 (B1)	0.77	0.77	0.77	0.77	0.66	0.19
성분 (B2)						19.48
성분 (C1)	0.07	0.07	0.07	0.07	0.08	0.06
성분 (D1)	0.08	0.08	0.08	0.08		
기재 (E)	E1	E2	E3	E4	E1	E2
프라이머 두께(μm)	0	0	0	0	0	0
경화물 중앙 두께(μm)	319	305	315	303	×	312
경화물 단부 두께(μm)	362	354	360	343	×	395
F(%)(절대값)	13	16	14	13	×	26

- [0210] \*설계한 막 두께로 경화할 수 없었다.
- [0211] [실시예 3]
- [0212] 상기 성분 (a3)을 99.43질량부, 성분 (B1) 0.49질량부 및 성분 (C1) 0.080질량부를 포함하는 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 이용했다. 아울러, 당해 조성물 중의 비닐기 1몰당 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)는 약 0.5몰이 되는 양이다. 상기 실시예 2 및 4와 동일한 조건으로 제작하여 측정된 필름의 압축률 및 압축 잔류 변형은 각각 20%과 0.6%였다. 또한, 상기와 동일한 조건으로 측정된 전단 저장 탄성률은  $8.0 \times 10^3$  Pa였다. 아울러, 당해 경화물의 비유전율의 값은 실온, 주파수 1 kHz에 있어서 6이었다.
- [0213] 상기 액상의 경화성 오가노폴리실록산 조성물을 두께 50  $\mu\text{m}$ 의 폴리에테르 술폰 수지 필름 사이에 도포하여 끼우고, 클리어렌스를 175  $\mu\text{m}$ 로 조정된 스테인리스로 제조된 2개의 롤에 통과시켜 압연 가공한 후, 110°C의 열풍 순환식 오븐에서 약 3분간 가열함으로써 경화시켰다. 얻어진 경화물의 중앙부와 단부의 두께는 각각 132  $\mu\text{m}$ , 134  $\mu\text{m}$ 였고, 중앙부의 두께에 대한 단부와 중앙부의 두께 차 F%는 약 1.5%였으며, 평탄화된 필름상 경화물을 얻었다.
- [0214] [참고예]
- [0215] 표 3에는 참고로, 본 발명에서의 필름상 경화물의 조성예를 하기 화합물을 이용하여 나타낸다.
- [0216] · 성분 (a4): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 84, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 66, 디메틸실록산 단위수: 18, 플루오로알킬기의 함유량: 38몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 1,220 mPa·s.
- [0217] · 성분 (a5): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 145, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 115, 디메틸실록산 단위수: 30, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 2,960 mPa·s.
- [0218] · 성분 (a6): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 177, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 142, 디메틸실록산 단위수: 35, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 4,800 mPa·s.
- [0219] · 성분 (a7): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 220, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 178, 디메틸실록산 단위수: 42, 플루오로알킬기의 함유량: 40몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 10,000 mPa·s.
- [0220] · 성분 (a8): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 233, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 184, 디메틸실록산 단위수: 49, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 14,000 mPa·s.
- [0221] · 성분 (a9): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 216, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 173, 디메틸실록산 단위수: 43, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 10,000 mPa·s.
- [0222] · 성분 (a10): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 236, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 192, 디메틸실록산 단위수: 44, 플루오로알킬기의 함유량: 40몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 12,500 mPa·s.
- [0223] · 성분 (a11): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 277, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 225, 디메틸실록산 단위수: 52, 플루오로알킬기의 함유량: 40몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 16,000 mPa·s.
- [0224] · 성분 (a12): 양 말단 비닐디메틸실록시기 봉쇄, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머 (실록산 중합도: 228, 3, 3, 3-트리플루오로프로필메틸실록산 단위수: 182, 디메틸실록산 단위수: 46, 플루오로알킬기의 함유량: 39몰%). 25도에서의 E형 점도계에서의 점도가 약 11,000 mPa·s.
- [0225] 필름상 경화물은 성분 (a4)부터 (a12)의 비닐기 1몰당 성분 (B1)의 규소 원자 결합 수소 원자(Si-H)가 약 0.5몰이 되는 양으로 제작했다. 아울러, 경화는 이하 중 어느 하나의 조건으로 수행했다.

- [0226] [경화 조건]
- [0227] 조건 1: 80도에서 15분 가열 후, 다시 150도에서 15분간 가열.
- [0228] 조건 2: 130도에서 5분간 가열.
- [0229] 조건 3: 130도에서 20분간 가열.
- [0230] 얻어진 필름상 경화물의 비유전율 및 투명성은 상술한 방법으로 평가하였으며, 비유전율은 6이었고, 모두 투명했다. 또한, 점착력 및 압축 성능을 이하에 나타내는 방법으로 측정했다.
- [0231] [얻어진 재료의 물성 측정 방법]
- [0232] 1. 점착력의 측정
- [0233] PET 기재(두께 50 μm, 도레이가부시키가이샤 제품 루미러 S10) 위에 경화물의 두께가 약 100 μm가 되도록 액상 재료를 도포하고, 상기 1.~3. 중 어느 하나의 경화 조건으로 필름상 경화물을 제작했다. 얻어진 필름상 경화물 위에 루미러 S10을 붙여 시험편을 제작했다. 측정은 23℃, 습도 50%의 환경에서 수행하였으며, 속도 300 mm/min, 180° 필(peel)로 수행한(오리엔텍사(Orientec Co., Ltd.) 제품, RTC-1210) 결과를 표 3에 나타낸다.
- [0234] <압축 성능의 측정>
- [0235] 실시예와 동일한 조건으로 수행했다.

**표 3**

조성예	1	2	3	4	5
성분 (a4)	98.31				
성분 (a5)		98.94			
성분 (a6)			99.10		
성분 (a7)				99.24	
성분 (a8)					99.34
성분 (a9)					
성분 (a10)					
성분 (a11)					
성분 (a12)					
성분 (B1)	1.54	0.91	0.75	0.60	0.58
성분 (C1)	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08
성분 (D1)	0.08	0.07	0.07	0.08	
경화 조건	1	1	1	1	2
점착력(N/m)	6	12	12	19	13
압축률(%)	20	22	23	25	21
압축 잔류 변형(%)	0	0.1	2	4	3
전단 저장 탄성률 (Pa)	$4.5 \times 10^3$	$2.5 \times 10^3$	$2.3 \times 10^3$	$1.4 \times 10^3$	$4.6 \times 10^3$

**표 4**

조성예	6	7	8	9
성분 (a4)				
성분 (a5)				
성분 (a6)				
성분 (a7)				
성분 (a8)				
성분 (a9)	99.30			
성분 (a10)		99.35		
성분 (a11)			99.48	
성분 (a12)				99.38
성분 (B1)	0.62	0.57	0.48	0.58
성분 (C1)	0.08	0.08	0.04	0.04
성분 (D1)				

경화 조건	2	1	1	3
접착력(N/m)	10	20	27	17
압축률(%)	26	21	21	23
압축 잔류 변형(%)	4	1	2	2
전단 저장 탄성률(Pa)	$1.9 \times 10^3$	$5.4 \times 10^3$	$5.0 \times 10^3$	$2.8 \times 10^3$

[0238] 상기 구성에 1~9에 관한 필름상 경화물은 실시예 1-1~1-4, 실시예 2, 실시예 3 및 실시예 4에 준한 방법에 의해, 실질적으로 평탄화된 고유전성 필름을 형성하는 것이 가능하다.