



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2013년05월07일
(11) 등록번호 10-1261252
(24) 등록일자 2013년04월30일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C07F 7/18 (2006.01) C07F 7/08 (2006.01)
C08K 5/54 (2006.01) C08G 59/00 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2007-7021083
(22) 출원일자(국제) 2006년03월15일
심사청구일자 2010년12월29일
(85) 번역문제출일자 2007년09월14일
(65) 공개번호 10-2007-0112388
(43) 공개일자 2007년11월23일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2006/305637
(87) 국제공개번호 WO 2006/098491
국제공개일자 2006년09월21일
(30) 우선권주장
JP-P-2005-00072394 2005년03월15일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
US05206312 A*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
다우 코닝 도레이 캄파니 리미티드
일본국 도쿄도 100-0004 치요다쿠 오테마치 1-5-1
(72) 발명자
우에키 히로시
일본 치바켄 이치하라시 치구사카이간 2-2
잇시키 미노루
일본 에히메켄 이요군 마사키초 오아자 쓰쓰이
1451
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
장훈

전체 청구항 수 : 총 8 항

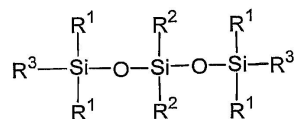
심사관 : 김수미

(54) 발명의 명칭 오가노트리실록산, 이의 제조방법 및 경화성 수지조성물에서의 이의 용도

(57) 요약

본 발명은, 우수한 반응성을 가지며 에폭시 수지 등의 경화성 수지에 대하여 우수한 혼화성 및 분산성을 갖는 신규한 화합물인 화학식 1의 오가노트리실록산에 관한 것이다.

화학식 1

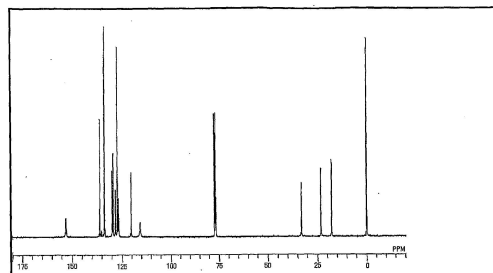


위의 화학식 1에서,

R¹과 R²는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이고, 단 R¹들 또는 R²들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이고,

R³은 페놀성 하이드록실 그룹 함유 유기 그룹이다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

모리타 요시쓰구

일본 치바켄 이치하라시 치구사카이간 2-2

가토 도모코

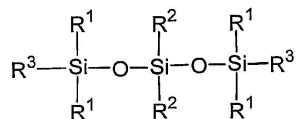
일본 치바켄 이치하라시 치구사카이간 2-2

특허청구의 범위

청구항 1

화학식 1의 오가노트리실록산.

화학식 1

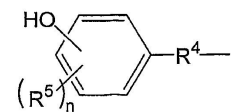


위의 화학식 1에서,

R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이고, 단 R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이고,

R^3 은 화학식 3의 페놀성 하이드록실 그룹 함유 유기 그룹이다.

화학식 3



위의 화학식 3에서,

R^4 는 알킬렌 그룹이고,

R^5 는 알킬 그룹 또는 알콕시 그룹이고,

n 은 0 또는 1이다.

청구항 2

제1항에 있어서, R^1 이 메틸 그룹인, 오가노트리실록산.

청구항 3

제1항에 있어서, R^2 가 페닐 그룹인, 오가노트리실록산.

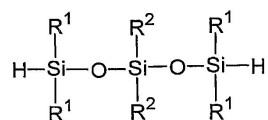
청구항 4

삭제

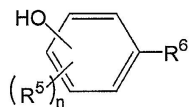
청구항 5

화학식 8의 페놀 화합물과 화학식 2의 오가노트리실록산을 하이드로실릴화 반응시킴을 특징으로 하는, 제1항에 따르는 오가노트리실록산의 제조방법.

화학식 2



화학식 8



위의 화학식 2 및 8에서,

R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이고, 단 R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이고,

R^5 는 알킬 그룹 또는 알콕시 그룹이고,

R^6 은 알케닐 그룹이고,

n 은 0 또는 1이다.

청구항 6

삭제

청구항 7

경화성 수지와 제1항 내지 제3항 중의 어느 한 항에 따르는 오가노트리실록산을 포함하는 경화성 수지 조성물.

청구항 8

제7항에 있어서, 경화성 수지가 에폭시 수지, 이미드 수지 또는 페놀 수지인, 경화성 수지 조성물.

청구항 9

제7항에 있어서, 오가노트리실록산의 함량이, 경화성 수지 100중량부를 기준으로 하여, 0.01 내지 100중량부 범위인, 경화성 수지 조성물.

청구항 10

제7항에 따르는 경화성 수지 조성물을 경화시켜 수득한 경화물.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹 및 아릴 그룹을 함유하는 신규한 오가노트리실록산에 관한 것이다. 본 발명은 또한 상기한 오가노트리실록산의 제조방법, 상기한 오가노트리실록산을 함유하는 경화성 수지 조성물 및 상기한 조성물을 경화시켜 수득한 경화물에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 일본 미심사 특허출원 공보(이하, "공개특허공보"라고 함) 제(소)63-199220호, 제(평)9-151253호, 및 미국 특허 제4,430,235호에는 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹을 함유하는 직쇄 오가노폴리실록산이 제안되어 있다. 일본 공개특허공보 제(평)2-117682호 및 제(평)3-20324호에는 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹을 함유하는 디실록산이 제안되어 있다.

[0003] 그러나, 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹을 함유하는 직쇄 오가노폴리실록산은 반응성이 떨어지고, 에폭시 수지 등의 경화성 수지와 혼화성이 떨어진다. 한편, 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹을 함유

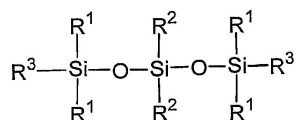
하는 디실록산은 반응성이 우수하지만, 에폭시 수지 등의 경화성 수지와 배합되는 경우, 수득된 경화물은 강도가 높고, 기재에 대한 이의 접착성이 낮다는 문제가 있었다.

[0004] 본 발명의 목적은, 우수한 반응성을 가지며 에폭시 수지 등의 경화성 수지에 대하여 탁월한 분산성과 혼화성을 갖는, 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹 및 아릴 그룹을 함유하는 신규한 오가노트리실록산을 제공하는 것이다. 본 발명은 또한 상기한 오가노트리실록산의 제조방법, 상기한 오가노트리실록산을 함유하는 경화성 수지 조성물 및 상기 조성물로부터 수득한 경화물에 관한 것이다.

[0005] 발명의 요약

[0006] 본 발명의 오가노트리실록산은 화학식 1의 화합물이다:

화학식 1



[0007]

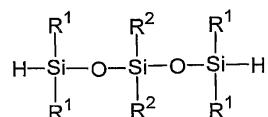
[0008] 위의 화학식 1에서,

[0009] R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이고, 단 R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이고,

[0010] R^3 은 페놀성 하이드록실 그룹을 함유하는 유기 그룹이다.

[0011] 본 발명의 오가노트리실록산의 제조방법은, 지방족 불포화 탄화수소 그룹을 함유하는 페놀 화합물과 화학식 2의 오가노트리실록산을 하이드로실릴화 반응시킴을 특징으로 한다:

화학식 2



[0012]

[0013] 위의 화학식 2에서,

[0014] R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이고, 단 R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이다.

[0015] 본 발명의 경화성 수지 조성물은 경화성 수지 및 상기한 오가노트리실록산을 포함함을 특징으로 한다.

[0016] 본 발명의 경화물은 상기한 경화성 수지 조성물을 경화시켜 수득함을 특징으로 한다.

[0017] 발명의 효과

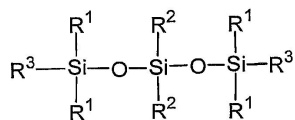
[0018] 본 발명의 오가노트리실록산은 우수한 반응성을 가지며 에폭시 수지 등의 경화성 수지에 대하여 탁월한 혼화성과 분산성을 갖는 신규한 화합물이다. 본 발명의 제조방법은 이러한 신규한 화합물을 효율적으로 제조하는데 사용될 수 있으며, 본 발명의 경화성 수지 조성물이 상기한 신규한 화합물을 함유하기 때문에, 경화성 및 기재 접착성이 우수한 것으로 입증된 동시에, 본 발명의 조성물로부터 수득한 경화물도 각종 기재에 대한 접착성이 양호한 것으로 입증된다.

[0019]

발명의 상세한 설명

[0024] 본 발명의 오가노트리실록산은 화학식 1의 화합물이다:

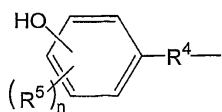
[0025] 화학식 1



[0026]

[0027] 위의 화학식 1에서, R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의로 치환된 1가 탄화수소 그룹이다. 이러한 1가 탄화수소 그룹의 구체적인 예는 다음과 같다: 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실 등의 알킬 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴 등의 아릴 그룹; 벤질, 펜에틸 등의 아르알킬 그룹; 3-클로로프로필, 3,3,3-트리플루오로프로필 등의 할로젠화 알킬 그룹. 그러나, 화학식 1에서, R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹이고, 바람직하게는 R^1 은 알킬 그룹이고, R^2 는 아릴 그룹인 것이 요구된다. R^1 이 메틸 그룹이고, R^2 가 페닐 그룹인 것이 특히 바람직하다. 화학식 1에서, R^3 이 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 유기 그룹인 것이 바람직하다. 보다 구체적으로, 상기한 유기 그룹은 방향족 환에 결합된 하이드록실 그룹을 갖는다면, 이러한 그룹은 특별히 한정되지 않지만, 화학식 3의 그룹이 바람직하다:

화학식 3



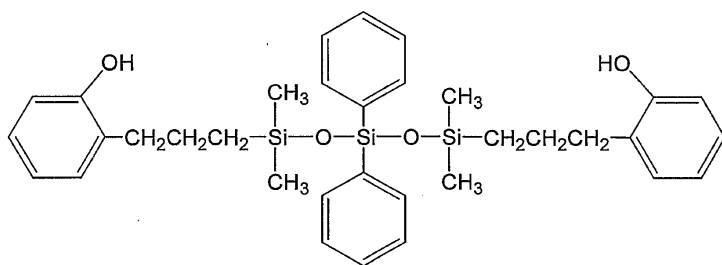
[0028]

[0029] 상기 화학식 3에서, R^4 는 알킬렌 그룹, 보다 구체적으로 에틸렌, 프로필렌, 메틸에틸렌 또는 부틸렌 그룹, 바람직하게는 프로필렌 그룹이다.

[0030] 또한, 상기 화학식 3에서, R^5 는 알킬 그룹 또는 알콕시 그룹이고, R^5 의 알킬 그룹으로는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸 또는 헥실 그룹이 예시될 수 있다. R^5 의 알콕시 그룹으로는 메톡시, 에톡시, 프로폭시 또는 부톡시 그룹이 예시될 수 있다. 상기 화학식 3에서, "n"은 0 또는 1이다.

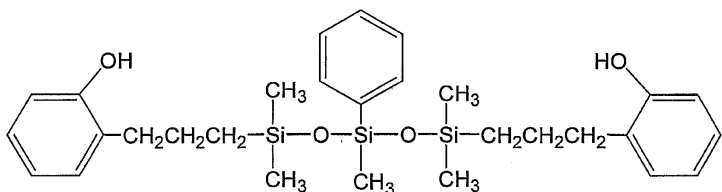
[0031] 상기한 오가노트리실록산으로서 다음 화합물이 예시될 수 있다:

화학식 4



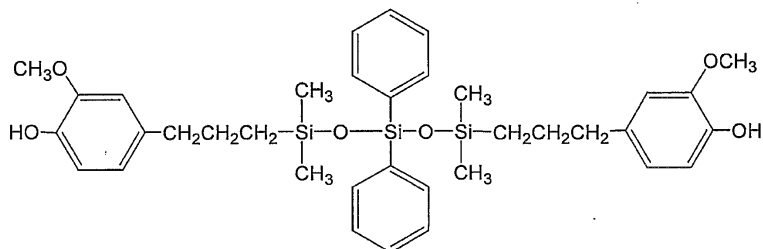
[0032]

화학식 5



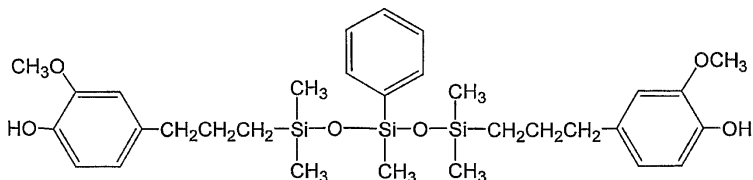
[0033]

화학식 6



[0034]

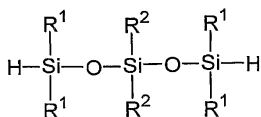
화학식 7



[0035]

[0036] 본 발명의 제조방법은 지방족 불포화 탄화수소 그룹을 함유하는 페놀 화합물과 화학식 2의 오가노트리실록산을 하이드로실릴화 반응시킴을 특징으로 한다:

[0037] 화학식 2

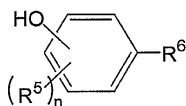


[0038]

[0039] 상기 화학식 2에서, R^1 과 R^2 는 동일하거나 상이할 수 있으며, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 임의의 치환된 1가 탄화수소 그룹이다. R^1 들 또는 R^2 들 중의 적어도 하나는 아릴 그룹일 것이다. 바람직하게는, R^1 은 알킬 그룹이고, R^2 는 페닐 그룹일 것이다.

[0040] 상기한 페놀 화합물은 이의 분자가 지방족 불포화 탄화수소 그룹을 함유한다면, 이의 구조는 특별히 한정되지 않는다. 그러나, 페놀 화합물의 분자가 알킬 그룹을 함유하는 것이 바람직하다. 상기한 페놀 화합물은 바람직하게는 화학식 8의 화합물일 것이다:

화학식 8



[0041]

[0042] 상기 화학식 8에서, R^5 는 알킬 또는 알콕시 그룹이다. 이들 그룹은 위에서 예시한 바와 동일할 것이다. R^6 은 알케닐 그룹이다. 알케닐 그룹의 구체적인 예는 비닐 그룹, 알릴 그룹 및 부테닐 그룹이고, 알릴 그룹이 바람직하다. 상기 화학식 8에서, "n"은 0 또는 1이고, 바람직한 페놀 그룹은 아릴페놀 또는 유계놀이다.

[0043] 상기한 오가노트리실록산과 지방족 불포화 탄화수소 그룹을 갖는 페놀 그룹과의 하이드로실릴화 반응은 하이드로실릴화 촉매를 사용하여 수행할 수 있다. 이러한 하이드로실릴화 촉매로는 백금계 촉매, 로듐계 촉매 또는 팔라듐계 촉매가 예시될 수 있고, 백금계 촉매가 바람직하다. 이러한 백금계 촉매의 구체적인 예는 백금 블랙(platinum black), 염화백금산, 알콜 개질된 염화백금산, 백금-올레핀 착체, 백금-알케닐실록산 착체 또는 백금-카보닐 착체이다. 하이드로실릴화 반응은 실온에서 진행시킬 수 있지만, 반응의 진행을 촉진시키기 위해 가열시킬 수 있다. 오가노트리실록산과 페놀 화합물이 사용될 수 있는 비율은 특별히 한정되지 않지만, 오가노트리실록산에 함유된 규소원자 결합된 수소원자와 페놀 화합물에 함유된 지방족 불포화 탄화수소 그룹의 몰 비가

1:1 내지 1:10, 바람직하게는 1:1 내지 1:3의 범위 내인 것이 바람직할 것이다. 물 비가 상기 범위의 하한 미만이면, 목적하는 오가노트리실록산의 수율이 저하될 것이고, 한편, 물 비가 상기 범위의 상한을 초과하면, 생성물은 미반응의 페놀 화합물을 다량으로 함유하고, 몇몇 경우, 이는, 수득한 오가노트리실록산의 순도를 저하시킬 것이다.

[0044] 하이드로실릴화 반응에서, 유기 용매 사용에 유의해야 한다. 하이드로실릴화 반응에 적합한 유기 용매는 헥산, 옥탄 등의 지방족 탄화수소; 톨루엔, 크실렌 등의 방향족 탄화수소; 부틸 아세테이트, 에틸 아세테이트 등의 에스테르; 디에틸 에테르, 디부틸 에테르, 디옥산 등의 에테르; 아세톤, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 사이클로헥산 등의 케톤일 것이다. 하이드로실릴화 반응의 완결시, 반응 혼합물을 감압하에서 가열하여 유기 용매와 미반응의 페놀 화합물을 제거함으로써, 수득한 오가노트리실록산을 정제한다.

[0045] 본 발명의 경화성 수지 조성물은 경화성 수지와 상기한 오가노트리실록산을 포함함을 특징으로 한다.

[0046] 본 발명의 조성물의 주성분 중의 하나를 구성하는 경화성 수지는 특별히 한정되지 않는다. 이러한 수지의 구체적인 예는 에폭시 수지, 페놀 수지, 포름알데히드 수지, 크실렌 수지, 크실렌-포름알데히드 수지, 케톤-포름알데히드 수지, 푸란 수지, 요소 수지, 이미드 수지, 멜라민 수지, 알키드 수지, 불포화 폴리에스테르 수지, 아닐린 수지, 설포아미드 수지 또는 이들의 공중합성 유기 수지; 상기한 경화성 유기 수지에 부분적으로 오가노실릴 그룹 또는 오가노실록시 그룹이 결합한 실리콘 개질된 유기 수지; 또는 상기한 유기 수지의 2종 이상의 혼합물이다. 에폭시 수지, 이미드 수지 또는 페놀 수지가 가장 바람직하다. 상기한 경화성 수지의 경화 메커니즘은 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면, 열, 자외선 조사, 고에너지선 조사에 의해, 또는 습윤 공기 중에 유지시켜 수지를 경화시킬 수 있다. 열에 의해 경화시키는 것이 가장 바람직하다.

[0047] 상기한 경화성 수지는 임의의 성분, 예를 들면, 경화제, 경화 촉진제 등과 배합시킬 수 있다. 경화제는 카복실산, 설포산 등의 유기산 또는 이의 무수물; 유기 하이드록실 화합물; 실란올 그룹, 할로젠 그룹 등을 함유하는 유기 규소 화합물; 1급 또는 2급 아미노 화합물; 실란올 그룹을 함유하는 실리콘 수지; 실란올 그룹을 함유하는 실리콘 오일; 또는 상기한 화합물의 2종 이상의 혼합물로 예시될 수 있다. 당해 경화 촉진제로는 3급 아미노 화합물, 알루미늄, 지르코늄의 유기염 등의 유기 금속염, 포스핀 등의 유기 포스페이트, 헤테로사이클릭 아미노 화합물, 붕소 착화합물, 유기 암모늄염, 유기 설포늄염, 유기 과산화물, 하이드로실릴화 촉매가 예시될 수 있다.

[0048] 상기한 바와 같이, 상기한 오가노트리실록산은 경화 전에 본 발명의 조성물의 유동성의 손실을 방지할 뿐만 아니라, 경화 후에 각종 기재에 대한 밀착성 및 접착성을 개선시키기 위해 사용되는 성분이다. 오가노트리실록산을 가할 수 있는 양은 특별히 한정되지 않는다. 그러나, 주성분을 구성하는 경화성 수지 100중량부를 기준으로 하여, 0.01 내지 100중량부, 바람직하게는 0.1 내지 50중량부의 양으로 가하는 것이 바람직하다. 상기한 오가노트리실록산이 상기 범위의 하한 미만이면, 수득한 경화성 수지 조성물의 각종 기재에 대한 밀착성 및 접착성에 악영향을 미칠 것이다. 한편, 첨가한 오가노트리실록산의 양이 상기 범위의 상한을 초과하면, 조성물의 경화물은 기계적 특성이 저하될 것이다.

[0049] 본 발명의 조성물은 감광제, 고급 지방산의 금속염, 에스테르계 왁스, 가소제, 가요성 부여제, 충전제, 실란 커플링제 등의 각종 임의의 성분과 배합될 수 있다. 가요성 부여제로는 실리콘 오일 및 실리콘 고무가 예시될 수 있다. 충전제는 유리 섬유, 알루미늄 섬유, 알루미늄나와 실리카를 이들의 성분으로서 갖는 세라믹 섬유, 보론 섬유, 지르코니아 섬유, 탄화규소 섬유, 금속 섬유, 폴리에스테르 섬유, 아라미드 섬유, 나일론 섬유, 페놀 섬유, 천연의 동식물 섬유 등의 섬유상 충전제 뿐만 아니라, 용융 실리카, 침강 실리카, 폼드 실리카, 소성 실리카, 산화아연, 소성 점토, 카본 블랙, 유리 비드, 알루미늄나, 활석, 탄산칼슘, 점토, 수산화알루미늄, 황산바륨, 이산화티타늄, 질화알루미늄, 탄화규소, 산화마그네슘, 산화베릴륨, 고령토, 운모, 지르코니아 등의 분말로 이루어질 수 있다. 상기한 충전제는 2종 이상이 혼합되어 사용될 수 있다. 실란 커플링제로는 비닐트리메톡시실란, 알릴트리메톡시실란, 알릴트리에톡시실란, 3-글리시독시프로필-트리메톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필-트리메톡시실란, 3-아미노프로필-트리에톡시실란 및 N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필-트리메톡시실란이 예시될 수 있다.

[0050] 본 발명의 조성물은 상기한 경화성 수지, 오가노트리실록산 및, 필요에 따라, 기타 임의의 성분을 균일하게 혼합함으로써 제조된다. 이러한 성분들을 혼합하는 방법은 한정되지 않는다. 예를 들면, 1축 또는 2축 혼합기, 투 롤 밀(two-roll mill), 로스 혼합기(Ross mixer), 혼련기를 사용하여 당해 성분들을 혼합할 수 있다.

[0051] 본 발명의 경화물은 상기한 경화성 수지 조성물을 경화함으로써 수득한다. 수득한 경화물은 접착성이 탁월하기

때문에, 전기 및 전자 부품의 밀봉재, 접착제, 코팅제로 사용할 수 있다.

실시예

[0052] 본 발명의 오가노트리실록산, 이의 제조방법, 본 발명의 경화성 수지 조성물 및 경화물에 관해서 적용 실시예 및 비교실시예에 의해 더 상세하게 설명한다. 경화성 수지 조성물의 외관 및 점도 뿐만 아니라, 경화물의 복소 탄성율(composite modulus of elasticity) 및 접착성은 아래에 기재된 방법으로 평가하였다.

[0053] [외관]

[0054] 실리카 미분말과 경화 촉진제(아민계 촉매)를 함유시키지 않고 경화성 수지 조성물을 제조하고, 진공 탈포(defoaming)한 후에 당해 조성물의 외관을 육안으로 관찰하였다.

[0055] [점도]

[0056] 경화성 수지 조성물의 25℃에서의 점도를, E형 점도계[토키멕, 인코포레이티드(Tokimec, Inc.) 제품인 디지털 점도계, 모델 DV-U-E II형]를 사용하여, 회전수 2.5rpm의 조건하에 측정하였다.

[0057] [복소 탄성율]

[0058] 경화성 수지 조성물을 70mmHg으로 탈포한 후, 폭 10mm, 길이 50mm, 깊이 2mm의 공동을 갖는 금형에 충전하고, 150℃ 및 2.5MPa의 조건으로 60분 동안 프레스 경화(pressure curing)시킨 후, 180℃의 오븐 속에서 2시간 동안 2차 열처리한 경화된 시험편을 제작하였다. 수득한 시험편의 25℃에서의 복소 점탄성율을 ARES 점탄성 측정 장치[레오메트릭 사이언티픽 캄파니(Reometric Scientific Co.) 제품인 모델 RDA 700]를 사용하여 측정하였다. 비틀림(twist) 0.5%, 진동수 1Hz의 조건하에 측정하였다.

[0059] [접착성]

[0060] 경화성 수지 조성물을 약 1cm³의 양으로 부착물{유리판[팔텍 캄파니, 리미티드(Paltec Co., Ltd.) 제품인 플로트 유리판], 알루미늄판[팔텍 캄파니, 리미티드 제품인 A1050P], 니켈판[팔텍 캄파니, 리미티드 제품인 SPCC-SB], 구리판[팔텍 캄파니, 리미티드 제품인 C1100P], 금도금판[니혼 테스트 패널 캄파니, 리미티드(Nippon Test Panel Co., Ltd.) 제품인 C2801P], 폴리이미드 필름[우베 인더스트리즈 캄파니, 리미티드(Ube Industries Co., Ltd.) 제품인 Upilex, 두께: 125 μ m]} 위에 도포하였다. 당해 유닛을 125℃의 오븐 속에서 2시간 동안 가열한 다음, 180℃의 오븐 속에서 추가의 2시간 동안 가열하였다. 그 결과, 접착성 평가용 시험편을 제작하였다. 이러한 시험편으로부터 경화물을 덴탈 스파츨러(dental spatula)를 사용하여 분리하였고, 분리 상태를 다음과 같이 나타내었다:

[0061] CF: 피복물이 파괴되는 분리

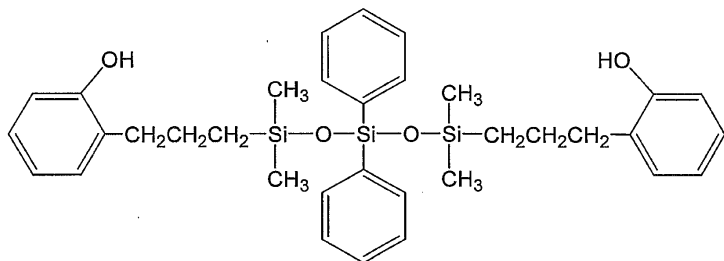
[0062] TCF: 계면에 얇은 잔류층이 남은 상태로 분리

[0063] AF: 계면 전체에 걸친 완전한 분리

[0064] [적용 실시예 1]

[0065] 교반기 부착 4구 플라스크에 1,1,5,5-테트라메틸-3,3-디페닐트리실록산 81.3g(0.24mol), 톨루엔 100g 및 백금-1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산 착체(백금 금속 농도: 4중량%) 0.025g을 주입하였다. 내용물을 80℃로 가열하고, 2-알릴페놀 79.1g(0.59mol)을 적하하였다. 120℃에서 2시간 동안 반응시켰다. 이와 같이 수득한 반응 혼합물을 감압하에 스트립핑하여 점도 3500mPa·s의 갈색 액체 142.6g을 96.8%의 수율로 수득하였다. 당해 생성물은 ¹³C-핵자기 공명 분석(이하, NMR 분석으로 칭함) 및 ²⁹Si-NMR 분석에 의해 화학식 4의 오가노트리실록산인 것으로 밝혀졌다.

[0066] 화학식 4

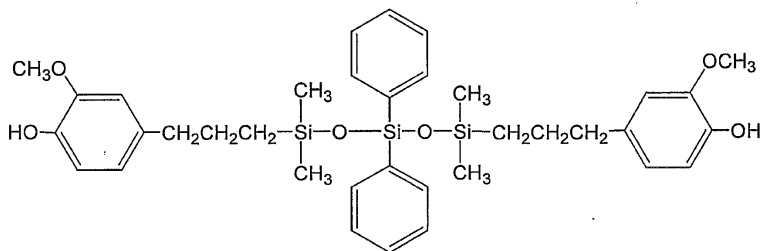


[0067]

[적용 실시예 2]

[0069] 교반기 부착 4구 플라스크에, 1,1,5,5-테트라메틸-3,3-디페닐트리실록산 287.4g(0.86mol), 톨루엔 160g 및 백금-1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산 착체(백금 금속 농도 = 4중량%) 0.06g을 주입하였다. 내용물을 80℃로 가열하고, 유계놀 312.6g(1.90mol)을 적하하였다. 120℃에서 2시간 동안 반응시켰다. 이와같이 수득한 반응 혼합물을 감압하에 스트립핑하여 점도 2700mPa·s의 갈색 투명 액체 564g을 98.7%의 수율로 수득하였다. 당해 생성물은 ¹³C-NMR 및 ²⁹Si-NMR 분석에 의해 화학식 6의 오가노트리실록산인 것으로 밝혀졌다.

[0070] 화학식 6



[0071]

[적용 실시예 3]

[0073] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지[재팬 에폭시 레진 캠퍼니, 리미티드(Japan Epoxy Resin Co., Ltd.) 제품인 Epikote 828; 에폭시 당량 = 190] 16.0중량부, 적용 실시예 1에서 수득한 트리실록산 22.0중량부, 캡슐형 아민 촉매[아사히 케미칼 인더스트리 캠퍼니, 리미티드(Asahi Chemical Industry Co., Ltd.) 제품인 HX-3088; 아민 촉매 함유량 = 40중량%] 1.0중량부, 구상 비결정질 실리카 미분말[아드마텍스 캠퍼니, 인코포레이티드(Admatechs Co., Inc.) 제품인 Admafine; 평균 입자 직경 = 1.5 μ m] 60.0중량부 및 3-글리시독시프로필트리메톡시실란 1중량부를 균일하게 혼합하여 경화성 에폭시 수지 조성물을 제조하였다. 수득한 경화성 에폭시 수지 조성물의 외관 및 점도의 평가 결과 뿐만 아니라, 경화물에서 측정된 복소 탄성을 및 접착성을 표 1에 기재하였다.

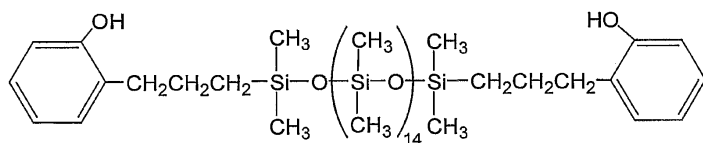
[0074] [적용 실시예 4]

[0075] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(재팬 에폭시 레진 캠퍼니, 리미티드 제품인 Epikote 828; 에폭시 당량 = 190) 16.0중량부, 적용 실시예 2에서 수득한 트리실록산 22.0중량부, 캡슐형 아민 촉매(아사히 케미칼 인더스트리 캠퍼니, 리미티드 제품인 HX-3088; 아민 촉매 함유량 = 40중량%) 1.0중량부, 구상 비결정질 실리카 미분말(아드마텍스 캠퍼니, 인코포레이티드 제품인 Admafine; 평균 입자 직경 = 1.5 μ m) 60.0중량부 및 3-글리시독시프로필-트리메톡시실란 1중량부를 균일하게 혼합하여 경화성 에폭시 수지 조성물을 제조하였다. 수득한 경화성 에폭시 수지 조성물의 외관 및 점도의 평가 결과 뿐만 아니라, 경화물에서 측정된 복소 탄성을 및 접착성을 표 1에 기재하였다.

[0076] [비교실시예 1]

[0077] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(재팬 에폭시 레진 캠페니, 리미티드 제품인 Epikote 828; 에폭시 당량 = 190) 9.0중량부, 화학식 9의 평균 구조식을 갖는 폴리디메틸실록산 29.0중량부, 캡슐형 아민 촉매(아사히 케미칼 인더스트리 캠페니, 리미티드 제품인 HX-3088; 아민 촉매 함유량 = 40중량%) 1.0중량부, 구상 비결정질 실리카 미분말(아드마텍스 캠페니, 인코포레이티드 제품인 Admafine; 평균 입자 직경 = 1.5 μ m) 60.0중량부 및 3-글리시독시프로필-트리메톡시실란 1중량부를 균일하게 혼합하여 경화성 에폭시 수지 조성물을 제조하였다. 수득한 경화성 에폭시 수지 조성물의 외관 및 점도의 평가 결과 뿐만 아니라, 경화물에서 측정된 복소 탄성을 및 접착성을 표 1에 기재하였다.

화학식 9

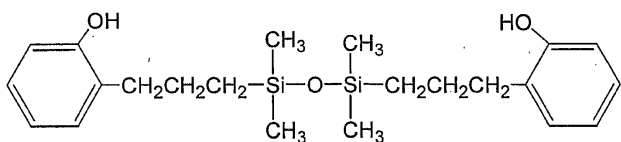


[0078]

[0079] [비교실시예 2]

[0080] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(재팬 에폭시 레진 캠페니, 리미티드 제품인 Epikote 828; 에폭시 당량 = 190) 19.0중량부, 화학식 10의 평균 구조식을 갖는 디실록산 19.0중량부, 캡슐형 아민 촉매(아사히 케미칼 인더스트리 캠페니, 리미티드 제품인 HX-3088; 아민 촉매 함유량 = 40중량%) 1.0중량부, 구상 비결정질 실리카 미분말(아드마텍스 캠페니, 인코포레이티드 제품인 Admafine; 평균 입자 직경 = 1.5 μ m) 60.0중량부 및 3-글리시독시프로필-트리메톡시실란 1중량부를 균일하게 혼합하여 경화성 에폭시 수지 조성물을 제조하였다. 수득한 경화성 에폭시 수지 조성물의 외관 및 점도의 평가 결과 뿐만 아니라, 경화물에서 측정된 복소 탄성을 및 접착성을 표 1에 기재하였다.

화학식 10



[0081]

[0082] [비교실시예 3: 경화성 에폭시 수지 조성물의 제조]

[0083] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(재팬 에폭시 레진 캠페니, 리미티드 제품인 Epikote 828; 에폭시 당량=190) 22.0중량부, 액상의 페놀노볼락 수지[메이와 플라스틱 인더스트리, 리미티드(Meiwa Plastic Ind., Ltd.) 제품인 MEH8000; 하이드록실 그룹 당량 = 141] 16.0중량부, 캡슐형 아민 촉매(아사히 케미칼 인더스트리 캠페니, 리미티드 제품인 HX-3088; 아민 촉매 함유량 = 40중량%) 1.0중량부, 구상 비결정질 실리카 미분말(아드마텍스 캠페니, 인코포레이티드 제품인 Admafine; 평균 입자 직경 = 1.5 μ m) 60.0중량부 및 3-글리시독시프로필-트리메톡시실란 1중량부를 균일하게 혼합하여 경화성 에폭시 수지 조성물을 제조하였다. 수득한 경화성 에폭시 수지 조성물의 외관 및 점도의 평가 결과 뿐만 아니라, 경화물에서 측정된 복소 탄성을 및 접착성을 표 1에 기재하였다.

표 1

특성		적용 실시예 (본 발명)		비교 실시예		
		3	4	1	2	3
외관		혼화성 있음	혼화성 있음	백탁 (분리)	혼화성 있음	혼화성 있음
점도 (Pa·s)		148	104	171	65	200
복소 탄성율(MPa)		2160	1950	80*	1580	2900
접착성	유리판	CF	CF	CF	CF	CF
	니켈	CF	CF	CF	CF	CF
	구리	CF	CF	CF	CF	CF
	알루미늄	CF	CF	CF	CF	CF
	금	CF	CF	CF	CF	CF
	폴리이미드 수지	CF	CF	CF	CF	CF

* : 경화물 표면에 오일 유출이 확인되고, 불균일하였다.

본 발명의 오가노트리실록산은 경화성 수지 속에서의 분산성이 우수하며, 경화성 수지 조성물에 낮은 점도를 부여할 수 있고, 복소 탄성율이 우수하고 각종 기재에 대한 접착성이 높은 경화물을 제조할 수 있도록 하는 것이 입증되었다.

산업상 이용 가능성

본 발명의 오가노트리실록산은 우수한 반응성을 가지며 에폭시 수지 등의 경화성 수지에 대하여 탁월한 분산성과 혼화성을 갖기 때문에, 경화성 에폭시 수지 등의 경화성 수지의 개질제로서 사용될 수 있다. 본 발명의 경화성 수지 조성물은 경화성 및 기재에 대한 밀착성이 우수하다. 따라서, 당해 조성물은 전기 및 전자 부품의 밀봉재, 접착제 또는 코팅제로서 사용하기에 적합하다.

도면의 간단한 설명

도 1은 적용 실시예 1에서 제조한 오가노트리실록산의 ^{13}C -NMR 스펙트럼 차트이다.

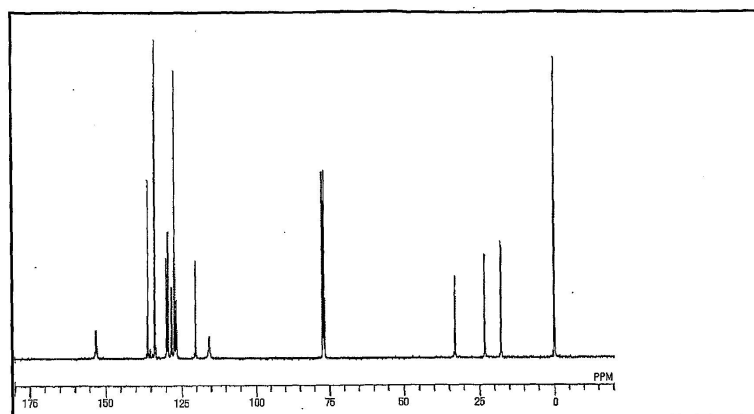
도 2는 적용 실시예 1에서 제조한 오가노트리실록산의 ^{29}Si -NMR 스펙트럼 차트이다.

도 3은 적용 실시예 2에서 제조한 오가노트리실록산의 ^{13}C -NMR 스펙트럼 차트이다.

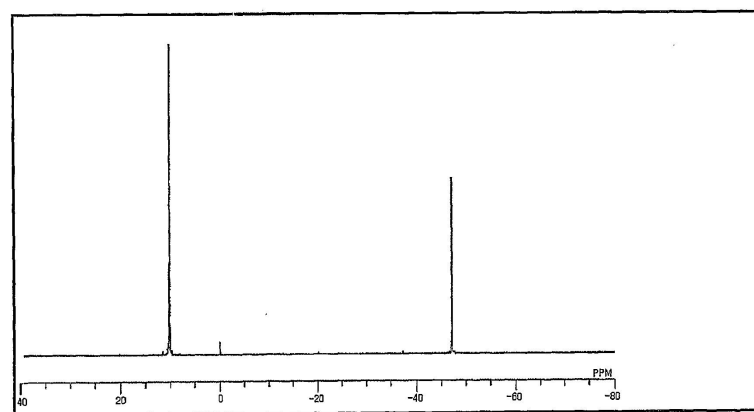
도 4는 적용 실시예 2에서 제조한 오가노트리실록산의 ^{29}Si -NMR 스펙트럼 차트이다.

도면

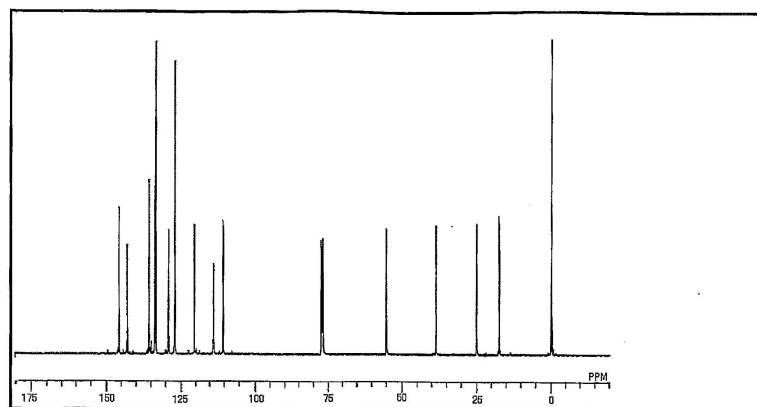
도면1



도면2



도면3



도면4

