



**ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА  
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ**

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ**

(21)(22) Заявка: 2011120270/04, 02.11.2009

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:  
02.11.2009

Приоритет(ы):

(30) Конвенционный приоритет:  
03.11.2008 US 12/263,704

(43) Дата публикации заявки: 27.11.2012 Бюл. № 33

(45) Опубликовано: 20.06.2013 Бюл. № 17

(56) Список документов, цитированных в отчете о  
поиске: CN 101007824 A, 01.08.2007. US  
20090048395 A1, 23.08.2007. RU 2007137027  
A, 20.04.2009.(85) Дата начала рассмотрения заявки РСТ на  
национальной фазе: 23.05.2011(86) Заявка РСТ:  
US 2009/062912 (02.11.2009)(87) Публикация заявки РСТ:  
WO 2010/062709 (03.06.2010)Адрес для переписки:  
105215, Москва, а/я 26, Н.А. Рыбиной

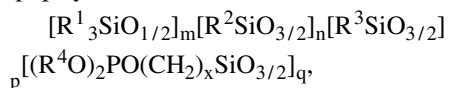
(72) Автор(ы):

**ЛИМ Лиза С. (US),****ПЮН Эуми (US),****РУЛ Иосиф Д. (US)**

(73) Патентообладатель(и):

**ЗМ ИННОВЕЙТИВ ПРОПЕРТИЗ  
КОМПАНИ (US)****(54) ПРОИЗВОДНЫЕ СИЛСЕСКВИОКСАНА, СОДЕРЖАЩИЕ ФОСФОР, ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ В  
КАЧЕСТВЕ ОГНЕСТОЙКИХ ДОБАВОК**

(57) Реферат:

Настоящее изобретение относится к  
огнестойкой добавке - силсесквиоксану  
формулы:где R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> и R<sup>4</sup> представляют собой  
углеводородные группы; x представляет собой  
целое число от 1 до 8; m является  
положительным числом, меньшим, чем 1,5; nи q являются положительными числами,  
превышающими 0 и меньшими, чем 1; и p  
является числом, превышающим или равным 0  
и меньшим, чем 1, где (n+p)/q находится в  
диапазоне от 0,5 до 99 и дополнительно где (n+  
p+q)=1, а также к композициям, включающим  
указанный силсесквиоксан и эпоксидные  
смолы. Предложены новые эффективные  
огнестойкие добавки для эпоксидных смол. 3 н.  
и 12 з.п. ф-лы, 4 табл., 1 пр.



FEDERAL SERVICE  
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(51) Int. Cl.

*C07F* 9/40 (2006.01)*C08G* 59/30 (2006.01)**(12) ABSTRACT OF INVENTION**(21)(22) Application: **2011120270/04, 02.11.2009**(24) Effective date for property rights:  
**02.11.2009**

Priority:

(30) Convention priority:  
**03.11.2008 US 12/263,704**(43) Application published: **27.11.2012 Bull. 33**(45) Date of publication: **20.06.2013 Bull. 17**(85) Commencement of national phase: **23.05.2011**(86) PCT application:  
**US 2009/062912 (02.11.2009)**(87) PCT publication:  
**WO 2010/062709 (03.06.2010)**

Mail address:

**105215, Moskva, a/ja 26, N.A. Rybinov**

(72) Inventor(s):

**LIM Liza S. (US),****PJuN Ehumu (US),****RUL Iosif D. (US)**

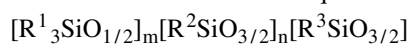
(73) Proprietor(s):

**3M INNOVEJTIV PROPERTIZ KOMPANI (US)****(54) PHOSPHORUS-CONTAINING SILSESQUIOXANE DERIVATIVES USED AS FLAME RETARDANTS**

(57) Abstract:

FIELD: chemistry.

SUBSTANCE: present invention relates to a flame retardant - silsesquioxane of formula:



$$[(R^4O)_2PO(CH_2)_xSiO_{3/2}]_q$$
, where  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  and  $R^4$  are hydrocarbon groups;  $x$  is an integer from 1 to 8;  $m$  is a positive number less than 1.5;  $n$  and  $q$  are

positive numbers greater than 0 and less than 1; and  $p$  is a number greater than or equal to 0 and less than 1, where  $(n+p)/q$  ranges from 0.5 to 99, and additionally where  $(n+p+q)=1$ , as well as compositions which contain said silsesquioxane and epoxy resins.

EFFECT: novel efficient flame retardants for epoxy resins are disclosed.

15 cl, 4 tbl, 1 ex

Область техники, к которой относится изобретение

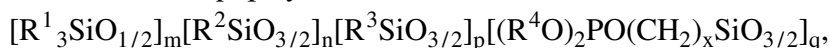
Настоящее изобретение, в общем, относится к огнестойким добавкам и их применению в эпоксидных смолах.

Уровень техники

5 Современные огнестойкие добавки, которые применяют в эпоксидных смолах, имеют ряд проблем. Например, бромированные и другие галогенсодержащие огнестойкие добавки типично образуют токсичные и коррозионные продукты горения. Неорганические гидраты, которые типично разлагаются с образованием  
10 воды, должны быть типично использованы в таких больших количествах, что они негативно влияют на физические свойства эпоксидной смолы. Дополнительно, огнестойкие добавки на основе галогенов были объектом различных регуляторных исследований окружающей среды.

Сущность изобретения

15 Настоящее изобретение обеспечивает силсесквиоксан, содержащий фосфор, представленный формулой



где

20 каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой гидрокарбильную группу;  $x$  представляет собой целое число от 1 до 8;  $m$  является положительным числом, меньшим, чем 1,5;  $n$  и  $q$  являются положительными числами, превышающими 0 и меньшими, чем 1; и  $r$  является числом, превышающим или равным 0 и меньшим, чем 1, где  $(n+p)/q$   
25 находится в диапазоне от 0,5 до 99 и дополнительно где  $(n+p+q)=1$ .

В некоторых осуществлениях, каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой алкильную группу, содержащую от 1 до 8 атомов углерода. В некоторых  
30 осуществлениях, каждый  $R^1$  представляет собой метильную группу, и каждый  $R^2$  и  $R^3$  независимо выбирают из группы, состоящей из метильной группы, циклогексильной группы, цикlopентильной группы и изопропильной группы. В некоторых осуществлениях,  $x$  представляет собой 2. В некоторых осуществлениях, силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в  
35 диапазоне от 500 до 10000 грамм на моль. В некоторых осуществлениях, силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 1000 до 4000 грамм на моль.

Силсесквиоксаны в соответствии с настоящим изобретением являются полезными, например, в качестве огнестойких добавок и особенно полезными в комбинации с  
40 негалогеновыми огнестойкими добавками.

Соответственно, в другом аспекте, настоящее изобретение обеспечивает отверждаемую композицию, содержащую эпоксидную смолу, эффективное количество отвердителя для полиэпоксида, и силсесквиоксан, содержащий фосфор, в соответствии  
45 с настоящим изобретением.

В некоторых осуществлениях, отверждаемая композиция дополнительно содержит эффективное количество отвердителя для термоактивной смолы. В некоторых осуществлениях, термоактивная смола содержит отверждаемую эпоксидную смолу.

В еще одном аспекте, настоящее изобретение обеспечивает отвердевшую  
50 композицию, содержащую термореактивную смолу и силсесквиоксан, содержащий фосфор, в соответствии с настоящим изобретением.

Как используют в данном описании:

"гидрокарбильная группа" относится к одновалентной группе, образованной путем

удаления атома водорода из углеводорода;

"негалогенированный" означает не содержащий атомы галогена;

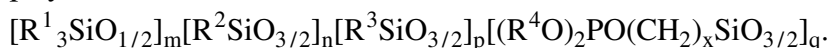
"термоактивный" означает способность к химическому перекрестному сшиванию; и

"термореактивный" означает достаточно химически перекрестно-сшитый, таким образом, что не будет проявлять вязкость расплава.

Подробное описание изобретения

Силсесквиоксаны имеют каркасы, сформированные из Si-O-Si звеньев. Они, в общем, образуются путем конденсации одного или более органосиланов (например, производных триалкоксисилана).

Силсесквиоксаны, в соответствии с настоящим изобретением, представлены формулой



Каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой гидрокарбильную группу. Полезные гидрокарбильные группы включают алифатические группы (например, линейные, циклические и/или разветвленные алкильные группы) и ароматические (например, арильные, аралкильные или алкарильные группы) группы. Иллюстративные гидрокарбильные группы включают: алкильные группы, содержащие от 1 до 8 атомов углерода, такие как, например, метильная, этильная, пропильная, изопропильная, бутильная, пентильная, гексильная, изооктильная, циклогексильная, метилциклогексильная и циклопентильная группы; арильные группы, такие как, например, фенил; аралкильные группы, такие как, например, метилфенильная и этилфенильная группы; и аралкильные группы, такие как фенилэтильная и фенилметильная группы. Такие осуществления, в которых  $R^1$  представляет собой метильную группу, являются типично желаемыми. Аналогично, такие осуществления, в которых  $R^2$  и  $R^3$  независимо представляют метильную группу (группы), циклогексильную группу (группы), циклопентильную группу (группы) и изопропильную группу (группы) являются типично желаемыми, особенно в комбинации с  $R^1$ , который представляет собой метильную группу.

Переменная  $x$  представляет собой целое число от 1 до 8; например, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7 или 8. Те осуществления, в которых  $x$  представляет собой 2, являются типично желаемыми.

Переменная  $m$  представляет собой положительное число (то есть, любое число, превышающее ноль), меньшее, чем 1,5; например, 0,001, 0,01, 0,1, 0,3, 0,5, 0,75, 1, 1,25 или 1,49.

Переменные  $n$  и  $q$  представляют собой положительные числа, превышающие 0 и меньшие, чем 1; например, 0,01, 0,1, 0,3 или 0,5.

Переменная  $p$  представляет собой число, превышающее или равное 0 и меньшее, чем 1; например 0, 0,01, 0,1, 0,3, 0,5, 0,75 или 0,99.

Переменные  $x$ ,  $m$ ,  $n$ ,  $p$  и  $q$  могут быть использованы в любой комбинации при условии двух ограничений:

(1) количество  $(n+p)/q$  находится в диапазоне от 0,5 до 99; и

(2) количество  $(n+p+q)$  равно 1.

Силсесквиоксан, содержащий фосфор, может иметь любую молекулярную массу, соответствующую приведенным выше критериям. Как это типично для силсесквиоксанов, они могут существовать в виде одного соединения или в виде смеси силсесквиоксанов с различными молекулярными массами. В таких случаях, общепринятой практикой в данной области техники является обращение к средней

молекулярной массе (например, среднечисловой молекулярной массе).

Силескквиоксаны, имеющие среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 500 до 10000 грамм на моль (например, от 1000 до 4000 грамм на моль) являются типично особенно приемлемыми для применения в качестве огнестойких добавок в термоактивных смолах.

Силескквиоксаны в соответствии с настоящим изобретением могут быть получены, например, путем конденсации соответствующих триалкоксисиланов, которые могут быть получены в соответствии с известными способами или приобретены из коммерческих источников. В репрезентативном синтезе, производные триалкоксисилана соединяют с муравьиной кислотой и нагревают при повышенной температуре (например, приблизительно 80°C), достаточной для удаления спиртовых побочных продуктов, образованных при конденсации триалкоксисиланов, с получением соответствующего силескквиоксана. Любые остаточные силанольные группы могут быть закрыты на конце  $(\text{CH}_3)_3\text{Si}$ -группами; например, путем добавления гексаметилдисилазана или гексаметилдисилоксана. Летучие вещества (включая любые непрореагировавшие исходные вещества) могут быть удалены путем нагревания в вакууме.

Соответствующие количества n, p и q могут быть проконтролированы путем контроля количества соответствующих триалкоксисиланов.

Силескквиоксаны в соответствии с настоящим изобретением являются полезными, например, в качестве огнестойких добавок и являются особенно полезными в комбинации с негалогенированными огнестойкими добавками, где может быть возможным понизить общее количество по массе огнестойкой добавки, что является необходимым для соответствия стандартным промышленным тестам на замедление распространения пламени; например, с получением UL94-V0 рейтинга для термореактивной смолы (в соответствии со способом UL 94 "Standard for Tests for Flammability of Plastic Materials for Parts in Devices and Appliances", Section 8, 20 mm Vertical Burning Test (обновленным от 22 мая 2001 г.), выданным Underwriters Laboratories, Northbrook, Illinois). Примеры негалогенированных огнестойких добавок включают: бозмит, органобораты, органофосфаты, органофосфиты и органофосфинаты (например, такие, как EXOLIT OP1230 и EXOLIT OP930, доступные от Clariant Corp., Charlotte, North Carolina).

Настоящее изобретение также обеспечивает отверждаемую композицию, содержащую термоактивную смолу, необязательно эффективное количество отвердителя для термоактивной смолы и силескквиоксан, содержащий фосфор, в соответствии с настоящим изобретением. Примеры термоактивных смол включают эпоксидные смолы (однокомпонентные и/или двухкомпонентные), уретановые смолы (однокомпонентные и/или двухкомпонентные), цианатные смолы, фенольные смолы и акриловые смолы. Желательно, для применения в электронике термоактивная смола имеет степень чистоты для электронных применений.

Примеры термоактивных смол включают двухкомпонентную эпоксидную смолу, доступную как 3M SCOTCHCAST ELECTRICAL INSULATING RESIN 4 от 3M Company, Saint Paul, Minnesota. Примеры полезных эпоксидных смол включают 2,2-бис[4-(2,3-эпоксипропокси)-фенил]пропан(диглицидиловый эфир бисфенола А) и вещества, доступные как EPON 828, EPON 1004 и EPON 100 IF, коммерчески доступные от Shell Chemical Co., DER-331, DER-332 и DER-334, коммерчески доступные от Dow Chemical Co. Другие приемлемые эпоксидные смолы включают глицидиловые эфиры фенол-формальдегидного новолака (например, DEN-43 и DEN-428, коммерчески доступные

от Dow Chemical Co.).

Необязательно, термоактивная смола может содержать один или более отвердителей, инициаторов и/или катализаторов (которые вместе в данной заявке имеют название "отвердитель"), типично в количестве, эффективном для химического перекрестного сшивания термоактивной смолы (то есть, эффективное количество отвердителя). Выбор отвердителя и количество для использования будут типично зависеть от типа выбранной термоактивной смолы, и будут хорошо известны специалистам в данной области техники. Иллюстративные отвердители для эпоксидных смол включают амины (включая имидазолы), меркаптаны и кислоты Льюиса.

Силсесквиоксан, содержащий фосфор, может быть применен в любом количестве в отверждаемых и/или отвержденных композициях в соответствии с настоящим изобретением. Например, силсесквиоксан, содержащий фосфор, может присутствовать в количестве в диапазоне от 1 до 20 процентов по массе, типично от 4 до 10 процентов по массе, и более типично 4-8 процента по массе, исходя из общей массы отверждаемой и/или отвержденной композиции.

Отверждаемые композиции могут быть образованы простым смешиванием; однако, в общем желательно применять метод, способный к образованию однородной композиции. В одном методе, огнестойкая добавка и/или силсесквиоксан, содержащий фосфор, смешивают с термоактивной смолой при помощи мешалки с большим сдвиговым усилием, например, высокоскоростной мешалки, доступной как SPEEDMIXER DAC 150FVZ от FlackTek, Inc., Landrum, South Carolina.

Отверждаемые композиции могут быть отверждены, например традиционными способами, хорошо известными в данной области техники, включая смешивание (в случае двухкомпонентных термоактивных смол), нагревание, воздействие актинического или термического излучения, или их любую комбинацию, приводя к получению отвержденной композиции.

Объекты и преимущества настоящего изобретения дополнительно проиллюстрированы при помощи следующих неограничивающих примеров, но конкретные вещества и их количества, приведенные в данных примерах, а также другие условия и подробности проведения не должны быть истолкованы как ненадлежащим образом ограничивающие настоящее изобретение.

#### ПРИМЕРЫ

Если не указано иное, все части, процентные содержания и соотношения и т.д., в Примерах и в остальной части данного описания, приведены по массе.

Вещества, которые применяли в данном примере, перечислены в Таблице 1 (ниже).

ТАБЛИЦА 1	
Гексилтриметоксисилан был получен от TCI America, Portland, Oregon	
Метилтриметоксисилан был получен от Aldrich Chemical Co., Milwaukee, Wisconsin	
Гексаметилдисилоксан, гексаметилдисилазан и муравьиная кислота были получены от Alfa-Aesar Co., Ward Hill, Massachusetts	
Диэтилфосфатэтилтриэтоксисилан был получен от Gelest Inc., Morrisville, Pennsylvania	
SC4 относится к 3M SCOTCHCAST ELECTRICAL INSULATING RESIN 4, которая является двухкомпонентной эпоксидной смолой, полученной от 3M Company, St. Paul, Minnesota	
OP 1230 относится к огнестойкой добавке EXOLIT OP1230 на основе металлоорганосиликатной соли, полученной от Clariant Corp., Charlotte, North Carolina	

#### UL94 20 мм Тест на вертикальное горение

Был использован UL 94 "Standard for Tests for Flammability of Plastic Materials for Parts in Devices and Appliances", Раздел 8, 20 мм Тест на вертикальное горение

(обновленный 8 июня 2000 г.), изданный Underwriters Laboratories, Northbrook, IL, за исключением того, что анализировали только указанное количество репликатов. Суммарные критерии для теста приведены в таблице 2 (ниже).

ТАБЛИЦА 2			
Критерии условий	94V-0	94V-1	94 V-2
Время горения T <sub>1</sub> или T <sub>2</sub>	≤10 секунд	≤30 секунд	≤30 секунд
Время горения T <sub>1</sub> +T <sub>2</sub>	≤50 секунд	≤250 секунд	≤250 секунд
Время тления, T <sub>3</sub>	≤30 секунд	≤60 секунд	≤60 секунд
Сгорел ли образец до удерживающего зажима? Да/Нет	Нет	Нет	Нет
Капали ли с образца горящие частицы, которые поджигали хлопковый индикатор? Да/Нет	Нет	Нет	Да

В Таблице 2 (выше) T<sub>1</sub> относится ко времени остаточного горения после первого воспламенения. T<sub>2</sub> относится ко времени остаточного горения после второго воспламенения. T<sub>3</sub> относится ко времени остаточного тления после второго воспламенения.

Тест на горение на коническом калориметре

Тест на горение на коническом калориметре был произведен в соответствии с ASTM E1354-08, "Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter" (2008). Скорость развития пожара (FIGRA), которая не включена в ASTM E1354-08, была рассчитана как пиковая скорость высвобождения тепла, разделенная на время до пикового высвобождения тепла. Процент уменьшения FIGRA определяли при помощи контрольного образца, который анализировали в тот же день, что и тестовый образец.

Сравнительный пример А

Метилтриметоксисилан (100 грамм, 0,73 моля), гексилтриметоксисилан (151,5 грамма, 0,73 моля) и муравьиную кислоту (202,7 грамма, 4,40 моля) помещали в круглодонную колбу на 1 литр при перемешивании магнитной мешалкой. Колбу нагревали на масляной бане при 70°C в течение 35 минут с отгонкой, собирая летучие побочные продукты. Затем добавляли гексаметилдисилоксан (96 грамм, 0,59 моля) и раствор нагревали на масляной бане при 65°C в течение 50 минут. Затем летучие побочные продукты удаляли в вакууме. Добавляли гексан (200 мл) и гексаметилдисилазан (97 г, 0,60 моля) и раствор фильтровали в вакууме. Летучие компоненты фильтрата удаляли в вакууме, сначала при комнатной температуре, а затем при нагревании на масляной бане при 90°C. Полученный в результате продукт, Сравнительный Силсесквиоксан А, представлял собой вязкую бесцветную жидкость.

<sup>1</sup>H ЯМР анализ соответствовал следующей формуле:

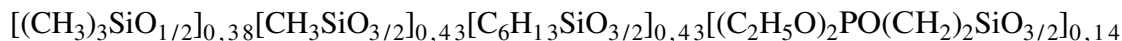


Среднечисловую молекулярную массу измеряли при помощи гелепроникающей хроматографии относительно полистироловых стандартов как 680 грамм/моль.

Пример 1

Метилтриметоксисилан (15 грамм, 0,110 моля), гексилтриметоксисилан (22,7 грамма, 0,110 моля), диэтилфосфатэтилтриэтоксисилан (11,9 грамма, 0,036 моля) и муравьиную кислоту (35,4 грамма, 0,770 моля) соединяли в круглодонной колбе на 250 миллилитров и перемешивали на магнитной мешалке на масляной бане при 80°C с отгонкой летучих побочных продуктов в течение 25 минут. Добавляли гексаметилдисилоксан (32 грамма, 0,197 моля) и смесь перемешивали еще 65 минут на масляной бане при 80°C. Летучие побочные продукты удаляли в вакууме. Затем добавляли гексан (25 г) и гексаметилдисилазан (25 г, 0,155 моля) и раствор

перемешивали в течение 35 минут. Летучие продукты удаляли в вакууме с получением Силсесквиоксана 1 в виде вязкой бесцветной жидкости.  $^1\text{H}$  ЯМР анализ соответствовал формуле:



Среднечисловую молекулярную массу измеряли при помощи GPC относительно полистироловых стандартов как 1600 грамм/моль.

Анализ замедления распространения пламени

Получали различные термоактивные композиции, которые анализировали в соответствии с UL94, 20 мм Тест на вертикальное горение, путем сочетания указанной огнестойкой добавки (добавок) в SC4 эпоксидной смоле в количествах, указанных в Таблицах 3 и 4 (ниже). Все композиции, указанные в Таблице 3 (ниже) имели  $T_3=0$  секунд, не сгорали до удерживающего зажима и не поджигали хлопок, как в UL 94 выше. Все параметры в Таблице 4 являются такими, как определено в ASTM E1354-08, за исключением FIGRA (колонка 7 в Таблице 4). FIGRA = скорость развития пожара и рассчитана как пиковая скорость высвобождения тепла (колонка 5 в Таблице 4), разделенная на время до пикового высвобождения тепла (колонка 6 в Таблице 4). Уменьшение FIGRA в Таблице 4 является разницей в процентах FIGRA для каждой строки по сравнению с контрольными 100 частями SC4 (строка 1). В Таблице 4, МДж = мегаджоули;  $\text{м}^2$  = квадратный метр и кВт = киловатты. Измерения на коническом калориметре были произведены с известной ошибкой порядка +/-10 процентов.

ТАБЛИЦА 3

ПРИМЕР	ТЕРМОАКТИВНАЯ КОМПОЗИЦИЯ	РЕПЛИКАТ	UL94, 20 мм Тест на вертикальное горение	
			Капает?	Соответствует/Не соответствует V0-V2
Сравнительный пример В1	94 части SC4, 6 частей ОР 1230	1	Нет	Не соответствует
		2	Нет	Не соответствует
		3	Нет	Не соответствует
		4	Нет	Не соответствует
Сравнительный пример В2	93 части SC4, 7 частей ОР 1230	1	Нет	Не соответствует
		2	Нет	V1
Сравнительный пример В3	92 части SC4, 8 частей ОР 1230	1	Нет	V1
		2	Нет	V1
Сравнительный пример С	93 части SC4, 6 частей ОР 1230, 1 часть Сравнительного Силсесквиоксана А	1	Нет	V1
		2	Нет	V0
Пример 2	93 части SC4, 6 частей ОР 1230, 1 часть Силсесквиоксана 1	1	Нет	V0
		2	Нет	V0
Пример 3	99 частей SC4, 1 часть Силсесквиоксана 1	1	Нет	Не соответствует
		2	Нет	Не соответствует
Пример 4	93 части SC4, 7 частей Силсесквиоксана 1	1	Нет	Не соответствует
		2	Нет	V1

ТАБЛИЦА 4

Пример	Термоактивная композиция	Общее высвобождение тепла, МДж/м <sup>2</sup>	Средняя скорость высвобождения тепла, кВт/м <sup>2</sup>	Пиковая скорость высвобождения тепла, кВт/м <sup>2</sup>	Пик при времени, секунд	FIGRA	Процент уменьшения FIGRA
Сравнительный пример D	100 частей SC4	175	920	2006	145	13,83	0,0
Сравнительный пример В1	94 части SC4, 6 частей ОР 1230	150	484	707	205	3,45	75,6



5	Сравнительный пример В2	93 части SC4, 7 частей ОР 1230	133	408	852	215	3,96	71,6
	Сравнительный пример В3	92 части SC4, 8 частей ОР 1230	129	389	710	230	3,09	77,8
10	Сравнительный пример С	93 части SC4, 6 частей ОР 1230, 1 часть Сравнительного Силсесквиоксана А	150	698	1379	155	8,90	37,1
	Пример 2	93 части SC4, 6 частей ОР 1230, 1 часть Силсесквиоксана 1,1% S-2	145	425	639	210	3,04	78,0
15	Пример 3	99 частей SC4, 1 часть Силсесквиоксана 1	162	662	1515	165	9,18	34,1
20	Пример 4	93 части SC4, 7 частей Силсесквиоксана 1	155	378	613	110	5,57	60,0

Все патенты и публикации, процитированные в данной заявке, настоящим полностью включены в данную заявку путем ссылки. Различные модификации и изменения настоящего изобретения могут быть произведены специалистами в данной области техники, не выходя за объем и суть настоящего изобретения, и должно быть понятно, что настоящее изобретение не должно быть ненадлежащим образом ограничено иллюстративными осуществлениями, приведенными в данной заявке.

#### Формула изобретения

1. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, представленный формулой  $[R^1_3SiO_{1/2}]_m[R^2SiO_{3/2}]_n[R^3SiO_{3/2}]_p[(R^4O)_2PO(CH_2)_xSiO_{3/2}]_q$ , где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой гидрокарбильную группу;

$x$  представляет собой целое число от 1 до 8;  
 $m$  является положительным числом, меньшим, чем 1,5;  
 $n$  и  $q$  являются положительными числами, превышающими 0 и меньшими, чем 1; и  
 $p$  является числом, превышающим или равным 0 и меньшим, чем 1, где  $(n+p)/q$  находится в диапазоне от 0,5 до 99, и дополнительно где  $(n+p+q)=1$ .

2. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, по п.1, где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  независимо представляет собой алкильную группу, содержащую от 1 до 8 атомов углерода.

3. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, по п.1, где каждый  $R^1$  представляет собой метильную группу; и каждый  $R^2$  и  $R^3$  независимо выбран из группы, состоящей из метильной группы и изопропильной группы.

4. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, по п.3, где  $x$  представляет собой 2.

5. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, по п.1, где силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 500 до 10000 грамм на моль.

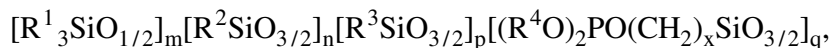
6. Силсесквиоксан, содержащий фосфор, по п.1, где силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 1000 до 4000

грамм на моль.

7. Отверждаемая композиция, содержащая:

термоактивную смолу; и

силсесквиоксан, содержащий фосфор, представленный формулой



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой гидрокарбильную группу;

$x$  представляет собой целое число от 1 до 8;

$m$  является положительным числом, меньшим, чем 1,5;

$n$  и  $q$  являются положительными числами, превышающими 0 и меньшими, чем 1;

и  $p$  является числом, превышающим или равным 0 и меньшим, чем 1, где  $(n+p)/q$  находится в диапазоне от 0,5 до 99, и дополнительно где  $(n+p+q)=1$ .

8. Отверждаемая композиция по п.7, дополнительно содержащая эффективное количество отвердителя для термоактивной смолы.

9. Отверждаемая композиция по п.7, в которой термоактивная смола содержит отверждаемую эпоксидную смолу.

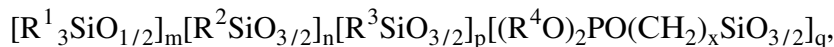
10. Отверждаемая композиция по п.7, в которой каждый  $R^1$  представляет собой метильную группу; и каждый  $R^2$  и  $R^3$  независимо выбран из группы, состоящей из метильной группы и изопропильной группы, и  $x$  представляет собой 2.

11. Отверждаемая композиция по п.7, в которой силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 500 до 10000 грамм на моль.

12. Отвержденная композиция, содержащая:

термореактивную смолу; и

силсесквиоксан, содержащий фосфор, представленный формулой



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  и  $R^4$  независимо представляет собой гидрокарбильную группу;

$x$  представляет собой целое число от 1 до 8;

$m$  является положительным числом, меньшим, чем 1,5;

$n$  и  $q$  являются положительными числами, превышающими 0 и меньшими, чем 1; и

$p$  является числом, превышающим или равным 0 и меньшим, чем 1, где  $(n+p)/q$  находится в диапазоне от 0,5 до 99, и дополнительно где  $(n+p+q)=1$ .

13. Отвержденная композиция по п.12, в которой термоактивная смола содержит отвержденную эпоксидную смолу.

14. Отвержденная композиция по п.12, в которой каждый  $R^1$  представляет собой метильную группу; и каждый  $R^2$  и  $R^3$  независимо выбран из группы, состоящей из метильной группы и изопропильной группы, и  $x$  представляет собой 2.

15. Отвержденная композиция по п.12, в которой силсесквиоксан, содержащий фосфор, имеет среднечисловую молекулярную массу в диапазоне от 500 до 10000 грамм на моль.