



- (51) 국제특허분류:
C08L 83/05 (2006.01) C08G 77/12 (2006.01)
C08L 83/07 (2006.01) C08G 77/20 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2014/011394
- (22) 국제출원일: 2014년 11월 26일 (26.11.2014)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2014-0081295 2014년 6월 30일 (30.06.2014) KR
- (71) 출원인: 삼성에스디아이 주식회사 (SAMSUNG SDI CO., LTD.) [KR/KR]; 446-902 경기도 용인시 기흥구 공세로 150-20, Gyeonggi-do (KR).
- (72) 발명자: 백윤희 (BAEK, Yun-Hee); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR). 김우한 (KIM, Woo-Han); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR). 고상란 (KOH, Sang-Ran); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR). 김진교 (KIM, Jin-Gyo); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR). 김철수 (KIM, Cheol-Su); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR). 안치원 (AN, Chi-Won); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR).

(KR). 주영재 (JOO, Young-Jae); 443-803 경기도 수원시 영통구 삼성로 130, Gyeonggi-do (KR).

(74) 대리인: 팬코리아특허법인 (PANKOREA PATENT AND LAW FIRM); 135-933 서울시 강남구 논현로 85길 70, 13층, Seoul (KR).

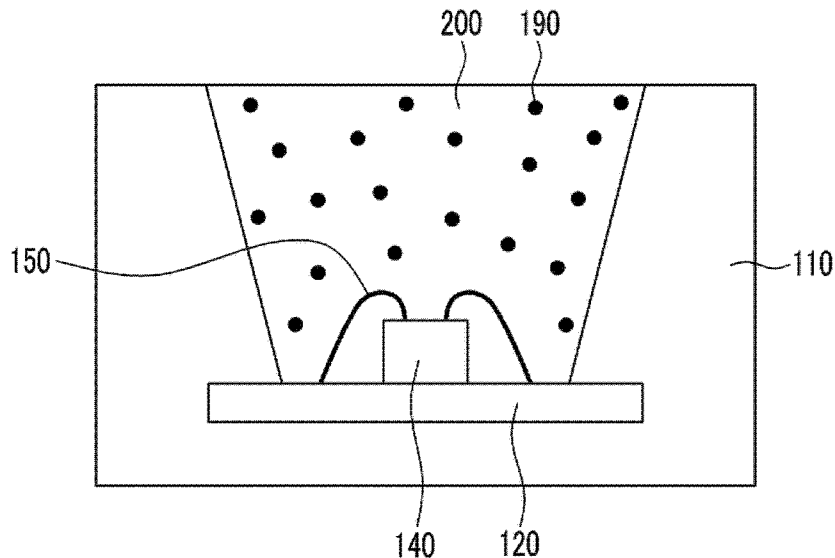
(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[다음 쪽 계속]

(54) Title: CURABLE POLYORGANOSILOXANE COMPOSITION, SEALING MEMBER, AND OPTICAL DEVICE

(54) 발명의 명칭: 경화형 폴리오르가노실록산 조성물, 봉지재, 및 광학기기



(57) Abstract: Provided are a curable polysiloxane composition, a sealing member obtained by curing the composition, and an optical device comprising the sealing member, wherein the composition contains at least one first siloxane compound having a silicon-bound alkenyl (Si-Vi) group and at least one second siloxane compound having silicon-bound hydrogen (Si-H), the first siloxane compound including a siloxane compound represented by chemical formula 1 below: [chemical formula 1] $(R^7R^8R^9SiO_{1/2})_{M1}(R^{10}R^{11}-SiO_{2/2})_{D3}(R^{12}SiO_{3/2})_{T1}(SiO_{3/2}-Y^3-SiO_{3/2})_{T2}(SiO_{4/2})_{Q1}$, wherein in chemical formula 1, R^7 to R^{12} , Y^3 , $M1$, $D3$, $T1$, $T2$, and $Q1$ are defined as in the specification.

(57) 요약서:

[다음 쪽 계속]

**공개:**

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제 1 실록산 화합물, 및 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 적어도 1 종의 제 2 실록산 화합물을 포함하고, 상기 제 1 실록산 화합물은 하기 화학식 1로 표시되는 실록산 화합물을 포함하는 경화형 폴리실록산 조성물, 상기 조성물을 경화하여 얻은 봉지재, 및 상기 봉지재를 포함하는 광학기기를 제공한다: [화학식 1] $(R^7R^8R^9SiO_{1/2})_{M1}(R^{10}R^{11}SiO_{2/2})_{D3}(R^{12}SiO_{3/2})_{T1}(SiO_{3/2}-Y^3-SiO_{3/2})_{T2}(SiO_{4/2})_{Q1}$ 상기 화학식 1에서, R^7 내지 R^{12} , Y^3 , M1, D3, T1, T2, 및 Q1에 대한 정의는 명세서에서 정의한 것과 같다.

명세서

발명의 명칭: 경화형 폴리오르가노실록산 조성물, 봉지재, 및 광학기기

기술분야

- [1] 경화형 폴리오르가노실록산 조성물, 봉지재, 및 상기 봉지재를 포함하는 광학기기에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 발광 다이오드(light emitting diode, LED), 유기 발광 장치(organic light emitting diode device, OLED device) 및 광 루미네선스 소자(photoluminescence device, PL device) 등의 광학 기기는 가정용 가전 제품, 실내외 조명 장치, 표시 장치, 및 각종 자동화 기기 등의 다양한 분야에서 응용되고 있다.
- [3] 이들 광학 기기는 광학 소자를 보호하기 위하여 봉지재와 같은 밀봉 패키지를 포함할 수 있다. 이러한 밀봉 패키지는 광학소자로부터 방출된 빛이 외부로 통과할 수 있도록 투광성 수지를 포함하는 조성물로부터 만들어질 수 있다.
- [4] 한편, 공정 수율을 개선하기 위해 밀봉 패키지가 적용된 제품들은 유사한 색 좌표 상에 존재하는 것이 중요하다. 또한 밀봉 패키지가 노출되는 환경적인 요인에 의해 황에 의한 변색이 발생하는 경우 휘도가 급격하게 저하될 수 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [5] 일 구현예는, 우수한 내황성 및 고내열 특성을 지닌 경화형 폴리실록산 조성물을 제공한다.
- [6] 다른 구현예는 상기 조성물을 경화하여 얻은 봉지재를 제공한다.
- [7] 또 다른 구현예는 상기 봉지재를 포함하는 광학기기를 제공한다.

과제 해결 수단

- [8] 일 구현예는, (A) 하기 화학식 1로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제1 실록산 화합물, 및 (B) 하기 화학식 2로 표시되는, 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 적어도 1 종의 제2 실록산 화합물을 포함하는 경화형 폴리실록산 조성물을 제공한다:
- [9] [화학식 1]
- [10] $(R^7R^8R^9SiO_{1/2})_{M1}(R^{10}R^{11}SiO_{2/2})_{D3}(R^{12}SiO_{3/2})_{T1}(SiO_{3/2}-Y^3-SiO_{3/2})_{T2}(SiO_{4/2})_{Q1}$
- [11] 상기 화학식 1에서,
- [12] R^7 내지 R^{12} 는 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30

- 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알킬닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, R(C=O)- (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [13] R⁷ 내지 R¹² 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,
- [14] Y³은 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알킬닐렌기, 또는 이들의 조합이고,
- [15] 0<M1<1, 0≤D3<1, 0≤T1<1, 0<T2≤0.01, 0<Q1<0.20 이고,
- [16] M1+D3+T1+T2+Q1=1이다.
- [17] 상기 R⁷ 내지 R¹² 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다.
- [18] [화학식 2]
- [19] (R¹⁵R¹⁶R¹⁷SiO_{1/2})_{M2}(R¹⁸R¹⁹SiO_{2/2})_{D4}(R²⁰SiO_{3/2})_{T3}(SiO_{3/2}-Y⁴-SiO_{3/2})_{T4}(SiO_{4/2})_{Q2}
- [20] 상기 화학식 2에서,
- [21] R¹⁵ 내지 R²⁰은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알킬닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, R(C=O)- (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [22] R¹⁵ 내지 R²⁰ 중 적어도 하나는 수소를 포함하고,
- [23] Y⁴는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알킬닐렌기, 또는 이들의 조합이고,
- [24] 0<M2<1, 0≤D4<1, 0≤T3<1, 0≤T4<1, 0≤Q2<1이고,
- [25] M2+D4+T3+T4+Q2=1이다.
- [26] 상기 R¹⁵ 내지 R²⁰ 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를

포함할 수 있다.

- [27] 상기 제1 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 제2 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함될 수 있다.
- [28] 상기 조성물은 하기 화학식 3으로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제3 실록산 화합물을 더 포함할 수 있다:
- [29] [화학식 3]
- [30] $(R^{21}R^{22}R^{23}SiO_{1/2})_{M3}(R^{24}R^{25}SiO_{2/2})_{D5}(R^{26}SiO_{3/2})_{T5}(SiO_{3/2}-Y^5-SiO_{3/2})_{T6}(SiO_{4/2})_{Q3}$
- [31] 상기 화학식 3에서,
- [32] R^{21} 내지 R^{26} 은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, R(C=O)- (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [33] R^{21} 내지 R^{26} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,
- [34] Y^5 는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알키닐렌기, 또는 이들의 조합이고,
- [35] $0 < M3 < 1$, $0 \leq D5 < 1$, $0 \leq T5 < 1$, $0 \leq T6 < 1$, $0 \leq Q3 < 1$ 이고,
- [36] $M3 + D5 + T5 + T6 + Q3 = 1$ 이다.
- [37] 상기 화학식 3의 화합물이 포함되는 경우, 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량의 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 화학식 2의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함될 수 있다.
- [38] 이 때, 상기 화학식 3의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량을 기준으로 약 50 중량% 내지 약 90 중량%의 함량으로 포함될 수 있다.

- [39] 다른 구현예에 따르면, 상기 조성물을 경화하여 얻은 봉지재를 제공한다.
 [40] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 봉지재를 포함하는 광학기기를 제공한다.

발명의 효과

- [41] 상기 화학식 1로 표시되는 실록산 화합물을 포함함으로써, 이를 경화시켜 제조되는 경화물은 치밀한 네트워크 구조를 가지며, 이로 인해 외부 오염물질의 침투가 효과적으로 방지되고 내황성 및 내습성이 개선된 경화물을 얻을 수 있다. 또한, 상기 경화물은 고온 내열성이 향상되어 고온에서의 크랙 발생이 감소되고, 또한 황에 의한 변색이 방지되어 신뢰성이 증가할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [42] 도 1은 일 구현예에 따른 발광 다이오드를 개략적으로 도시한 단면도이다.
 [43] 도 2는 실시예 1 내지 실시예 3 및 비교예 1 내지 비교예 4에 따른 조성물을 각각 경화시켜 제조한 시편을 180°C에서 500 시간 작동시킨 후 각 시편의 외관을 나타낸 사진이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

- [44] 이하, 본 발명의 구현예에 대하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 구현예에 한정되지 않는다.
- [45] 본 명세서에서 별도의 정의가 없는 한, '치환된'이란, 화합물 중의 수소 원자가 할로젠 원자(F, Br, Cl, 또는 I), 히드록시기, 알콕시기, 니트로기, 시아노기, 아미노기, 아지도기, 아미디노기, 히드라지노기, 히드라조노기, 카르보닐기, 카르바밀기, 티올기, 에스테르기, 카르복실기나 그의 염, 술폰산기나 그의 염, 인산이나 그의 염, C1 내지 C20 알킬기, C2 내지 C20 알케닐기, C2 내지 C20 알키닐기, C6 내지 C30 아릴기, C7 내지 C30 아릴알킬기, C1 내지 C30 알콕시기, C1 내지 C20 헤테로알킬기, C3 내지 C20 헤테로아릴알킬기, C3 내지 C30 사이클로알킬기, C3 내지 C15의 사이클로알케닐기, C6 내지 C15 사이클로알키닐기, C3 내지 C30 헤테로사이클로알킬기 및 이들의 조합에서 선택된 치환기로 치환된 것을 의미한다.
- [46] 또한, 본 명세서에서 별도의 정의가 없는 한, '헤테로'란, N, O, S 및 P에서 선택된 헤테로 원자를 1 내지 3개 함유한 것을 의미한다.
- [47] 이하, 일 구현예에 따른 봉지재 조성물에 대하여 설명한다.
- [48] (A) 하기 화학식 1로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제1 실록산 화합물, 및 (B) 하기 화학식 2로 표시되는, 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 적어도 1 종의 제2 실록산 화합물을 포함하는 경화형 폴리실록산 조성물을 제공한다:
- [49] [화학식 1]
- [50] $(R^7R^8R^9SiO_{1/2})_{M1}(R^{10}R^{11}SiO_{2/2})_{D3}(R^{12}SiO_{3/2})_{T1}(SiO_{3/2}-Y^3-SiO_{3/2})_{T2}(SiO_{4/2})_{Q1}$

- [51] 상기 화학식 1에서,
- [52] R^7 내지 R^{12} 는 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, $R(C=O)-$ (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [53] R^7 내지 R^{12} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,
- [54] Y^3 는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알키닐렌기, 또는 이들의 조합이고,
- [55] $0 < M1 < 1$, $0 \leq D3 < 1$, $0 \leq T1 < 1$, $0 < T2 < 0.01$, $0 < Q1 < 0.20$ 이고,
- [56] $M1 + D3 + T1 + T2 + Q1 = 1$ 이다.
- [57] 상기 R^7 내지 R^{12} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다.
- [58] [화학식 2]
- [59] $(R^{15}R^{16}R^{17}SiO_{1/2})_{M2}(R^{18}R^{19}SiO_{2/2})_{D4}(R^{20}SiO_{3/2})_{T3}(SiO_{3/2}-Y^4-SiO_{3/2})_{T4}(SiO_{4/2})_{Q2}$
- [60] 상기 화학식 2에서,
- [61] R^{15} 내지 R^{20} 은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, $R(C=O)-$ (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [62] R^{15} 내지 R^{20} 중 적어도 하나는 수소를 포함하고,
- [63] Y^4 는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환

또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알킬닐렌기, 또는 이들의 조합이고,

[64] $0 < M2 < 1, 0 \leq D4 < 1, 0 \leq T3 < 1, 0 \leq T4 < 1, 0 \leq Q2 < 1$ 이고,

[65] $M2 + D4 + T3 + T4 + Q2 = 1$ 이다.

[66] 상기 R¹⁵ 내지 R²⁰ 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다.

[67] 발광다이오드(LED)는 기존 발광원에 비해 높은 에너지 효율, 장수명, 고속응답 등의 장점을 가져 휴대전화기, LCD 백라이트를 넘어 일반 조명에까지 상용화되어 오늘날 전자 산업을 이끌고 있다. 백색 LED의 고휘도 고출력화의 진행으로 종전의 내열성이 부족한 에폭시는 실리콘 재료로 대체되고 있다.

[68] LED는 발광 실현을 위해 패키지가 필요하고, 여기에는 기계적 보호용 하우징, LED 칩, 형광체, 접착제, 봉지재, 방열성 부품 등이 있는데, 봉지재가 LED 칩을 싸고 있다. 칩 발생 광에너지 중 약 15% 만이 광으로 출력되고, 나머지는 봉지재 등에서 흡수된다. 최근 고휘도 고출력화 추세에 LED는 고온에서 작동하며, 이에 봉지재의 내열성이 요구된다. 또한, 봉지재는 고에너지의 단파장 빛에 의한 황변 저항이 커야 하며, 흡습 및 열팽창계수가 적어야 한다. 또한, LED 광이 칩 밖으로 추출되기 위해 봉지재와 칩과의 계면에서 전반사가 없도록 봉지재의 굴절률은 칩의 굴절률보다 높아야 한다. 패키지의 방열판 등 열관리 설계 개선에도 한계가 있으므로 봉지재는 열전도성이 높아야 한다. 낮은 내열성을 가지며 단파장에 의해 황변되고 흡습성이 높은 종래의 에폭시 수지는 저출력에 사용되며, 더 높은 출력의 백색광에는 실리콘 재료로 대체되고 있다. 압력 및 습기에 대해서는 세라믹 또는 금속의 기밀 봉지가 좋으나, 이들 재료는 양산에 부적합하다.

[69] 상기 구현에는 높은 내열성 및 내광성을 유지하면서도 내균열성이 현저히 개선되어 발광 소자의 안정성을 확보하고, 또한 내황성이 개선되어 공정성 및 신뢰성을 개선할 수 있는 고휘도의 폴리오르가노 실록산 조성물을 제공한다.

[70] 상기 구현에 따른 조성물은 폴리오르가노 실록산 조성물을 구성하는 경화형 실록산 화합물을 포함하되, 상기 실록산 화합물이 상기 화학식 1에서 T2로 표시한 구조단위 및 Q1으로 표시한 구조 단위를 각각 일정 함량 포함하는 것을 특징으로 한다.

[71] 봉지재용 경화형 폴리오르가노 실록산 조성물을 제조함에 있어서, 상기 화학식 1에서 T1으로 표시한 것과 같은 3 차원 망상 구조를 가지는 실록산 화합물을 포함함으로써 상기 화합물의 치밀한 구조에 의해 경화시 상기 조성물의 경도를 증가시키고, 이로 인해 제조되는 봉지재의 내황성 및 내습성 등을 개선하고자 하는 시도가 있어 왔다. 그러나, 그로부터 제조되는 봉지재는 상온 모듈러스가 증가할 뿐만 아니라 고온 모듈러스 역시 매우 높음에 따라, 고온에서 봉지재 표면에 크랙이 발생하는 문제가 있었다. 즉, 고온에서의 열충격 특성이 낮은 문제가 있었다. 이에 따라, 봉지재의 내황성 등을 개선하기 위한 목적에서

상기와 같은 구조 단위를 포함하는 실록산 화합물의 첨가량은 제한될 수 밖에 없었다.

[72] 본 발명자 등은 상기 화학식 1로 표시한 것과 같이, T2 및 Q1이 각각 0 보다 큰 화합물, 즉, T2 및 Q1으로 각각 표시되는 구조 단위를 포함하는 실록산 화합물을 경화시켜 얻어지는 폴리오르가노 실록산 조성물이 상온 모듈러스가 매우 높은 반면 고온 모듈러스는 감소하고, 이로 인해 제조되는 봉지재의 내황성 및 내습성 등이 유지되면서도, 고온에서 봉지재에 크랙이 발생하는 문제를 해결할 수 있음을 발견하였다.

[73] 구체적으로, 상기 화학식 1에서, $0 < T2 < 0.01$, 및 $0 < Q1 < 0.2$ 를 충족하는 상기 화학식 1의 화합물은, 이들 구조 단위를 포함하지 않고, T1 구조를 포함하는 실록산 화합물을 경화시켜 얻어지는 경화물에 비해 고온 모듈러스의 감소로 인한 열충격 내성이 증가하고, 그로 인한 고온에서의 크랙 발생율이 감소하게 된다.

[74] 반면, 상기 조성물은 상기 T2 및 Q1 구조의 특이한 조합으로 인해 분자 구조가 치밀한 망상 구조를 형성하고, 이로 인해 외부로부터의 오염 물질과 수분의 침투를 차단하고, 아울러, 고온 공정에서 발생하는 황의 침투도 차단함으로써, 우수한 내황성, 및 그로 인한 발광 소자 등 광학 기기의 고휘도 및 색산포 특성을 유지할 수 있다.

[75] 상기 화학식 1에서, T2의 범위는, 예를 들어, $0 < T2 < 0.01$, 예를 들어 $0.0001 \leq T2 \leq 0.009$, 예를 들어, $0.0003 \leq T2 \leq 0.009$, 예를 들어, $0.0005 \leq T2 \leq 0.008$, 예를 들어, $0.001 \leq T2 \leq 0.007$, 예를 들어, $0.001 \leq T2 \leq 0.006$, 및 예를 들어, $0.002 \leq T2 \leq 0.005$ 일 수 있다.

[76] 상기 화학식 1에서, Q1의 범위는, 예를 들어, $0 < Q1 < 0.2$, 예를 들어 $0.001 \leq Q1 < 0.19$, 예를 들어, $0.003 \leq Q1 \leq 0.18$, 예를 들어, $0.005 \leq Q1 \leq 0.17$, 예를 들어, $0.007 \leq Q1 \leq 0.16$, 예를 들어, $0.01 \leq Q1 \leq 0.15$, 예를 들어, $0.03 \leq Q1 \leq 0.15$, $0.05 \leq Q1 \leq 0.15$, 예를 들어, $0.07 \leq Q1 \leq 0.15$, 예를 들어, $0.10 \leq Q1 \leq 0.15$, 예를 들어, $0.12 \leq Q1 \leq 0.15$, 및 예를 들어, $0.13 \leq Q1 \leq 0.15$ 일 수 있다.

[77] 화학식 1에서, 상기 T2 및 Q1으로 표시되는 구조 단위들이 각각 상기한 범위 내로 포함됨으로써, 이들을 포함하는 화합물을 경화시켜 얻어지는 폴리오르가노 실록산 화합물의 구조가 치밀하면서도 고온에서의 모듈러스는 감소하여, 우수한 내황성 및 고온 내열성을 유지할 수 있다.

[78] 상기 T2 및 Q1으로 표시되는 구조 단위 중 어느 하나라도 상기한 함량 미만으로 포함되는 경우, 상기한 고온 내열성 및 내황성 효과가 미미할 수 있고, 상기 함량 이상으로 포함되더라도, 더 이상 고온 내열성 및 내황성이 개선되지 않을 수 있다. 특히, 상기 Q1으로 표시되는 구조 단위를 제공하기 위해 도입되는 전구체 화합물의 경우, 상기 최대 함량 이상으로 존재하는 경우, 조성물 내에서 분산되지 않고 응집될 수 있다. 이는 균일한 색 분산성 및 투명성을 요하는 상기 조성물에 불리한 영향을 미칠 수 있다.

- [79] 한편, 상기 제1 실록산 화합물은 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 화합물로서, 예컨대 분자당 평균 2개 이상의 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가질 수 있다. 상기 제1 실록산 화합물의 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)는, 상기 화학식 2로 표시되는, 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 제2 실록산 화합물의 상기 규소 결합된 수소(Si-H)와 반응할 수 있다.
- [80] 상기 제1 실록산 화합물은, 예컨대 $R^7R^8R^9SiZ^1$ 로 표현되는 모노머와, $Z^7Z^8Z^9Si-Y^3-SiZ^{10}Z^{11}Z^{12}$ 로 표현되는 모노머, 및 $SiZ^{13}Z^{14}Z^{15}Z^{16}$ 으로 표현되는 모노머를 가수분해 및 축중합하여 얻을 수 있다. 또한, 상기 제1 실록산 화합물은, $R^{10}R^{11}SiZ^2Z^3$ 으로 표현되는 모노머 및 $R^{12}SiZ^4Z^5Z^6$ 으로 표현되는 모노머 중 하나 이상을 더 포함하여 축중합할 수도 있다. 여기서 R^7 내지 R^{12} 의 정의는 전술한 바와 같고, Z^1 내지 Z^{16} 은, 각각 독립적으로, C1 내지 C6 알콕시기, 히드록시기, 할로젠기, 카르복실기 또는 이들의 조합이다.
- [81] 상기 R^7 내지 R^{12} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다. 이에 따라 굴절률을 높여 광학적 특성을 확보할 수 있다.
- [82] 상기 제1 실록산 화합물은 1종 또는 서로 다른 2종 이상이 함께 사용될 수 있다.
- [83] 상기 제2 실록산 화합물은 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 화합물로서, 예컨대 분자당 평균 2개 이상의 규소 결합된 수소(Si-H)를 가질 수 있다. 상기 규소 결합된 수소(Si-H)는 상기 제1 실록산 화합물의 상기 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)와 반응할 수 있다.
- [84] 상기 제2 실록산은, 예컨대 $R^{15}R^{16}R^{17}SiZ^{17}$ 로 표현되는 모노머와 $R^{18}R^{19}SiZ^{18}Z^{19}$ 으로 표현되는 모노머, $R^{20}SiZ^{20}Z^{21}Z^{22}$ 로 표현되는 모노머, $Z^{23}Z^{24}Z^{25}Si-Y^4-SiZ^{26}Z^{27}Z^{28}$ 로 표현되는 모노머, 및 $SiZ^{29}Z^{30}Z^{31}Z^{32}$ 로 표현되는 모노머에서 선택된 적어도 하나를 가수분해 및 축중합하여 얻을 수 있다. 여기서 R^{15} 내지 R^{20} 의 정의는 전술한 바와 같고, Z^{17} 내지 Z^{32} 는, 각각 독립적으로, C1 내지 C6 알콕시기, 히드록시기, 할로젠기, 카르복실기 또는 이들의 조합이다.
- [85] 상기 R^{15} 내지 R^{20} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다. 이에 따라 굴절률을 높여 광학적 특성을 확보할 수 있다.
- [86] 상기 제2 실록산 화합물은 1종 또는 서로 다른 2종 이상이 함께 사용될 수 있다.
- [87] 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물은 수소규소화 반응을 할 수 있고, 따라서, 상기 조성물의 경화 시 분자량이 보다 크고 치밀한 폴리실록산 구조를 형성함으로써 외부로부터의 수분과 가스로부터 발광 소자를 보호할 수 있다.
- [88] 상기 제1 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 제2 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함될 수 있다.
- [89] 한편, 상기 조성물은 하기 화학식 3으로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제3 실록산 화합물을 더 포함할 수 있다:

- [90] [화학식 3]
- [91] $(R^{21}R^{22}R^{23}SiO_{1/2})_{M3}(R^{24}R^{25}SiO_{2/2})_{D5}(R^{26}SiO_{3/2})_{T5}(SiO_{3/2}-Y^5-SiO_{3/2})_{T6}(SiO_{4/2})_{Q3}$
- [92] 상기 화학식 3에서,
- [93] R^{21} 내지 R^{26} 은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, $R(C=O)-$ (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,
- [94]
- [95] $*R^{21}$ 내지 R^{26} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,
- [96] Y^5 는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알키닐렌기, 또는 이들의 조합이고,
- [97] $0 < M3 < 1, 0 \leq D5 < 1, 0 \leq T5 < 1, 0 \leq T6 < 1, 0 \leq Q3 < 1$ 이고,
- [98] $M3 + D5 + T5 + T6 + Q3 = 1$ 이다.
- [99] 상기 제3 실록산 화합물은 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 화합물로서, 예컨대 분자당 평균 2개 이상의 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가질 수 있다. 상기 제3 실록산 화합물의 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)는, 상기 제1 실록산 화합물과 마찬가지로, 상기 화학식 2로 표시되는, 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 제2 실록산 화합물의 상기 규소 결합된 수소(Si-H)와 반응할 수 있다.
- [100] 상기 제3 실록산 화합물은, 예컨대 $R^{21}R^{22}R^{23}SiZ^{33}$ 로 표현되는 모노머와 $R^{24}R^{25}SiZ^{34}Z^{35}$ 로 표현되는 모노머, $R^{26}SiZ^{36}Z^{37}Z^{38}$ 로 표현되는 모노머, $Z^{39}Z^{40}Z^{41}Si-Y^5-SiZ^{42}Z^{43}Z^{44}$ 로 표현되는 모노머, 및 $SiZ^{45}Z^{46}Z^{47}Z^{48}$ 로 표현되는 모노머에서 선택된 적어도 하나를 가수분해 및 축중합하여 얻을 수 있다. 여기서 R^{21} 내지 R^{26} 의 정의는 전술한 바와 같고, Z^{33} 내지 Z^{48} 은 각각 독립적으로 C1 내지 C6 알콕시기, 히드록시기, 할로젠기, 카르복실기 또는 이들의 조합이다.
- [101] 상기 R^{21} 내지 R^{26} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함할 수 있다. 이에 따라 굴절률을 높여 광학적 특성을 확보할 수 있다.
- [102] 상기 제3 실록산 화합물은 1종 또는 서로 다른 2종 이상이 함께 사용될 수 있다.
- [103] 상기 화학식 3의 화합물이 포함되는 경우, 상기 화학식 1의 화합물과 상기

화학식 3의 화합물의 총 함량은 상기 화학식 1의 화합물, 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3 화합물의 총 함량의 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 화학식 2의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함될 수 있다.

[104] 이 때, 상기 화학식 3의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량을 기준으로 약 50 중량% 내지 약 90 중량%, 바람직하게 약 70 중량% 내지 약 90 중량%의 함량으로 포함될 수 있다.

[105] 상기 제1 실록산 화합물, 상기 제2 실록산 화합물, 및 상기 제3 실록산 화합물 각각의 중량평균분자량은 약 100 g/mol 내지 약 30,000 g/mol 일 수 있다.

[106] 상기 조성물은 수소규소화 촉매를 더 포함할 수 있다.

[107] 상기 수소규소화 촉매는 상기 제1 실록산 화합물 및/또는 상기 제3 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 수소규소화 반응을 촉진시킬 수 있으며, 예컨대 백금, 로듐, 팔라듐, 루테튬, 이리듐 또는 이들의 조합을 포함할 수 있다.

[108] 상기 수소규소화 촉매는 상기 경화형 폴리오르가노실록산 조성물의 총 함량에 대하여 약 0.1 ppm 내지 1,000 ppm 으로 포함될 수 있다.

[109] 상기 조성물은 또한 형광체를 더 포함할 수 있다.

[110] 상기 형광체는 LED 소자에 장착되는 광원과 반응하여 상기 소자가 백색 또는 백색 외의 원하는 색을 발현할 수 있게 하는 것이면 어떤 것이라도 사용 가능하며, 당해 분야에서 널리 알려진 형광체, 예를 들어, YAG, $(\text{Sr}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 등을 사용할 수 있다. 사용 가능한 형광체는 이들에 제한되지 않는다.

[111] 상기 조성물이 형광체를 포함하는 경우, 상기 형광체는 상기 조성물의 전체 함량 대비 약 5 중량% 내지 약 40 중량%, 예를 들어 약 10 중량% 내지 약 30 중량%의 범위로 포함될 수 있으며, 상기 함량 범위에 제한되지 않는다. 상기 형광체의 함량은 형광체의 종류 및 원하는 발광 정도에 따라 적절히 조절될 수 있다.

[112] 상기 경화형 폴리오르가노실록산 조성물은 경화후 약 4 mm 정도의 두께로 경화시킨 시편의 450 nm 파장에서의 투과도가 약 90% 이상, 예를 들어 약 95% 이상일 수 있다. 상기 투과도 범위는 발광소자의 색을 효율적으로 전달할 수 있는 범위로서, 상기 구현예에 따른 봉지재 조성물이 발광소자에 사용되기에 적절한 것임을 알 수 있다.

[113] 또한, 상기 조성물은 i-라인(589 nm)에서의 경화 전 굴절율이 1.40 이상, 예를 들어, 1.45 이상, 예를 들어 1.50 이상일 수 있다. LED 칩으로부터 나오는 빛의 세기를 향상시키기 위해서는 봉지재의 경화 후 굴절률이 1.50 이상인 것이 바람직하다. 상기 봉지재 조성물은 경화 후 굴절률이 상기한 범위를 충족할 수 있다.

- [114] 상기 조성물은 경화 후 25°C에서의 모듈러스가 약 50 내지 600 이고, 125°C에서의 모듈러스는 약 1.0 내지 3.5 이다. 상기 범위의 상온 모듈러스를 가지는 경우, 상온에서 경도가 매우 높아 외부로부터의 오염 물질, 습기, 및 황 가스 등의 침투를 방지하기에 효과적이고, 상기 범위의 고온 모듈러스를 갖는 경우, 이후 실시예에 나타낸 바와 같이, 고온에서의 열처리 시에도 패키지 표면에 크랙이 발생하지 않는다.
- [115] 상기 조성물은 소정 온도에서 열처리하여 경화함으로써 봉지재(encapsulant)로 사용될 수 있다. 상기 봉지재는 예컨대 발광 다이오드 및 유기 발광 장치와 같은 광학 소자에 적용될 수 있다.
- [116] 이하 봉지재를 적용한 전자 소자의 일 예로서 일 구현예에 따른 발광 다이오드를 도 1을 참고하여 설명한다.
- [117] 도 1은 일 구현예에 따른 발광 다이오드를 개략적으로 도시한 단면도이다.
- [118] 도 1을 참고하면, 발광 다이오드는 몰드(110); 몰드(110) 내에 배치된 리드 프레임(120); 리드 프레임(120) 상에 실장되어 있는 발광 다이오드 칩(140); 리드 프레임(120)과 발광 다이오드 칩(140)을 연결하는 본딩 와이어(150); 발광 다이오드 칩(140)을 덮고 있는 봉지재(200)를 포함한다.
- [119] 봉지재(200)는 전술한 봉지재 조성물을 경화하여 얻어진다. 봉지재(200)는 전술한 봉지재 조성물로부터 형성됨으로써 발광 다이오드 칩(140)을 효과적으로 보호할 수 있고 발광 다이오드의 성능이 저하되는 것을 방지할 수 있다.
- [120] 봉지재(200)에는 형광체(190)가 분산되어 있을 수 있다. 형광체(190)는 빛에 의해 자극되어 스스로 고유한 파장 범위의 빛을 내는 물질을 포함하며, 넓은 의미로 반도체 나노결정(semiconductor nanocrystal)과 같은 양자점(quantum dot)도 포함한다. 형광체(190)는 예컨대 청색 형광체, 녹색 형광체 또는 적색 형광체일 수 있으며, 두 종류 이상이 혼합되어 있을 수 있다.
- [121] 형광체(190)는 발광부인 발광 다이오드 칩(140)에서 공급하는 빛에 의해 소정 파장 영역의 색을 표시할 수 있으며, 이 때 발광 다이오드 칩(140)은 형광체(190)에서 표시하는 색보다 단파장 영역의 색을 표시할 수 있다. 예컨대 형광체(190)가 적색을 표시하는 경우, 발광 다이오드 칩(140)은 상기 적색보다 단파장 영역인 청색 또는 녹색의 빛을 공급할 수 있다.
- [122] 또한 발광 다이오드 칩(140)에서 내는 색 및 형광체(190)에서 내는 색을 조합하여 백색을 표시할 수 있다. 예컨대 발광 다이오드 칩(140)은 청색의 빛을 공급하고 형광체(190)는 적색 형광체 및 녹색 형광체를 포함하는 경우, 상기 전자 소자는 청색, 적색 및 녹색을 조합하여 백색을 표시할 수 있다.
- [123] 형광체(190)는 생략될 수 있다.
- [124] 이하 실시예를 통하여 상술한 본 발명의 구현예를 보다 상세하게 설명한다. 다만 하기의 실시예는 단지 설명의 목적을 위한 것이며 본 발명의 범위를 제한하는 것은 아니다.

발명의 실시를 위한 형태

[125] (실시예)

[126] 합성예 1 내지 합성예 5: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조

[127] 합성예 1: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조

[128] 물과 톨루엔을 5:5 중량비로 혼합한 혼합용매 1 kg을 3구 플라스크에 투입한 후 23°C로 유지하고 교반하면서, 하기 표 1의 합성예 1에 기재된 각각의 모노머들을 표 1의 합성예 1에 기재된 몰% 비로 혼합한 혼합물 300 g을 2 시간에 걸쳐 적하하였다. 적하가 완료된 후 90°C로 3 시간 가열 환류하면서 축중합 반응을 수행하였다. 이어서 실온으로 냉각한 후 물층을 제거하여 톨루엔에 용해된 고분자 용액을 제조하였다. 얻어진 고분자 용액을 물로 세정하여 반응 부산물인 염소를 제거하였다. 이어서 중성인 고분자 용액을 감압증류하여 톨루엔을 제거하고, 하기 화학식 4로 표현되는 제1 실록산 화합물을 얻었다. 상기 화합물을 GPC (gel permeation chromatography)로 분자량을 측정된 결과, 폴리스티렌 표준시료로 환산된 분자량이 10,000 g/mole 이었고, H-NMR, Si-NMR, 및 원소분석기로 분석하여 하기 화학식 4의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Y=dipodal, Si=silicon)

[129] [화학식 4]

[130] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.05}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.939}(\text{SiO}_{3/2}\text{-Y-SiO}_{3/2})_{0.001}(\text{SiO}_{4/2})_{0.01}$

[131]

[132] 합성예 2: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조

[133] 모노머들을 하기 표 1에 기재된 합성예 2의 몰%비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 상기 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 5로 나타내어지는 폴리실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정된 결과, 화학식 5의 화합물의 분자량은 15,000 g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 5의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Y=dipodal, Si=silicon)

[134] [화학식 5]

[135] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.043}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.906}(\text{SiO}_{3/2}\text{-Y-SiO}_{3/2})_{0.001}(\text{SiO}_{4/2})_{0.05}$

[136]

[137] 합성예 3: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조

[138] 모노머들을 하기 표 1의 합성예 3에 기재된 몰% 비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 상기 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 6으로 나타내어지는 폴리실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정된 결과 하기 화학식 6의 화합물의 분자량은 19,000g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 6의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Y=dipodal, Si=silicon)

[139] [화학식 6]

[140] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.037}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.862}(\text{SiO}_{3/2}\text{-Y-SiO}_{3/2})_{0.001}(\text{SiO}_{4/2})_{0.10}$

[141]

[142] **합성예 4: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조**

[143] 모노머들을 하기 표 1의 합성예 4에 기재된 몰% 비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 7로 나타내어지는 폴리페닐실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정한 결과, 화학식 7 화합물의 분자량은 6,000 g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 7의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Si=silicon)

[144] [화학식 7]

[145] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.06}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.94}$

[146]

[147] **합성예 5: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조**

[148] 모노머들을 하기 표 1의 합성예 5에 기재된 몰% 비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 8로 나타내어지는 폴리페닐실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정한 결과, 화학식 8 화합물의 분자량은 8,000 g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 8의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Si=silicon)

[149] [화학식 8]

[150] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.05}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.85}(\text{SiO}_{4/2})_{0.10}$

[151]

[152] **합성예 6: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조**

[153] 모노머들을 하기 표 1의 합성예 6에 기재된 몰% 비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 9로 나타내어지는 폴리페닐실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정한 결과, 화학식 9 화합물의 분자량은 6,500 g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 9의 구조를 확인하였다. (Me=methyl, Ph=phenyl, Vi=vinyl, Y=dipodal, Si=silicon)

[154] [화학식 9]

[155] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.149}(\text{PhMeSiO}_{2/2})_{0.85}(\text{SiO}_{3/2}\text{-Y-SiO}_{3/2})_{0.001}$

[156]

[157] **합성예 7: 규소 결합 알케닐기(Si-Vi) 포함 실록산 화합물의 제조**

[158] 모노머들을 하기 표 1의 합성예 7에 기재된 몰% 비에 따라 혼합한 것을 제외하고는 합성예 1과 동일한 방법으로 제조하여, 평균 조성식이 하기 화학식 10으로 나타내어지는 폴리페닐실록산을 얻었다. 합성예 1과 동일한 방법으로 분자량을 측정한 결과, 화학식 10 화합물의 분자량은 1,300 g/mole 이었고, 합성예 1과 동일한 방법으로 하기 화학식 10의 구조를 확인하였다. (Me=methyl,

Ph=phenyl, Vi=vinyl, Si=silicon)

[159] [화학식 10]

[160] $(\text{Me}_2\text{ViSiO}_{1/2})_{0.20}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.80}$

[161] 표 1

[Table 1]

	합성예 1	합성예 2	합성예 3	합성예 4	합성예 5	합성예 6	합성예 7
Phenylmethyldichlorosilane	93.9	90.6	86.2	94.0	85.0	85.0	-
bis(trichlorosilyl)methane	0.1	0.1	0.1	-	-	0.1	-
Vinyltrimethylchlorosilane	5.0	4.3	3.7	6.0	5.0	14.9	20.0
Tetramethoxysilane	1.0	5.0	10.0	-	10.0	-	-
Phenyltrichlorosilane	-	-	-	-	-	-	80.0

[162] (각 성분의 함량 단위는 mol% 임)

[163]

[164] **합성예 8: 규소 결합 수소(Si-H) 포함 실록산 화합물**

[165] Biogen社로부터 구입한 하기 화학식 11로 표시되는 화합물을 오르가노하이드로젠 실록산 화합물로 사용한다.

[166] [화학식 11]

[167] $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.2}(\text{Phe}_2\text{SiO}_{2/2})_{0.8}$

[168]

[169] 실시예 1 내지 3 및 비교예 1 내지 4: 경화형 폴리오르가노실록산 조성물 및 이를 이용한 발광소자의 제조

[170] 상기 합성예 1 내지 합성예 7에서 제조된 실록산 화합물과, 합성예 8에서 제조된 실록산 화합물, 및 수소규소화 촉매인 Pt-CS 2.0(Unicore 사 제품)를 하기 표 2에 기재된 함량(중량부)으로 혼합한 후, 진공 탈포하여 기포를 제거하여, 실시예 1 내지 실시예 3, 및 비교예 1 내지 비교예 4에 따른 액상 폴리오르가노실록산 조성물을 제조한다. 그 후, 상기 실시예 및 비교예에 따른 조성물을 150°C의 오븐에서 2 시간 동안 가열하여 경화물을 얻는다.

[171] 얻어진 경화물의 굴절률, 25°C 및 125°C에서의 모듈러스, 황에 의한 휘도 감소%, 및 고온내열성(열화율%) 등의 측정 결과도 하기 표 2에 기재한다.

[172] 표 2

[Table 2]

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	비교예 1	비교예 2	비교예3	비교예 4
합성예 1 (화학식 4)	15						
합성예 2 (화학식 5)		15					
합성예 3 (화학식 6)			15				
합성예 4 (화학식 7)				15			
합성예 5 (화학식 8)					15		
합성예 6 (화학식 9)						15	
합성예 7 (화학식 10)	65	65	65	65	65	65	76
합성예 8 (화학식 11)	20	20	20	20	20	20	24
Pt 촉매 (ppm)	5	5	5	5	5	5	5
점도 (cP)	5,000	6,000	8,000	3,200	7,500	3,500	5,000
경화 조건	150°C/2시간						
굴절률	1.53	1.53	1.53	1.53	1.53	1.53	1.53
25°C 모듈러스	300	380	500	200	400	230	500
125°C 모듈러스	2.0	2.2	2.5	2.0	2.3	2.0	Crack 측정불 가
Sulfur 휘도 drop%	-6.0	-5.6	-5.0	-10.0	-5.2	-8.0	-5.0
고온내열성 (열화율%)T% @450nm (@180°C*500hr)	-1.2	-0.8	-0.5	-4.5	-2.0	-4.0	-4.5

[173] 상기 표 2의 각 측정치는 다음과 같은 방법으로 측정하였다.

[174] 굴절율: 경화 전 액상 조성물을 Abbe 굴절율계를 사용하여 D-line(589nm) 파장 하에서 측정하였다.

[175] 점도: 액상 조성물의 점도는 Brookfield(DV-II+pro) spindle 52번을 사용하여, 23°C에서 Torque 90%일 때의 점도 값을 측정하였다.

[176] 고온 내열성 관련 투과도: 경화물의 내열성을 평가하기 위해 1 mm 두께의 경화물 시편을 제조한 후, UV-spectrophotometer(시마즈사 UV-3600)를 사용하여 450 nm 파장에서의 투과도를 측정하였다. 180°C 오븐에 투입하기 전 초기치를 측정하고, 초기치 대비 열화 시간에 따른 투과도 감소율을 측정하였다.

- [177] **황변 신뢰성:** 경화전 액상 조성물을 형광체와 함께 비커에 계량 및 혼합 후 탈포하고, LED 패키지 안에 상기 혼합된 조성물과 형광체를 도포한다. 상기 도포된 패키지를 경화 오븐에 넣고 150°C에서 2 시간 열경화시킨다. 경화 완료 후 상온으로 냉각시킨 다음 패키지의 초기 휘도를 측정한다. 그 후, 250 ml 유리병에 K_2S 0.7g과 H_2O 50g으로 구성된 황 혼합물을 넣고, 상기 유리병 상단에 상기 조립된 LED 패키지를 하단의 황 혼합물과 접촉되지 않도록 매단다. 50°C 물 중탕에 상기 패키지와 황이 담긴 유리병을 넣고, 초기 0 시간, 및 8 시간에 패키지 5 개씩의 휘도를 측정하고 평균치를 확인한다. 최종 결과는 8 시간 경과 후 휘도 값이 초기 휘도 값 대비 얼마나 낮아졌는지로 산출한다.
- [178] **모듈러스:** 경화 시편을 가로 10.1 mm, 세로 17.5 mm, 높이 4.0 mm 로 제작한 후, -50°C부터 250°C까지 분당 20°C로 승온하면서 DMA-Q800 장비로 측정하였으며, 상온 25°C, 및 고온 125°C를 기준으로 modulus 값을 산출한다.
- [179] 상기 표 2로부터 알 수 있는 바와 같이, 본 구현예의 화학식 1에 따른 실록산 화합물을 포함하는 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물을 경화시킨 경화물은 비교예 1 내지 4의 조성물을 경화시킨 경화물에 비해 고온내열성이 높다. 즉, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물을 경화시킨 경화물은 180°C에서 500 시간 작동시킨 경우 450 nm 에서의 투과도 저하가 -2% 미만임에 반해, 비교예 1 내지 4의 조성물로부터 제조된 경화물은 -2.0% 내지 -4.5%까지 투과도가 감소되었다. 상기 결과는 첨부된 도 2로부터도 알 수 있다. 즉, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물을 경화시킨 경화물을 180°C에서 500 시간 작동시킨 후 시편의 외관(각각 (a) 내지 (c))에 비해 비교예 1 내지 4에 따른 시편(각각 (d) 내지 (g))의 외관이 노랗게 변하였음을 알 수 있다.
- [180] 한편, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물을 경화시킨 경화물의 상온(25°C) 모듈러스는 비교예 1 또는 비교예 3에 비해 대체로 높은 반면, 고온(125°C) 모듈러스는 2.0 MPa 내지 2.5 MPa로 비교예 1 내지 비교예 3과 동일한 수준으로 낮게 유지된다. 즉, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물을 경화시킨 경화물은 상온에서는 높은 경도를 나타내어 수분, 습기, 황 등의 침투를 방지하면서도 고온에서 경화물 표면에 크랙이 발생하지 않도록 낮은 모듈러스를 유지한다. 이에 따라, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물로부터 제조된 경화물은 상기한 황변 신뢰성 측정 방법에 의해 측정한 황에 의한 휘도 저하가 -5.0% 내지 -6.0% 인데 반해, 비교예 1 내지 비교예 3은 황에 의한 휘도 저하가 -5.0% 초과, -10.0%까지 나타난다. 즉, 실시예 1 내지 실시예 3에 따른 조성물로부터 제조된 경화물의 황변 신뢰성이 높음을 알 수 있다.
- [181] 한편, 비교예 4와 같이 기존의 T 구조를 갖는 실록산을 포함하는 것만으로는 상온 모듈러스 뿐만 아니라 고온 모듈러스도 높아지는 문제가 있으며, 이로 인해 125°C에서 표면에 크랙이 발생하여 모듈러스의 측정이 불가능하였다. 본 구현예에 따른 조성물을 사용함으로써 이와 같은 문제를 개선할 수 있음을 알 수 있다.

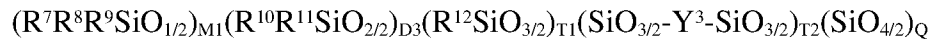
- [182] 즉, 본 구현예에 따른 조성물은 상온 및 고온 모듈러스가 모두 우수하여 상온에서의 습기, 가스, 및 황의 침투를 방지하는 효과가 우수하며, 이로 인해 황변 신뢰성이 높고, 동시에 고온에서의 열충격에 대한 내성이 향상된다. 또한 상기 조성물은 고온 내열성이 증가하여 고온에서 장시간 작동 후에도 투과도의 저하가 낮고, 이로 인해 우수한 봉지재로 제공될 수 있음을 알 수 있다.
- [183] 이상 본 발명의 바람직한 실시예들에 대해 상세히 설명하였지만, 본 발명의 권리 범위는 이에 한정되는 것이 아니고, 다음의 특허청구범위에서 정의하고 있는 본 발명의 기본 개념을 이용한 당업자의 여러 변형 및 개량 형태 또한 본 발명의 권리 범위에 속하는 것이다.

청구범위

[청구항 1]

(A) 하기 화학식 1로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제1 실록산 화합물, 및 (B) 하기 화학식 2로 표시되는, 규소 결합된 수소(Si-H)를 가지는 적어도 1 종의 제2 실록산 화합물을 포함하는 경화형 폴리실록산 조성물:

[화학식 1]



1

{상기 화학식 1에서,

R^7 내지 R^{12} 는 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, $R(C=O)-$ (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,

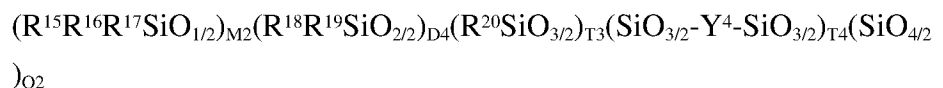
R^7 내지 R^{12} 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,

Y^3 은 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알키닐렌기, 또는 이들의 조합이고,

$0 < M1 < 1$, $0 \leq D3 < 1$, $0 \leq T1 < 1$, $0 < T2 < 0.01$, $0 < Q1 < 0.20$ 이고,

$M1 + D3 + T1 + T2 + Q1 = 1$ 이다.}

[화학식 2]



{상기 화학식 2에서,

R^{15} 내지 R^{20} 은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환

또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알키닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, R(C=O)- (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,

R¹⁵ 내지 R²⁰ 중 적어도 하나는 수소를 포함하고,

Y⁴는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알키닐렌기, 또는 이들의 조합이고,

$0 < M2 < 1$, $0 \leq D4 < 1$, $0 \leq T3 < 1$, $0 \leq T4 < 1$, $0 \leq Q2 < 1$ 이고,

$M2 + D4 + T3 + T4 + Q2 = 1$ 이다.}.

[청구항 2]

제1항에서,

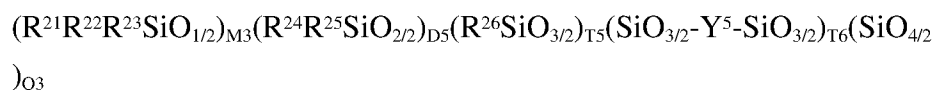
상기 T1 은 0.0001 이상 0.009 이하이고, 상기 Q1은 0.001 이상 0.19 이하인 조성물.

[청구항 3]

제1항에서,

하기 화학식 3으로 표시되는, 규소 결합된 알케닐기(Si-Vi)를 가지는 적어도 1 종의 제3 실록산 화합물을 더 포함하는 조성물:

[화학식 3]



{상기 화학식 3에서,

R²¹ 내지 R²⁶은 각각 독립적으로 수소, 하이드록시, 할로젠, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기, 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30 아릴알킬기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 헤테로알킬기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 헤테로사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C32 내지 C30 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기, 치환

또는 비치환된 C2 내지 C30 알킬닐기, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C30 알콕시기, R(C=O)- (여기서 R은 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20의 알킬기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C30의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 C7 내지 C30의 아릴알킬기), 또는 이들의 조합이고,

R²¹ 내지 R²⁶ 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C2 내지 C30 알케닐기를 포함하고,

Y⁵는 단일결합, 치환 또는 비치환된 C1 내지 C20 알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C3 내지 C20 사이클로알킬렌기, 치환 또는 비치환된 C6 내지 C20 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 헤테로아릴렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알케닐렌기, 치환 또는 비치환된 C2 내지 C20 알킬닐렌기, 또는 이들의 조합이고,

$0 < M3 < 1$, $0 \leq D5 < 1$, $0 \leq T5 < 1$, $0 \leq T6 < 1$, $0 \leq Q3 < 1$ 이고,

$M3 + D5 + T5 + T6 + Q3 = 1$ 이다}.

[청구항 4]

제1항에서,

상기 R⁷ 내지 R¹² 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함하는 조성물.

[청구항 5]

제1항에서,

상기 R¹⁵ 내지 R²⁰ 중 적어도 하나는 치환 또는 비치환된 C6 내지 C30 아릴기를 포함하는 조성물.

[청구항 6]

제1항에서,

상기 제1 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 제2 실록산 화합물은 상기 제1 실록산 화합물과 상기 제2 실록산 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함되는 조성물.

[청구항 7]

제3항에서,

상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 3의 화합물의 함량은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량의 약 50 중량% 초과로 포함될 수 있고, 상기 화학식 2의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물, 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량에 대하여 약 50 중량% 미만으로 포함되는 조성물.

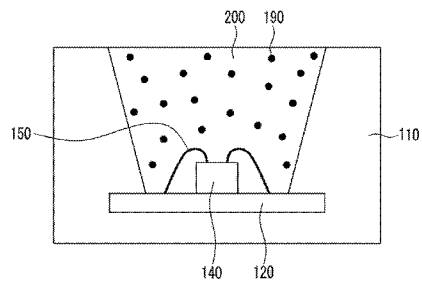
[청구항 8]

제3항에서,

상기 화학식 3의 화합물은 상기 화학식 1의 화합물과 상기 화학식 2의 화합물, 및 상기 화학식 3의 화합물의 총 함량을 기준으로 약

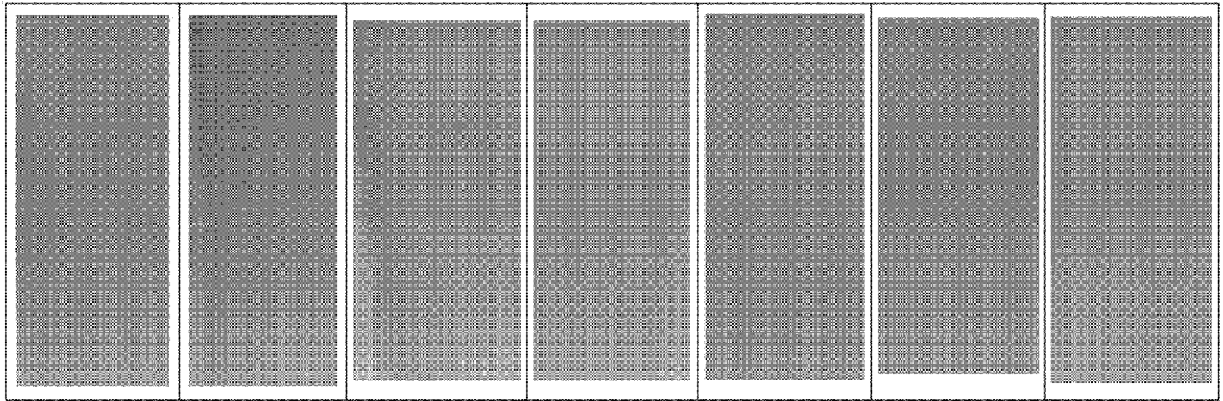
- [청구항 9] 50 중량% 내지 약 90 중량%의 함량으로 포함되는 조성물.
제1항의 조성물을 경화하여 얻은 봉지재.
- [청구항 10] 제9항의 봉지재를 포함하는 광학 기기.

[Fig. 1]



[Fig. 2]

(a) (b) (c) (d) (e) (f) (g)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2014/011394**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****C08L 83/05(2006.01)i, C08L 83/07(2006.01)i, C08G 77/12(2006.01)i, C08G 77/20(2006.01)i***

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L 83/05; C09K 3/10; C08L 83/07; C08K 3/16; C08G 77/04; C08L 83/04; C08K 5/5415; H05B 33/04; C08G 77/20; C08G 77/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above
Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as aboveElectronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: encapsulant, LED, polysiloxane, alkenyl, hydrogen, hardening**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2014-0074241 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 17 June 2014 See abstract; and claims 1, 15-17, 19, 20.	1-10
A	KR 10-2012-0125194 A (LG CHEM, LTD.) 14 November 2012 See abstract; and claims 1, 16-19.	1-10
A	KR 10-2012-0078614 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 10 July 2012 See abstract; and claims 1, 3-5, 7, 12, 13.	1-10
A	JP 2006-299099 A (SHINETSU CHEMICAL CO.) 02 November 2006 See abstract; and claims 1, 8, 9.	1-10
A	JP 2010-248413 A (SHINETSU CHEMICAL CO.) 04 November 2010 See abstract; and claims 1-3.	1-10



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

25 MARCH 2015 (25.03.2015)

Date of mailing of the international search report

26 MARCH 2015 (26.03.2015)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2014/011394

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2014-0074241 A	17/06/2014	WO 2014-088370 A1	12/06/2014
KR 10-2012-0125194 A	14/11/2012	CN 103649227 A	19/03/2014
		EP 2706095 A2	12/03/2014
		US 2014-0128555 A1	08/05/2014
		WO 2012-150850 A2	08/11/2012
		WO 2012-150850 A3	21/03/2013
KR 10-2012-0078614 A	10/07/2012	CN 102585512 A	18/07/2012
		JP 2012-140622 A	26/07/2012
		US 2012-0168780 A1	05/07/2012
		US 2014-0357792 A1	04/12/2014
		US 8847414 B2	30/09/2014
JP 2006-299099 A	02/11/2006	JP 04636242 B2	23/02/2011
JP 2010-248413 A	04/11/2010	JP 05414337 B2	12/02/2014

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C08L 83/05(2006.01)i, C08L 83/07(2006.01)i, C08G 77/12(2006.01)i, C08G 77/20(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C08L 83/05; C09K 3/10; C08L 83/07; C08K 3/16; C08G 77/04; C08L 83/04; C08K 5/5415; H05B 33/04; C08G 77/20; C08G 77/12

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 봉지재, LED, 폴리실록산, 알케닐, 수소, 경화

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	KR 10-2014-0074241 A (제일모직주식회사) 2014.06.17 요약; 및 청구항 1, 15-17, 19, 20 참조.	1-10
A	KR 10-2012-0125194 A (주식회사 엘지화학) 2012.11.14 요약; 및 청구항 1, 16-19 참조.	1-10
A	KR 10-2012-0078614 A (제일모직주식회사) 2012.07.10 요약; 및 청구항 1, 3-5, 7, 12, 13 참조.	1-10
A	JP 2006-299099 A (신에츠 화학공업 주식회사) 2006.11.02 요약; 및 청구항 1, 8, 9 참조.	1-10
A	JP 2010-248413 A (신에츠 화학공업 주식회사) 2010.11.04 요약; 및 청구항 1-3 참조.	1-10

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일

2015년 03월 25일 (25.03.2015)

국제조사보고서 발송일

2015년 03월 26일 (26.03.2015)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



대한민국 특허청

(302-701) 대전광역시 서구 청사로 189,

4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 ++82 42 472 7140

심사관

장봉호

전화번호 +82-42-481-3353



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2014-0074241 A	2014/06/17	WO 2014-088370 A1	2014/06/12
KR 10-2012-0125194 A	2012/11/14	CN 103649227 A	2014/03/19
		EP 2706095 A2	2014/03/12
		US 2014-0128555 A1	2014/05/08
		WO 2012-150850 A2	2012/11/08
		WO 2012-150850 A3	2013/03/21
KR 10-2012-0078614 A	2012/07/10	CN 102585512 A	2012/07/18
		JP 2012-140622 A	2012/07/26
		US 2012-0168780 A1	2012/07/05
		US 2014-0357792 A1	2014/12/04
		US 8847414 B2	2014/09/30
JP 2006-299099 A	2006/11/02	JP 04636242 B2	2011/02/23
JP 2010-248413 A	2010/11/04	JP 05414337 B2	2014/02/12