



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2012년05월23일
(11) 등록번호 10-1147639
(24) 등록일자 2012년05월14일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/06 (2006.01) C08L 83/04 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2006-7011172
(22) 출원일자(국제) 2004년11월04일
심사청구일자 2009년10월19일
(85) 번역문제출일자 2006년06월07일
(65) 공개번호 10-2007-0007255
(43) 공개일자 2007년01월15일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2004/016716
(87) 국제공개번호 WO 2005/044920
국제공개일자 2005년05월19일
(30) 우선권주장
JP-P-2003-00378521 2003년11월07일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
W02003072656 A1
US20030010962 A1
JP소화63006084 A
전체 청구항 수 : 총 10 항

(73) 특허권자
다우 코닝 도레이 캄파니 리미티드
일본국 도쿄도 100-0004 치요다쿠 오테마치
1-1-5
(72) 발명자
모리타 요시쓰구
일본 치바켄 이치하라시 치구사가이간 2-2
이시키 미노루
일본 치바켄 이치하라시 치구사가이간 2-2
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
장훈

심사관 : 김란

(54) 발명의 명칭 **경화성 실리콘 조성물 및 이의 경화된 제품**

(57) 요약

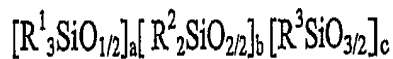
본 발명은

(A) 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 화학식 1의 실록산 단위의 오가노폴리실록산,

(B) 페놀성 하이드록실 그룹을 함유하는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 직쇄 오가노폴리실록산 및

(C) 경화 촉진제를 포함하는 경화성 실리콘 조성물에 관한 것이다.

화학식 1



위의 화학식 1에서,

R¹, R² 및 R³은 1가 유기 그룹이고, 이들 중 2개 이상이 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹이고,

R³의 20mole% 이상은 아릴 그룹이고,

a, b 및 c의 합은 1이고,

a는 평균 0 ≤ a ≤ 0.8이고,

b는 평균 0 ≤ b ≤ 0.8이고,

c는 평균 0.2 ≤ c ≤ 1.0이다.

(72) 발명자

우에키 히로시

일본 치바켄 이치하라시 치구사가이간 2-2

도가시 아쓰시

미국 미시간주 48640 미들랜드 메이필드 랜드 309

특허청구의 범위

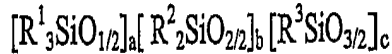
청구항 1

(A) 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 화학식 1의 실록산 단위의 오가노폴리실록산,

(B) 페놀성 하이드록실 그룹을 함유하는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 화학식 2의 직쇄 오가노폴리실록산 및

(C) 경화 촉진제를 포함하는 경화성 실리콘 조성물.

화학식 1



위의 화학식 1에서,

R^1 , R^2 및 R^3 은 알킬 그룹, 아릴 그룹, 아르알킬 그룹 및 할로젠-치환된 알킬 그룹으로 이루어진 그룹으로부터 선택된 탄소수 1 내지 20의 1가 유기 그룹, 또는 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 그룹으로서 2-글리시독시에틸, 3-글리시독시프로필, 4-글리시독시부틸, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸, 3-(3,4-에폭시사이클로헥실)프로필, 2-(3,4-에폭시노르보르네닐)에틸 및 2-(3,4-에폭시-3-메틸사이클로헥실)-2-메틸에틸 그룹으로 이루어진 그룹으로부터 선택된 1가 유기 그룹인데, R^1 내지 R^3 중 2개 이상이 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹이고,

R^3 의 20mole% 이상은 아릴 그룹이고,

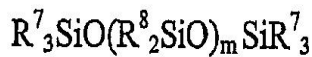
a, b 및 c의 합은 1이고,

a는 평균 $0 \leq a \leq 0.8$ 이고,

b는 평균 $0 \leq b \leq 0.8$ 이고,

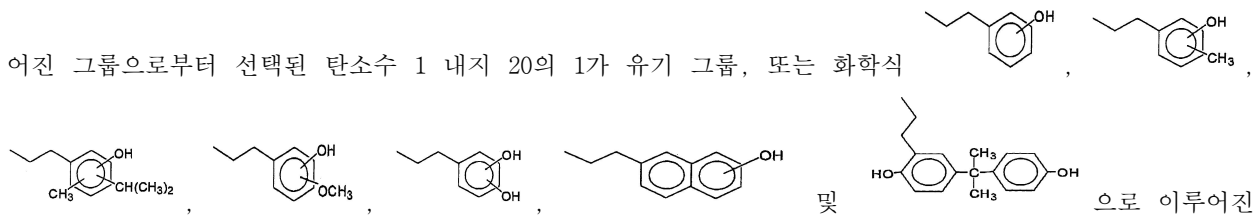
c는 평균 $0.2 \leq c \leq 1.0$ 이다.

화학식 2



위의 화학식 2에서,

R^7 및 R^8 은 동일하거나 상이하며 알킬 그룹, 아릴 그룹, 아르알킬 그룹 및 할로젠-치환된 알킬 그룹으로 이루어진 그룹으로부터 선택된 탄소수 1 내지 20의 1가 유기 그룹, 또는 화학식



그룹으로부터 선택된 페놀성 하이드록시 그룹을 갖는 알킬 그룹인데, R^7 (들) 및 R^8 (들) 중 2개 이상이 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 1가 유기 그룹이며,

m은 0 내지 1000의 정수이다.

청구항 2

제1항에 있어서, (D) 충전제를 추가로 포함하는, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 성분(A)가 액체인, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 화학식 1의 실록산 단위에서, a가 $0 < a \leq 0.8$ 이고, b가 0인, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 5

삭제

청구항 6

제1항 또는 제2항에 있어서, 성분(B)가 화학식 4의 오가노폴리실록산인, 경화성 실리콘 조성물.

화학식 4



위의 화학식 4에서,

Z는 3-(m-하이드록시페닐)프로필 그룹이다.

청구항 7

제1항 또는 제2항에 있어서, 각각 성분(A) 100중량부 당, 성분(B)가 1 내지 1000중량부의 양으로 사용되고, 성분(C)가 0.01 내지 100중량부의 양으로 사용되는, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 8

제1항 또는 제2항에 있어서, 성분(A)의 에폭시 그룹이 글리시독시 그룹 또는 3,4-에폭시사이클로헥실 그룹인, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 9

제1항 또는 제2항에 있어서, 액체 또는 페이스트형 형태로 존재하는, 경화성 실리콘 조성물.

청구항 10

제1항 또는 제2항에 기재된 경화성 실리콘 조성물을 경화시켜 수득한 경화된 제품.

청구항 11

제10항에 있어서, 전기 또는 전자 장치에서 소자 접속 또는 밀봉에 사용되는 경화된 제품.

명세서

[0001] 기술 분야

[0002] 본 발명은 경화성 실리콘 조성물, 보다 특히 우수한 경화능을 특징으로 하며, 가요성이 높고 접착 특성이 향상된 경화된 제품을 제조할 수 있는 경화성 실리콘 조성물에 관한 것이다.

[0003] 배경 기술

[0004] 공지된 경화성 조성물, 예를 들면, 에폭시 수지 조성물은 통상 전기 및 전자 장치에서 소자를 접속, 밀봉시키기 위한 밀봉제 및 접착제로서 사용된다. 그러나, 경화된 형태에서, 이러한 조성물은 탄성 모듈러스가 높아져 강성이 높다. 따라서, 이러한 밀봉제가 열팽창되는 경우, 전기 및 전자 장치의 각각의 소자에서 높은 응력을 발생시킨다. 이러한 응력으로 위에서 언급한 소자 및 기판이 휘어지게 되며, 경화된 수지 자체에 균열이 발생하거나, 심지어는 전기 및 전자 소자를 손상시키거나, 전기 및 전자 소자와 밀봉제 사이에 틈을 형성

시킨다.

[0005] 경화성 수지가 에폭시 함유 실리콘 수지[참조: 미국 특허 제5,530,075호에 상응하는 일본 공개특허공보 제(평)5-29504호], 에폭시 수지, 시아네이트 수지 및 에폭시 함유 디메틸실록산 화합물의 반응 생성물로부터 제조된 다이 접착 페이스트(일본 공개특허공보 제(평)10-147764호 및 일본 공개특허공보 제(평)10-163232호), 다이 결합 물질, 예를 들면, 에폭시 함유 실리콘 오일과 페놀형 유기 화합물의 반응 생성물(일본 공개특허공보 제(평)7-22441호, 일본 공개특허공보 제(평)7-118365호 및 일본 공개특허공보 제(평)10-130465호) 등과 배합된 경화성 수지 조성물을 사용하여 위에서 언급한 유형의 경화된 수지에서 생성되는 응력을 감소시키는 것이 제안되어 왔다. 그러나, 이러한 조성물로부터 수득한 경화체는 여전히 상대적으로 강제로 유지되며, 응력 감소 효과가 불충분하고, 전자 및 전기 소자를 밀봉 및 접속시키는데 단지 제한적으로 사용된다.

[0006] 다른 한편, 경화성 실리콘 수지 조성물로부터 수득한 경화된 제품은 유전 특성, 체적 저항, 절연 파단 강도 등과 같은 우수한 전기 특성을 특징으로 하며, 따라서 전기 부품 및 전기 및 전자 소자용 밀봉재 및 접착제로서 사용된다. 그러나, 위에서 언급한 경화성 실리콘 조성물은 너무 연성이며 열팽창률이 높거나, 강도 및 탄성 모듈러스가 낮은 경화된 제품을 제조한다. 그러므로, 이들은 예를 들면, 외부에서 가해진 충격에 대해 전기 및 전자 부품에 대한 충분한 보호를 제공할 수 없다. 경화성 실리콘 조성물의 또 다른 단점은 다양한 전기 및 전자 소자에 대한 이러한 조성물로부터 제조된 경화된 제품의 접착력이 낮다는 점이다. 이러한 결점은 위에서 언급한 경화된 제품이 각각의 전기 및 전자 소자로부터 박리된다는 점이다. 당해 조성물을 다양한 충전제와 배합시킴으로써 연성 경화체의 열팽창률을 감소시키려고 시도되어 왔지만, 충전제의 첨가로 탄성 모듈러스가 급격히 증가하여 연성 및 탄성이 감소된 경화체가 제조되었다. 달리, 개선 효과가 불충분하였다.

[0007] 일본 공개특허공보 제(평)6-306084호에는, 경화 시간이 단축된 경화성 실리콘 수지 조성물을 사용하는 것이 제안되어 왔다. 당해 조성물은 에폭시 개질된 실리콘 오일과 페놀 개질된 실리콘 오일로 이루어진다. 그러나, 이러한 조성물은 경화능이 부족하고 경화 시간이 연장될 것이 요구된다.

[0008] 발명의 상세한 설명

[0009] 본 발명자들은 위의 문제점을 해결하기 위해 연구를 수행해 왔다. 이러한 연구 결과, 선행 기술의 문제점이 해결되어, 본 발명자들은 본 발명을 완성하였다.

[0010] 보다 특히, 본 발명의 목적은 신속하게 경화될 수 있고, 경화시 가요성 및 접착 특성이 우수한 경화된 수지 제품을 제조할 수 있는 경화성 실리콘 조성물을 제공하는 것이다.

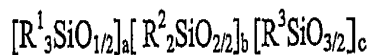
[0011] 보다 특히, 본 발명의 목적은

[0012] (A) 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 화학식 1의 실록산 단위의 오가노폴리실록산,

[0013] (B) 페놀성 하이드록실 그룹을 함유하는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 직쇄 오가노폴리실록산 및

[0014] (C) 경화 촉진제를 포함하는 경화성 실리콘 조성물에 관한 것이다.

화학식 1



[0015]

[0016] 위의 화학식 1에서,

[0017] R¹, R² 및 R³은 1가 유기 그룹이고, 이들 중 2개 이상이 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹이고,

[0018] R³의 20mole% 이상은 아릴 그룹이고,

[0019] a, b 및 c의 합은 1이고,

[0020] a는 평균 0 ≤ a ≤ 0.8이고,

[0021] b는 평균 0 ≤ b ≤ 0.8이고,

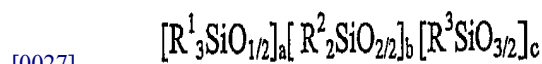
[0022] c는 평균 $0.2 \leq c \leq 1.0$ 이다.

[0023] 위에서 언급한 성분(A), 성분(B) 및 성분(C)을 포함하는 본 발명의 경화성 실리콘 조성물은 경화를 촉진시킬 수 있고, 형성 또는 경화 단계 동안에 가열에 필요한 시간을 단축시킨다. 이러한 조성물은 제조 중에 발생하는 열팽창에 의해 야기되는 내부 응력을 감소시키기 때문에, 손상에 대해 여리고 약한 취성 부품의 보호용 재료로서 사용될 수 있다. 더구나, 본 발명의 조성물은 각각의 기판에 대해 부품들의 강한 접착력을 제공한다. 본 발명의 경화성 조성물은 솔더 레지스트, 니켈 및 구리로서 접착 특성이 부족한 이러한 물질에 대한 기판에 의 향상된 접착력을 증명한다. 따라서, 제안된 조성물은 전기 부품 및 전자 소자의 제조시 접착제, 피막, 캐스팅 및 밀봉 재료로서 사용하기에 적합하다.

[0024] 성분(A)는 화학식 1의 실록산 단위의 오가노폴리실록산이다. 이 성분은 $[R^3SiO_{3/2}]$ 단위; $[R^1_3SiO_{1/2}]$ 단위와 $[R^3SiO_{3/2}]$; $[R^2_2SiO_{2/2}]$ 단위와 $[R^3SiO_{3/2}]$ 단위, 또는 $[R^1_3SiO_{1/2}]$ 단위, $[R^2_2SiO_{2/2}]$ 단위 및 $[R^3SiO_{3/2}]$ 단위를 포함할 수 있다.

[0025] 성분(A)는 네트형 또는 삼차원 구조를 가질 수 있다.

[0026] 화학식 1



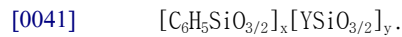
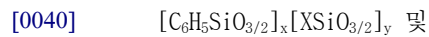
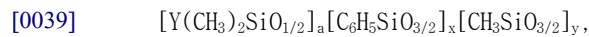
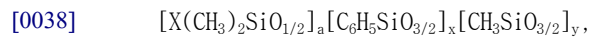
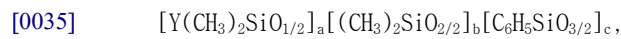
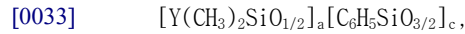
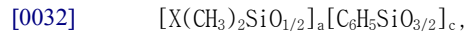
[0028] 위의 화학식 1에서, R^1 , R^2 및 R^3 은 1가 유기 그룹이고, 이들 중 2개 이상이 에폭시 그룹을 함유하며 방향족 환을 갖지 않는 1가 유기 그룹이다. 에폭시 함유 1가 유기 그룹은 방향족 환을 갖지 않을 것이 요구된다. 이는 에폭시 함유 1가 유기 그룹에서 방향족 환으로 인해, 본 발명의 조성물의 신속한 경화를 제공하기가 어렵기 때문이다. 성분(A)의 에폭시 그룹은 성분(B)의 페놀성 하이드록실 그룹과 반응하여 가교결합 및 경화를 제공한다.

[0029] 1가 유기 그룹은 탄소수를 1 내지 20개 가질 것이 권장된다. 이러한 그룹은, 예를 들면, 메틸 그룹, 에틸 그룹, 프로필 그룹, 부틸 그룹, 펜틸 그룹 또는 유사 알킬 그룹; 페닐 그룹, 톨릴 그룹, 크실릴 그룹 또는 유사 아릴 그룹; 벤질 그룹, 펜에틸 그룹 또는 유사 아릴알킬 그룹; 클로로메틸 그룹, 3,3,3-트리플루오로프로필 그룹 또는 유사 할로젠-치환된 알킬 그룹이다. 이들 중에서, 알킬 그룹, 특히 메틸 그룹이 가장 바람직하다. 방향족 환이 없고 에폭시 그룹을 함유하는 1가 유기 그룹은, 예를 들면, 2-글리시독시에틸 그룹, 3-글리시독시프로필 그룹, 4-글리시독시부틸 그룹, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실) 에틸 그룹, 3-(3,4-에폭시사이클로헥실) 프로필 그룹, 2-(3,4-에폭시노르보르네닐) 에틸 그룹, 2-(3,4-에폭시-3-메틸사이클로헥실)-2-메틸에틸 그룹 또는 에폭시 그룹에 결합된 유사 알킬 그룹이다. 이들 중에서, 3-글리시독시프로필 그룹과 2-(3,4-에폭시클로로헥실) 에틸 그룹이 가장 바람직하다. 1개의 분자는 방향족 환을 갖지 않는 1가 에폭시 함유 그룹을 2개 이상 함유할 수 있다. 성분(A)의 에폭시 당량[이는 성분(A)의 중량 평균 분자량을 성분(A) 1분자내에서 에폭시 그룹의 수로 나눔으로써 수득된 수이다]은 100 내지 1000의 범위내일 수 있고, 바람직하게는 100 내지 700이다. 이는 에폭시 당량의 하한치가 권장된 수준 미만인 경우, 본 발명의 조성물의 경화체는 충분한 가요성을 갖지 않는 반면, 에폭시 당량이 권장된 상한치를 초과하는 경우, 조성물의 경화능 및 접착 특성이 감소하거나, 취성이 높은 경화체를 제조하기 때문이다.

[0030] 성분(A)에서, R^3 의 20mole% 이상, 바람직하게는 50mole% 이상, 보다 바람직하게는, 80mole% 이상은 페닐 그룹이어야 한다. 페닐 그룹의 양이 권장된 하한치 미만인 경우, 성분(A)는 성분(B)와의 혼화성이 부족하고 기판에 대한 접착력이 불충분하거나, 당해 조성물을 경화시켜 수득한 경화체는 충분한 강도를 갖지 않는다. R^3 의 아릴 그룹이 페닐 그룹을 포함하는 것이 바람직하며, "a", "b" 및 "c"는, 각각의 실록산 단위의 총 몰 수가 1인 경우, 평균 몰 수와 상응한다. 달리, a, b 및 c의 합은 1이다. a와 b의 합은 0이 아닌 것이 바람직하다. 이는, 성분(A)가 $[R^3SiO_{3/2}]$ 단위로만 이루어진 경우, 점도가 너무 높아지고, 공업적인 조건하에 당해 성분을 처리하기가 어렵기 때문이다. 이는 또한 a에 대해 다음 조건을 제공할 것이 권장된다: 평균 $0 \leq a \leq 0.8$, 바람직하게는 평균 $0 \leq a \leq 0.6$ 이고, 보다 더 바람직하게는 $0.3 \leq a \leq 0.6$ 이다. 위의 범위를 초과하는 경우, 오가노폴리실록산은 분자량이 매우 높으며, 성분(A)는 경화체 표면을 통해 침지되거나, 주위 환경을 오염시킨다. 또한, "b"에 대해 다음 조건을 제공할 것이 권장된다: 평균 $0 \leq b \leq 0.8$ 이고, 바람직하게는 평

균 $0 \leq b \leq 0.6$ 이다. 위의 범위를 초과하는 경우, 경화체는 취성으로 된다. 또한, "c"에 대해 다음 조건을 제공할 것이 권장된다: 평균 $0.2 \leq c \leq 1.0$, 바람직하게는 평균 $0.4 \leq c \leq 1.0$. "c"가 권장된 하한치 미만인 경우, 당해 조성물은 접착 특성을 상실하거나, 경화체가 취성으로 된다. 달리, "c"에 대한 상한치를 초과하는 경우, 당해 조성물은 너무 점성으로 되어 제조 동안에 취급하기가 어렵거나, 경화체는 충분한 가요성을 갖지 않는다.

[0031] 화학식 1의 실록산 단위의 성분(A)는 다음 화학식의 특별한 오가노폴리실록산으로 예시될 수 있다. 이러한 화학식에서, "a", "b" 및 "c"는 위에서 언급한 바와 같지만, "a"와 "b"는 0이 아니며, "x"와 "y"는 다음 조건을 만족시킨다: $0.2 \leq x < 1.0$ 이고, $0 < y < 0.2$ 이며, a, x 및 y의 합은 1이다. 더구나, 다음 화학식에서, X는 글리시독시프로필 그룹이고, Y는 2-(3,4-에폭시사이클로헥실) 에틸 그룹이다.



[0042] 성분(A)는 다양한 방법으로, 예를 들면, 페닐트리알콕시실란 및 1가 에폭시 함유 유기 그룹을 갖는 방향족 환비함유 알콕시실란, 예를 들면, 3-글리시독시프로필 트리메톡시실란 또는 2-(3,4-에폭시사이클로헥실) 에틸트리메톡시실란을 탈알콜화 및 축합 반응시키거나, 본 발명의 방향족 환을 갖지 않고 에폭시 함유 1가 유기 그룹을 갖는 알콕시실란과, 페닐트리클로로실란 및 페닐트리알콕시실란을 공가수분해 및 축합시켜 수득한 측쇄 페닐폴리오가노실록산 중의 실란올 그룹을 탈알콜화 및 축합 반응시키거나, 방향족 환을 갖지 않고 에폭시 함유 1가 유기 그룹 및 불포화 지방족 그룹을 갖는 화합물과, 페닐트리클로로실란 또는 페닐트리알콕시실란을 디메틸클로로실란 또는 유사 실란의 존재하에 공가수분해 및 축합시켜 제조한 규소 결합된 수소원자를 갖는 오가노폴리실록산을 규소 결합된 수소원자와 하이드로실릴화함으로써 제조할 수 있다.

[0043] 성분(A)의 제조에 적합한 또 다른 방법은 페닐트리클로로실란 또는 페닐트리알콕시실란을 트리메틸실록시 그룹으로 분자 양 말단이 캡핑된 디메틸실록산과 메틸 (2-(3,4-에폭시사이클로헥실) 에틸실록산)의 공중합체 또는 트리메틸실록시 그룹으로 분자 양 말단이 캡핑된 디메틸실록산과 메틸 (3-글리시독시프로필) 실록산의 공중합체로 공가수분해 및 축합시켜 수득한 측쇄 페닐오가노폴리실록산의 평형 중합을 포함할 수 있다. 위에서 언급한 평형 중합은 염기성 중합 촉매의 존재하에 수행된다. 또 다른 방법은 염기성 중합 촉매의 존재하에 $[C_6H_5SiO_{3/2}]$ 단위 및 사이클릭 메틸 (3-글리시독시프로필) 실록산 또는 사이클릭 메틸 (2-(3,4-에폭시클로로헥실)) 에틸실록산으로 이루어진 실리콘 수지의 평형 중합을 포함할 수 있다. 추가의 방법은 산성 또는 염기성 중합 촉매의 존재하에 $[C_6H_5SiO_{3/2}]$ 단위 및 사이클릭 메틸 (3-글리시독시프로필) 실록산 또는 사이클릭 메틸 (2-(3,4-에폭시클로로헥실)) 에틸실록산 및 사이클릭 디메틸실록산으로 이루어진 실리콘 수지의 평형 중합을 포함할 수 있다.

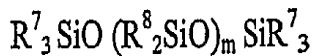
[0044] 성분(A)는 한 가지 형태의 오가노폴리실록산 또는 둘 이상의 형태의 오가노폴리실록산 혼합물을 포함할 수 있다. 25°C에서, 당해 성분은 액체 또는 고체일 수 있다. 고체 상태로 사용되는 경우, 유기 용매와 배합되거나 가열되거나 기타 성분들과 균질하게 혼합해야 한다. 배합 및 처리를 촉진시키기 위해, 25°C에서 액체인 성분(A)을 사용하는 것이 바람직하다. 성분(A)의 중량 평균 분자량은 500 내지 10000, 바람직하게는 750 내지 3000의 범위내인 것이 바람직하다.

[0045] 성분(A)는 실란올 그룹 및/또는 가수분해성 그룹, 예를 들면, 성분(A)의 제조방법에서 발생하는 알콕시 그룹 또는 아세톡시 그룹을 포함할 수 있다.

[0046] 성분(B)는 페놀성 하이드록실 그룹을 함유하는 1가 유기 그룹을 2개 이상 갖는 직쇄 오가노폴리실록산이며, 성분(A)에 대한 가교결합제를 포함한다. 아래에 기재한 성분(C)의 영향하에, 성분(B)는 성분(A)의 에폭시 그룹과 반응하여 본 발명의 조성물을 가교결합 및 경화시킬 수 있다. 성분(B)에서, 페놀성 하이드록실 그룹을 포함하는 위에서 언급한 1가 유기 그룹 이외의 1가 유기 그룹은 알킬 그룹, 아릴 그룹, 아르알킬 그룹 및 할로겐 치환된 알킬 그룹을 포함할 수 있다. 성분(B)는 소수의 규소 결합된 수소원자, 하이드록실 그룹 및 알콕시 그룹을 포함하는 것이 바람직하다. 25℃에서, 성분(B)는 고체 또는 액체일 수 있지만, 액체 형태가 취급하기가 보다 편리하므로 바람직하다. 보다 특히, 성분(B)는 25℃에서의 점도가 1 내지 10⁶ mPa.s, 바람직하게는 100 내지 5000mPa.s인 것이 바람직하다. 성분(B)의 점도가 권장 하한치 미만인 경우, 본 발명의 조성물로부터 수득한 경화체는 가요성 및 기계적 강도가 낮다. 점도가 권장 상한치를 초과하는 경우, 제조시 당해 조성물을 취급하기가 어렵다. 성분(B)는 성분(A) 100중량부 당 1 내지 1000중량부의 양으로 사용된다.

[0047] 바람직하게는, 성분(B)는 화학식 2의 화합물이다. 당해 화학식의 성분은 가요성이 높은 본 발명의 조성물로부터 경화체를 제공한다.

화학식 2



[0048]

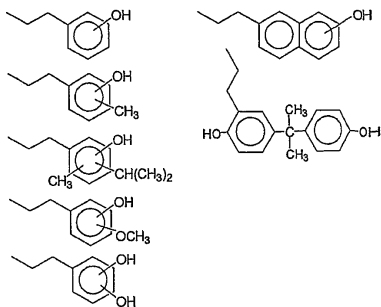
위의 화학식 2에서,

[0049]

[0050] R⁷ 및 R⁸은 동일하거나 상이할 수 있는 1가 유기 그룹이고, 이들 중 2개 이상의 1가 유기 그룹은 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는다.

[0051]

1분자는 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 둘 이상의 1가 유기 그룹을 포함할 수 있지만, 1분자내에 이러한 그룹을 2개 갖는 것이 바람직하다. 페놀성 하이드록실 그룹을 갖는 바람직한 1가 유기 그룹은 페놀 결합된 알킬 그룹이다. 이러한 그룹의 예는 다음과 같다:



[0052]

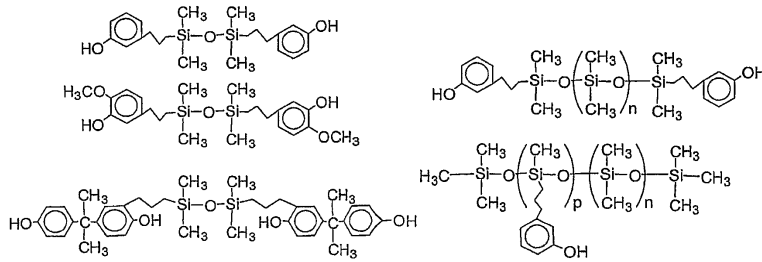
[0053] 기타의 1가 유기 그룹은 메틸 그룹, 에틸 그룹, 프로필 그룹, 부틸 그룹, 펜틸 그룹, 헥실 그룹, 헵틸 그룹 또는 유사 알킬 그룹; 페닐 그룹, 톨릴 그룹, 크실릴 그룹, 나프틸 그룹 또는 유사 아릴 그룹; 벤질 그룹, 펜에틸 그룹 또는 유사 아르알킬 그룹; 비닐 그룹, 알릴 그룹, 부테닐 그룹, 펜테닐 그룹, 헥세닐 그룹 또는 유사 알케닐 그룹; 클로로메틸 그룹, 3,3,3-트리플루오로프로필 그룹 또는 유사 할로겐 치환된 알킬 그룹을 포함할 수 있다. 이들 중에서, 가장 바람직하게는 알킬 그룹, 특히 메틸 그룹이다. 위의 화학식 2에서, m은 0 내지 1000의 정수, 바람직하게는 0 내지 100의 정수, 보다 바람직하게는 0 내지 20의 정수이다. 위의 화학식 2에서, m이 권장된 범위내에서 선택되면, 성분(B)는 점도가 충분히 낮으며, 성분(A)와 용이하게 혼합되며, 취급하기가 용이하다. 더구나, 본 발명의 경화성 실리콘 조성물은 이를 적절한 액체 비용매와 혼합시킴으로써 액화될 수 있다.

[0054]

[0054] 성분(B)의 페놀성 하이드록실 그룹 대 성분(A)의 에폭시 그룹의 몰 비가 0.2 내지 5, 바람직하게는, 0.3 내지 2.5, 보다 바람직하게는, 0.8 내지 1.5로 되도록 하는 양으로 성분(B)을 사용하는 것이 권장된다. 성분(B)의 페놀성 하이드록실 그룹 대 성분(A)의 에폭시 그룹의 위에서 언급한 몰 비가 권장된 수준 미만인 경우, 당해 조성물을 충분한 정도로 경화시키는 것이 어렵다. 위에서 언급한 몰 비가 권장된 수준을 초과하는 경우, 경

화체의 기계적 특성이 낮다.

[0055] 바람직한 성분(B)의 예는 다음과 같다. 다음 화학식에서, "n"은 1 내지 20의 정수이고, "p"는 2 내지 10의 정수이다.



[0056] 성분(B)는 당해 분야에서 공지된 방법으로 제조할 수 있다. 예를 들면, 이는 알케닐 그룹을 함유하는 페놀 화합물과 규소 결합된 수소원자를 갖는 오가노폴리실록산 사이에 하이드로실릴화 촉매의 존재하에 수행된 첨가 반응을 수행함으로써 제조할 수 있다.

[0058] 성분(C)은 성분(A)의 에폭시 그룹과 성분(B)의 페놀성 하이드록실 그룹과의 반응을 촉진시키는데, 즉 본 발명의 조성물의 경화를 촉진시킨다. 성분(C)은 3급 아민 화합물, 알루미늄, 지르코늄 등의 유기금속 화합물, 유기인 화합물, 예를 들면, 포스핀, 헤테로사이클릭 아민, 붕소 착화합물, 유기 암모늄 염, 유기 설포늄 염, 유기 과산화물 또는 위의 화합물들의 반응 생성물을 예로 들 수 있다. 다음은 이들 화합물의 특정 예이다: 트리페닐 포스핀, 트리부틸 포스핀, 트리(p-메틸페닐)포스핀, 트리(노닐페닐)포스핀, 트리페닐포스핀-트리페닐보레이트, 테트라페닐포스핀-테트라페닐보레이트 또는 유사 인 유형의 화합물; 트리에틸아민, 벤질디메틸아민, α-메틸벤질디메틸아민, 1,8-디아자-바이사이클로-5.4.0-운데크-7-엔 또는 유사 3급 아민 화합물, 2-메틸인다졸, 2-페닐인다졸, 2-페닐-4-메틸인다졸 또는 유사 인다졸 화합물. 본 발명의 경화성 조성물이 연장된 시간에 걸쳐서 사용될 수 있기 때문에, 캡슐화된 경화 촉진제를 사용할 것이 권장된다. 캡슐화된 경화 촉진제는 비스페놀 A 에폭시 수지 중 아민 촉매와 혼합된 캡슐화된 촉매[HX-3088, 아사히 가세이 가부시 키가이샤(ASAHI KASEI Company, Ltd.)]를 포함할 수 있다.

[0059] 성분(C)이 본 발명의 조성물에서 사용되는 양에 관하여, 경화시키기에 충분한 양이어야 한다는 점을 제외하고는 특별한 제한이 없다. 그러나, 성분(C)는 각각 성분(A) 100중량부당 0.01 내지 100중량부, 바람직하게는 0.01 내지 50중량부, 보다 바람직하게는 0.1 내지 5중량부의 양으로 사용할 것이 권장된다.

[0060] 본 발명의 조성물로부터 수득된 경화된 제품의 강도를 향상시키기 위해, 본 발명의 조성물은 충전제(D)와 혼합할 수 있다. 충전제는 유리 섬유, 알루미늄 섬유, 알루미늄 및 실리카로 구성된 세라믹 섬유, 붕소 섬유, 지르코니아 섬유, 탄화규소 섬유, 금속 섬유 또는 유사 섬유상 충전제; 폼드 실리카, 결정질 실리카, 침강 실리카, 폼드 실리카, 베이킹 실리카, 산화아연, 베이킹 점토, 카본 블랙, 유리 비드, 알루미늄, 활석, 탄산칼슘, 점토, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 황산바륨, 질화알루미늄, 질화붕소, 탄화규소, 산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화티탄, 카올린, 운모, 지르코니아 또는 유사 분말상 충전제를 포함할 수 있다. 위에서 언급한 충전제는 둘 이상의 혼합물로 사용할 수 있다. 입자의 평균 크기 및 형태에 관하여 특별한 제한은 없지만, 보다 나은 형성능을 위해 평균 입자 직경이 0.1 내지 40μm의 범위내의 구형 실리카를 사용할 것이 권장된다.

[0061] 유동능을 감소시키지 않기 위해, 각각 성분(A)와 성분(B)의 합 100중량부당 0 내지 2000중량부, 바람직하게는 50 내지 1000중량부의 양으로 성분(D)을 첨가할 것이 권장된다.

[0062] 경화 중에 기판에 대한 본 발명의 조성물의 접착성을 향상시키기 위해, 그리고, 경우에 따라, 본 발명의 조성물에서 성분(D)의 분산력을 향상시키기 위해, 당해 조성물은 커플링제, 예를 들면, 실란 커플링제, 티타네이트 커플링제 등과 추가로 배합할 수 있다. 실란 커플링제는, 예를 들면, 3-글리시옥시프로필 트리메톡시실란, 3-글리시옥시프로필 메틸디에톡시실란, 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸트리메톡시실란 또는 유사 에폭시 함유 알콕시실란; N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필 트리메톡시실란, 3-아미노프로필 트리에톡시실란, N-페닐-3-아미노프로필 트리메톡시실란 또는 유사 아미노 함유 알콕시실란; 3-머캅토프로필 트리메톡시실란 또는 유사 머캅토 함유 알콕시실란이다. 티타네이트 커플링제는 i-프로폭시티탄 트리(i-이소스테아레이트)를 예로 들 수 있다.

[0063] 본 발명의 조성물의 기타 임의 성분은 유기 용매, 예를 들면, 테트라메톡시실란, 테트라에톡시실란, 디메틸디

메톡시실란, 메틸페닐디메톡시실란, 메틸페닐디에톡시실란, 페닐트리메톡시실란, 메틸트리메톡시실란, 메틸트리에톡시실란, 비닐트리메톡시실란, 알릴트리메톡시실란, 알릴트리에톡시실란 또는 유사 알콕시실란; 핵산 또는 유사 방향족 용매; 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤 또는 유사 케톤계 용매를 포함할 수 있다.

[0064] 본 발명의 경화성 조성물은 성분(A), 성분(B), 성분(C) 및, 경우에 따라, 성분(D)와 기타 임의 성분을 균질하게 혼합하여 제조한다. 혼합 방법에 관하여는 제한이 없다. 예를 들면, 모든 성분(A), 성분(B), 성분(C) 및, 경우에 따라, 성분(D)와 기타 임의 성분은 동시에 함께 혼합하거나, 성분(A)과 성분(B)을 예비 혼합한 다음, 당해 혼합물을 성분(C) 및, 경우에 따라, 성분(D) 및 기타 임의 성분과 혼합하거나, 성분(A), 성분(B), 성분(C) 및, 경우에 따라, 성분(D) 및 기타 임의 성분은 모두 동시에 혼합하거나, 성분(A) 및 성분(B)와, 경우에 따라, 성분(D) 및 기타 임의 성분을 예비 혼합한 다음, 혼합물을 성분(C)와 혼합할 수 있다. 성분(A), 성분(B), 성분(C), 경우에 따라, 성분(D)와 기타 임의 성분을 혼합하는 데 사용될 수 있는 장치에 관하여는 특별한 제한이 없다. 이는 1축, 2축 연속 작용 혼합기, 2롤 혼합기, 치과용 혼합기, 플라네타리(planetary) 혼합기, 혼련 혼합기 등일 수 있다.

[0065] 본 발명의 경화성 실리콘 조성물은 다양한 방법, 예를 들면, 성형법, 포팅법, 캐스팅법, 분말 형태로 스프레딩법, 침지 피복법 등으로 사용할 수 있다. 포팅법, 스크린 프린팅법, 및 조성물이 소량으로 사용되는 스프레딩에 의한 도포법과 같은 방법으로 보다 편리하게 취급하기 위해, 조성물이 액체 또는 페이스트형인 것이 바람직하다. 본 발명의 경화성 실리콘 조성물을 경화시켜 수득한 제품은 가요성 및 접착 특성이 우수하기 때문에, 전기 부품 및 전자 소자용 밀봉제, 캐스팅제, 피막, 및 접착제와 같은 용도에 적합하다.

[0066] 본 발명은 실시예에 관하여 추가로 기재한다. 경화성 실리콘 조성물 및 경화체의 특성을 측정하는 데 사용되는 방법은 다음에 기재한다.

[0067] [점도]

[0068] 점도는 25℃에서 회전수 2.5/min로 E-모델 점도계[도키멕 가부시키가이샤(TOKIMEC Co., Inc.), 디지털 점도계(DIGITAL VISCOMETER) DV-U-E 유형 II]를 사용하여 측정하였다.

[0069] [열팽창계수]

[0070] 경화성 실리콘 조성물을 폭이 4mm이고, 길이가 15mm이며, 깊이가 4mm의 금형 공동 속으로 부어 넣었다. 70mmHg에서 소포시킨 후, 당해 조성물을 150℃ 및 2.5MPa에서 60분 동안 가압 경화시켰다. 생성물을 180℃의 오븐 속에서 2시간 동안 2차 가열하였다. 그 결과, 경화된 샘플을 수득하였다. 수득한 샘플을 사용하여 25℃에서 210℃로 2.5℃/min의 속도로 가열하면서 TMA[신쿠리코 가부시키가이샤(SHINKURIKO Co., Ltd.), 모델 TM-9200]를 사용하여 열팽창계수를 측정하였다.

[0071] [복소 점탄성계수(coefficient of composite viscoelasticity)]

[0072] 경화성 실리콘 조성물을 폭이 10mm이고, 길이가 50mm이며, 깊이가 2mm의 금형 공동 속으로 부어 넣었다. 70mmHg에서 소포시킨 후, 당해 조성물을 150℃ 및 2.5MPa에서 60분 동안 가압 경화시켰다. 생성물을 180℃의 오븐 속에서 2시간 동안 2차 가열하였다. 그 결과, 경화된 샘플을 수득하였다. 수득한 샘플을 사용하여 -50℃에서 150℃로 가열하기 위해 0.5% 트위스팅, 1Hz 주파수 및 3℃/min의 가열 속도로 ARES형 점탄성 측정장치 [레오메트릭 사이언티픽 캄파니, 인코포레이티드(RHEOMETRIC Scientific Co., Inc.) 제품]를 사용하여 25℃에서 복소 점탄성계수를 측정하였다.

[0073] [접착성]

[0074] 솔더 레지스트[현상형 솔더 레지스트, 다이요 잉크 가부시키가이샤(TAIYO INK Co., Ltd.), 유형 PSR-4000 CC02/CA-40 CC02]를 비스-말레이미드-트리아진 수지(BT 수지라고 알려짐)판 표면에 스프레딩하였다. 피막을 자외선으로 건조시키고, 광에 노출시킨 다음, 경화시켰다(150℃에서 1시간 동안). 그 결과, 50μm 두께의 솔더 레지스트 층을 보조층으로서 BT 판 위에 형성시켰다. 경화성 실리콘 조성물을 위에서 언급한 보조층 위에 1cm²의 양으로 도포시키고, 유닛을 125℃의 오븐 속에서 2시간 동안 가열한 다음, 180℃의 오븐 속에서 추가로

2시간 동안 가열하였다. 그 결과, 접착력 평가 시험편을 제조하였다. 이 과정은 위에서 언급한 보조층 대신에 유리판, 알루미늄판, 니켈판 및 강판을 사용하는 것은 제외하고는 동일한 방식으로 반복하였다. 시험편 위에 형성된 경화된 층은 치과용 스파툴라를 사용하여 박리하고, 접착 조건은 현미경으로 표면을 관찰하여 평가하였다. 다음 평가 기준을 사용하였다: 점착 파괴: 0, 얇은 피막이 계면에 존재한다: △, 계면의 박리: ×.

[0075] [경화성 시험]

[0076] 유리판 위에 형성된, 폭이 15mm이고, 길이가 50mm이며, 깊이가 0.2mm의 공동에 압착기를 사용하여 40 μ m 두께의 테이프로 된 5개의 층을 도포시켜 충전시켰다. 수득한 시험편을 150 $^{\circ}$ C의 고온 공기 순환 오븐에 장착시키고, 15분마다 경화성 실리콘 조성물 표면을 치과용 스파툴라에 의해 스트링지니스(stringiness)가 더이상 관찰되지 않는 시간을 트래킹하면서 접촉시켰다.

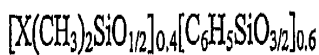
[0077] [중량 평균 분자량]

[0078] 이 특성은 폴리스티렌에 대해 다시 계산한 중량 평균 분자량으로서 측정하고, 용매로서 톨루엔을 사용하여 GPC[가스 투과 크로마토그래피]로 측정하였다.

[0079] 실시예 1

[0080] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 1000이고, 점도가 9630mPa \cdot s이며, 에폭시 당량이 345인 화학식 3의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 25.0중량부, 점도가 3050mPa \cdot s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 3의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 13.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카[ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니(ADOMATECH Co.) 제품, 평균 입자 직경 1.5 μ m] 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 1에 기재하였다.

화학식 3

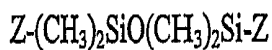


[0081]

[0082] 위의 화학식 3에서,

[0083] X는 3-글리시옥시프로필 그룹이다.

화학식 4



[0084]

[0085] 위의 화학식 4에서,

[0086] Z는 3-(m-하이드록시페닐)프로필 그룹이다.

[0087] 실시예 2

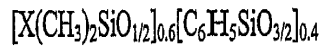
[0088] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 1000이고, 점도가 9630mPa \cdot s이며, 에폭시 당량이 345인 화학식 3의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 25.0중량부, 점도가 3050mPa \cdot s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 3의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 13.0중량부, 3-글리시옥시프로필트리메톡시실란 1.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부

및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5 μ m) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 1에 기재하였다.

[0089] 실시예 3

[0090] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 1000이고, 점도가 1290mPa?s이며, 에폭시 당량이 270인 화학식 5의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 21.0중량부, 점도가 3050mPa?s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 5의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 17.0중량부, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란 1.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5 μ m) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 1에 기재하였다.

화학식 5



[0091]

[0092] 위의 화학식 5에서,

[0092]

[0093] X는 3-글리시독시프로필 그룹이다.

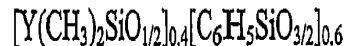
[0093]

[0094] 실시예 4

[0095] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 2200이고, 점도가 1900mPa?s이며, 에폭시 당량이 345인 화학식 6의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 24.0중량부, 점도가 3050mPa?s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 6의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 14.0중량부, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란 1.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5 μ m) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 1에 기재하였다.

[0095]

화학식 6



[0096]

[0097] 위의 화학식 6에서,

[0097]

[0098] Y는 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸 그룹이다.

[0098]

[0099] 비교예 1

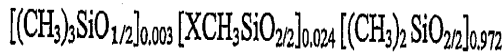
[0100] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 비스페놀 A형 액체 에폭시 수지[재펜 에폭시 수지 가부시키가이샤(JAPAN EPOXY RESIN Co., Ltd.) 제품, 에피코트(EPICOTE) 828, 점도 15mPa?s, 에폭시 당량 190] 23.0중량부, 액체 페놀 화합물[메이와 가세이 가부시키가이샤(MEIWA KASEI Co., Ltd.) 제품, MEH8000H] 17.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5 μ m) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 2에 기재하였다. 당해 조성물로부터 수득한 경화체는 복소 탄성 모듈러스가 2900으로 높고 고강성인 것으로 밝혀졌다.

[0100]

[0101] 비교예 2

[0102] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 45000이고, 점도가 17700mPa?s이며, 에폭시 당량이 3850인 화학식 7의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 36.0중량부, 점도가 3050mPa?s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 7의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 2.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5µm) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 2에 기재하였다.

화학식 7



[0103]

[0104] 위의 화학식 7에서,

[0105] X는 3-글리시독시 프로필 그룹이다.

[0106] 비교예 3

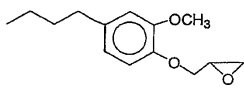
[0107] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 1500이고, 점도가 1200mPa?s이며, 에폭시 당량이 370인 화학식 8의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 21.0중량부, 중량 평균 분자량이 630이고 점도가 840mPa?s인 화학식 9의 오가노폴리실록산(화학식 9의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 8의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 17.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5µm) 70중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 경화시키고, 급형 속으로 주입시키고, 150°C의 오븐 속에서 2시간 동안 가열한 다음, 180°C에서 추가로 2시간 동안 가열하는 것을 제외하고는 위와 동일한 조건하에 열팽창계수 및 복소 점탄성계수를 시험하였다. 측정 결과는 표 2에 기재하였다.

화학식 8



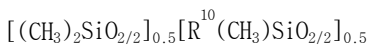
[0108]

[0109] 위의 화학식 8에서,



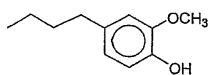
[0110] R⁹는 화학식  의 그룹이다.

화학식 9



[0111]

[0112] 위의 화학식 9에서,

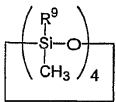


[0113] R¹⁰은 화학식  의 그룹이다.

[0114] 비교예 4

[0115] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 950이고, 점도가 17700mPa?s이며, 에폭시 당량이 240인 화학식 10의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 16.0중량부, 중량 평균 분자량이 630이고 점도가 840mPa?s인 화학식 9의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 9의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 10의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 22.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부, 3-글리시디옥시프로필트리메톡시실란 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5µm) 70중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 경화시키고, 금형 속으로 주입시키고, 150°C의 오븐 속에서 2시간 동안 가열한 다음, 180°C에서 추가로 2시간 동안 가열하는 것을 제외하고는 위와 동일한 조건하에 열팽창계수 및 복소 점탄성계수를 시험하였다. 측정 결과는 표 2에 기재하였다.

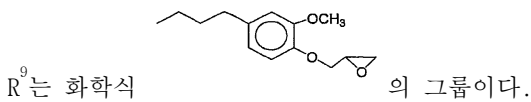
화학식 10



[0116]

[0117] 위의 화학식 10에서,

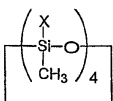
[0118]



[0119] 비교예 5

[0120] 다음 성분으로부터 혼합물을 제조하였다: 중량 평균 분자량이 696이고, 점도가 110mPa?s이며, 에폭시 당량이 174인 화학식 11의 실록산 단위의 오가노폴리실록산 17.0중량부, 점도가 3050mPa?s인 화학식 4의 실록산 단위의 오가노폴리실록산(화학식 4의 오가노폴리실록산의 페놀성 하이드록실 그룹의 몰 수 대 화학식 11의 오가노폴리실록산의 에폭시 그룹의 몰 수의 비는 1.0이다) 20.0중량부, HX-3088(캡슐화된 아민 촉매, 아사히 가세이 가부시키키가이샤 제품, 아민 촉매 함량 40중량%) 1.0중량부 및 구형 무정형 실리카(ADOMAFINE, 아도마테크 캄파니 제품, 평균 입자 직경 1.5µm) 60중량부. 그 결과, 경화성 실리콘 조성물을 제조하였다. 당해 조성물을 진공하에 소포시킨 다음, 열팽창계수, 복소 점탄성계수, 접착 특성 및 경화 시간을 위에서 언급한 방법으로 측정하였다. 측정 결과는 표 2에 기재하였다.

화학식 11



[0121]

[0122] 위의 화학식 11에서,

[0123] X는 글리시디옥시프로필 그룹이다.

표 1

[0124]

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4
점도(Pa?s)	10	14	7	15
열팽창계수 (ppm/°C)	110	110	120	100
복소 점탄성계수 (MPa)	80	86	90	90

접착 특성 (솔더 레지스트)	○	○	○	○
접착 특성(니켈)	○	○	○	○
접착 특성(구리)	○	○	○	○
접착 특성(알루미늄)	○	○	○	○
접착 특성(유리)	○	○	○	○
경화 시간(min)	15	15	15	15

표 2

[0125]

	비교예				
	1	2	3	4	5
점도(Pa?s)	199	>500	27	81	5
열팽창계수 (ppm/°C)	67	-*	130	80	120
복소 점탄성계수 (MPa)	2900	-*	60	350	80
접착 특성 (솔더 레지스트)	○	×	○	○	×
접착 특성(니켈)	○	×	○	○	×
접착 특성(구리)	○	×	○	○	×
접착 특성 (알루미늄)	○	×	○	○	○
접착 특성(유리)	○	×	○	○	○
경화 시간(min)	30	90	120	120	15

[0126]

*: 경화된 제품은 매우 취성이며, 특성은 측정될 수 없다.