

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구  
국제사무국

(43) 국제공개일  
2013년 5월 30일 (30.05.2013)



(10) 국제공개번호  
WO 2013/077700 A1

- (51) 국제특허분류:  
C08L 83/04 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)  
C08K 5/54 (2006.01) H01L 33/00 (2010.01)  
C08G 77/04 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2012/010063
- (22) 국제출원일: 2012년 11월 26일 (26.11.2012)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:  
10-2011-0124659 2011년 11월 25일 (25.11.2011) KR  
10-2012-0134553 2012년 11월 26일 (26.11.2012) KR
- (71) 출원인: 주식회사 엘지화학 (LG CHEM, LTD.)  
[KR/KR]; 150-721 서울시 영등포구 여의도동 20, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 최범규 (CHOI, Bum Gyu); 302-782 대전시 서구 둔산 3동 국화아파트 한신 601동 902호, Daejeon (KR). 코민진 (KO, Min Jin); 305-707 대전시 유성구 신성동 삼성한울아파트 103동 1102호, Daejeon (KR). 문명선 (MOON, Myung Sun); 302-777 대전시 서구 둔산 2동 샘머리아파트 105동 804호, Daejeon (KR). 정재호 (JUNG, Jae Ho); 305-727 대전시 유성구 전민동 삼성푸른아파트 112-1102, Daejeon (KR). 강대호 (KANG, Dae Ho); 302-792 대전시 서구 월평 3동 황실아파트 105동 1405호, Daejeon (KR). 김민균 (KIM, Min Kyoun); 305-758 대전시 유성구 송강동 송강한솔아파트 104동 1201호, Daejeon (KR). 조병규 (CHO, Byung

Kyu); 158-828 서울시 양천구 신월 1동 142-14번지 프라내 APT 106동 703호, Seoul (KR).

(74) 대리인: 특허법인 다나 (DANA PATENT LAW FIRM); 135-080 서울시 강남구 테헤란로 7길 8 BYC 빌딩 5층, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, 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, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))



WO 2013/077700 A1

(54) Title: CURABLE COMPOSITION

(54) 발명의 명칭 : 경화성 조성물

(57) Abstract: The present application relates to a curable composition, and to uses thereof. An example of the curable composition can exhibit excellent processability and workability. When cured, the curable composition has outstanding light extraction efficiency, cracking resistance, hardness, thermal shock resistance, and adhesion properties. The curable composition can provide a cured product which exhibits stable long-term durability and reliability even under severe conditions, and does not cause cloudiness or surface stickiness and the like.

(57) 요약서: 본 출원은, 경화성 조성물 및 그 용도에 관한 것이다. 하나의 예시적인 경화성 조성물은, 우수한 가공성 및 작업성을 나타낼 수 있다. 상기 경화성 조성물은, 경화되면 광추출 효율, 균열 내성, 경도, 내열 충격성 및 접착성 등이 뛰어나다. 상기 경화성 조성물은, 가혹 조건에서도 장시간 동안 안정적인 내구 신뢰성을 나타내고, 백탁 및 표면에서의 끈적임 등이 유발되지 않는 경화물을 제공할 수 있다.

# 명세서

## 발명의 명칭: 경화성 조성물

### 기술분야

- [1] 본 출원은, 경화성 조성물 및 그 용도에 관한 것이다.

### 배경기술

- [2] LED(Light Emitting Diode), 특히 발광 파장이 약 250 nm 내지 550 nm인 청색 또는 자외선 LED로서, GaN, GaAlN, InGaN 및 InAlGaN과 같은 GaN 계열의 화합물 반도체를 이용한 고휘도 제품이 얻어지고 있다. 또한, 적색 및 녹색 LED를 청색 LED와 조합시키는 기법으로 고품질의 풀 컬러 화상의 형성도 가능해지고 있다. 예를 들면, 청색 LED 또는 자외선 LED를 형광체와 조합하여, 백색 LED를 제조하는 기술이 알려져 있다. 이와 같은 LED는 LCD(Liquid Crystal Display)의 백라이트 또는 일반 조명용 등으로 수요가 확대되고 있다.
- [3] LED 봉지재로서, 접착성이 높고 역학적인 내구성이 우수한 에폭시 수지가 폭넓게 이용되고 있다. 그러나, 에폭시 수지는 청색 내지 자외선 영역의 광에 대한 투과율이 낮고, 또한 내광성이 떨어지는 문제점이 있다. 이에 따라, 예를 들면, 특허문헌 1 내지 3 등에서는, 상기와 같은 문제점을 개량하기 위한 기술을 제안하고 있다. 그러나, 상기 문헌에서 개시하는 봉지재는, 내광성이 충분하지 못하다.
- [4] 저과장 영역에 대해 내광성이 우수한 재료로서, 실리콘 수지가 알려져 있다. 그러나, 실리콘 수지는 내열성이 떨어지고, 경화 후에 표면에서 끈적임이 나타나는 단점이 있다. 또한, 실리콘 수지가 LED의 봉지재로 효과적으로 적용되기 위해서는, 고굴절 특성, 균열 내성, 표면 경도, 접착력 및 내열 충격성 등의 특성이 확보될 필요가 있다.
- [5] [선행기술문헌]
- [6] [특허문헌]
- [7] (특허문헌 1) 일본특허공개 평11-274571호
- [8] (특허문헌 2) 일본특허공개 제2001-196151호
- [9] (특허문헌 3) 일본특허공개 제2002-226551호

### 발명의 상세한 설명

#### 기술적 과제

- [10] 본 출원은 경화성 조성물 및 그 용도를 제공한다.

#### 과제 해결 수단

- [11] 예시적인 경화성 조성물은, (A) 분자 구조 중에 하나 이상의 알케닐기를 가지는 오가노폴리실록산 및 (B) 규소 원자에 결합된 수소 원자를 가지는 오가노폴리실록산을 포함한다.
- [12] (A) 오가노폴리실록산은, 예를 들면, 하기 화학식 1의 평균 조성식을 가질 수

있다.

[13] [화학식 1]

[14]  $(R^1R^2SiO_{1/2})_a(R^3R^4SiO_{2/2})_b(R^5SiO_{3/2})_c(SiO_2)_d$

[15] 화학식 1에서  $R^1$ 은, 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고,  $R^2$ 는 탄소수 1 내지 4의 알킬기이며,  $R^3$  및  $R^4$ 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이고,  $R^5$ 는 탄소수 1 내지 20의 알킬기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이며,  $R^1$ ,  $R^3$  및  $R^4$  중 적어도 하나는 알케닐기이고,  $a$ 는 양의 수이며,  $b$ 는 0 또는 양의 수이고,  $c$ 는 양의 수이고,  $d$ 는 0 또는 양의 수이며,  $b/a$ 는 5 이상이고,  $b/c$ 는 5 이상이다.

[16] 본 명세서에서 오가노폴리실록산이 소정의 평균 조성식으로 표시된다는 것은, 그 오가노폴리실록산이 그 소정의 평균 조성식으로 표시되는 단일의 성분이거나, 2개 이상의 성분의 혼합물 또는 반응물이면서 상기 혼합물 또는 반응물 내의 각 성분의 조성의 평균이, 그 소정의 평균 조성식으로 표시되는 경우도 포함한다.

[17] 본 명세서에서 용어 1가 탄화수소기는 탄소 및 수소로 이루어진 유기 화합물 또는 그 유도체로부터 유도되는 1가 잔기를 의미할 수 있다. 상기 1가 탄화수소기는 1개 또는 2개 이상의 탄소를 포함하고, 예를 들면, 탄소수 1 내지 25 또는 2 내지 25의 1가 탄화수소기일 수 있다. 상기 1가 탄화수소기로는, 예를 들면, 알킬기, 알케닐기 또는 아릴기 등이 예시될 수 있다.

[18] 본 명세서에서 용어 알킬기는, 특별히 달리 규정하지 않는 한, 탄소수 1 내지 20, 탄소수 1 내지 16, 탄소수 1 내지 12, 탄소수 1 내지 8 또는 탄소수 1 내지 4의 알킬기를 의미할 수 있다. 상기 알킬기는 직쇄형, 분지쇄형 또는 고리형 구조를 가질 수 있으며, 임의적으로 하나 이상의 치환기에 의해서 치환되어 있을 수 있다.

[19] 본 명세서에서 용어 알케닐기는, 특별히 달리 규정하지 않는 한, 탄소수 2 내지 20, 탄소수 2 내지 16, 탄소수 2 내지 12, 탄소수 2 내지 8 또는 탄소수 2 내지 4의 알케닐기를 의미할 수 있다. 상기 알케닐기는 직쇄형, 분지쇄형 또는 고리형 구조를 가질 수 있으며, 임의적으로 하나 이상의 치환기에 의해서 치환되어 있을 수 있다.

[20] 본 명세서에서 용어 아릴기는, 특별히 달리 규정하지 않는 한, 벤젠 고리를 가지거나, 2개 이상의 벤젠 고리가 연결 또는 축합된 구조를 포함하는 화합물 또는 그 유도체로부터 유래하는 1가 잔기를 의미할 수 있다. 즉, 상기 용어 아릴기의 범위에는 통상적으로 아릴기로 호칭되고 있는 아릴기는 물론 소위 아르알킬기(aralkyl group) 또는 아릴알킬기 등도 포함될 수 있다. 상기와 같은 아릴기는, 예를 들면, 탄소수 6 내지 25, 탄소수 6 내지 21, 탄소수 6 내지 18 또는 탄소수 6 내지 13의 아릴기일 수 있으며, 그 예로는, 페닐기, 디클로로페닐, 클로로페닐, 페닐에틸기, 페닐프로필기, 벤질기, 톨릴기, 크실릴기(xylyl group) 또는 나프틸기 등이 예시될 수 있으며, 예를 들면 페닐기가 예시될 수 있다.

- [21] 상기 알킬기의 정의가 화학식 1의 「2가 탄화수소기」에 적용될 때에는 각 탄소수의 하한은 2일 수 있다.
- [22] 화학식 1의 평균 조성식에서 탄소수 1 내지 4의 알킬기는, 직쇄형, 분지쇄형 또는 고리형의 알킬기일 수 있다. 상기 알킬기는 임의적으로 하나 이상의 치환기에 의해 치환되어 있을 수 있다. 화학식 1의 평균 조성식에서  $R^2$ 는, 예를 들면 메틸기일 수 있다.
- [23] 본 명세서에서 1가 탄화수소기, 알킬기, 알케닐기 또는 아릴기 등에 임의적으로 치환되어 있을 수 있는 치환기로는, 할로젠, 에폭시기, 아크릴로일기, 메타크릴로일기, 이소시아네이트기, 티올기 또는 상기한 1가 탄화수소기(탄소수가 1인 경우도 포함) 등이 예시될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [24] 화학식 1에서  $R^1$ ,  $R^3$  및  $R^4$  중 적어도 하나는 알케닐기이다. 하나의 예시에서 상기 알케닐기는, 상기 오가노폴리실록산(A)에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한 상기 알케닐기(Ak)의 몰비(Ak/Si)가 0.02 내지 0.2 또는 0.02 내지 0.15가 되는 양으로 존재할 수 있다. 상기 몰비(Ak/Si)를 0.02 이상으로 조절하여, 성분(B)와의 반응성을 적절하게 유지하고, 미반응 성분이 경화물의 표면으로 배어나오는 현상을 방지할 수 있다. 또한, 상기 몰비(Ak/Si)를 0.2 이하로 조절하여, 경화물의 균열 내성을 우수하게 유지할 수 있다.
- [25] 화학식 1의 평균 조성식에서 a, b, c 및 d는 각 실록산 단위의 몰 비율을 나타내고, 그 총합(a+b+c+d)은 1이며, a는 0.01 내지 0.210이고, b는 0 내지 0.98이며, c는 0.01 내지 0.30이고, d는 0 내지 0.3일 수 있다.
- [26] 화학식 1의 평균 조성식으로 표시되는 오가노폴리실록산은, 이 분야에서 통상적으로 ( $R_3SiO_{1/2}$ )으로 표시되는 경우가 있는 소위 일관능성 실록산 단위(이하, 「M 단위」라 칭할 수 있다.), ( $R_2SiO_{2/2}$ )로 표시되는 경우가 있는 소위 2관능성 실록산 단위(이하, 「D 단위」라 칭할 수 있다.), ( $RSiO_{3/2}$ )로 표시되는 경우가 있는 소위 3관능성 실록산 단위(이하, 「T 단위」라 칭할 수 있다.) 및/또는 ( $SiO_2$ )로 표시되는 경우가 있는 소위 4관능성 실록산 단위(이하, 「Q 단위」라 칭할 수 있다.)를 포함할 수 있고, 예를 들면, M, D 및 T 단위를 포함할 수 있다.
- [27] 하나의 예시에서 오가노폴리실록산(A)은, 구조 중에서 T 단위로부터 유래하는 구조(이하, 「가교 구조」라 칭할 수 있다.)를 가지면서 D 단위로부터 유래하는 선형 구조가 충분히 긴 구조일 수 있다. 예시적인 오가노폴리실록산은 화학식 1의 평균 조성식에서 b/c가 5 이상, 7 이상, 8 이상 또는 10 이상일 수 있다. 또한, 상기 평균 조성식에서 b/a는 5 이상, 8 이상 또는 10 이상일 수 있다. 상기에서 b/c의 상한은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 70, 60, 50, 40, 30 또는 25일 수 있다. 또한, b/a의 상한도 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 110, 100, 90, 80, 70, 60, 50 또는 40일 수 있다. 화학식 1에서 b/(a+b+c+d)는 예를 들면, 0.5 이상, 0.6 이상 또는 0.7 이상일 수 있다. 상기 b/(a+b+c+d)의 상한은

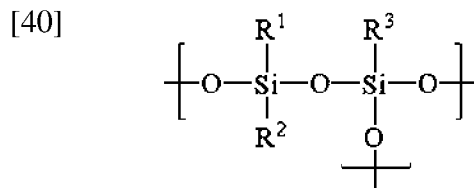
- 특별히 제한되지 않으나, 상기는 1 미만 또는 0.98 이하일 수 있다. 화학식 1에서  $b/(b+c)$ 는 예를 들면, 0.5 이상, 0.6 이상 또는 0.7 이상일 수 있다. 상기  $b/(b+c)$ 의 상한은 특별히 제한되지 않으나, 상기는 1 미만 또는 0.98 이하일 수 있다. 본 명세서에서 상기와 같은 실록산 단위의 비율을 가지는 오가노폴리실록산은 부분 가교 구조의 오가노폴리실록산으로 호칭될 수 있다. 오가노폴리실록산이 상기와 같은 구조를 가지면, 적용 용도에 따라서 적합한 물성을 나타낼 수 있다.
- [28] 화학식 1의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은, 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기를 1개 이상 포함할 수 있다. 예시적인 오가노폴리실록산에서는, 상기 오가노폴리실록산에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한 상기 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기(Ar)의 몰비(Ar/Si)가 0.3 이상, 0.5 이상 또는 0.7 이상일 수 있다. 이러한 범위에서 굴절률, 광추출 효율, 균열 내성, 경도 및 점도 특성 등을 우수하게 유지할 수 있다. 한편, 상기 몰비(Ar/Si)의 상한은, 예를 들면, 1.5 또는 1.3일 수 있다.
- [29] 하나의 예시에서 화학식 1의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산의 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기의 하나 이상은 D 단위의 규소 원자에 결합되어 있을 수 있다. 예시적인 오가노폴리실록산은, D 단위의 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기를 하나 이상 포함하고, 상기 오가노폴리실록산의 전체 규소 원자(Si)에 대한 상기 D 단위의 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기(Ar-D)의 몰비(Ar-D/Si)가 0.2 이상, 0.4 이상 또는 0.6 이상일 수 있다. 상기 예시에서 상기 몰비(Ar-D/Si)의 상한은, 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 1.8 또는 1.5일 수 있다.
- [30] 화학식 1의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산의 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기의 하나 이상은 T 단위의 규소 원자에 결합되어 있을 수 있다.
- [31] 하나의 예시에서 화학식 1의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산의 규소 원자에 결합되어 있는 아릴기는 모두 D 및/또는 T 단위의 규소 원자에 결합되어 있으면서, 상기 기술한 몰비(Ar/Si 및/또는 Ar-D/Si)를 만족할 수 있다. 상기 오가노폴리실록산 또는 그를 포함하는 봉지재의 우수한 굴절률, 광추출 효율, 균열 내성, 경도 및 점도 특성 등을 나타낼 수 있다.
- [32] 하나의 예시에서 상기 오가노폴리실록산 (A)는 하기 화학식 2의 평균 조성식으로 표시되는 화합물일 수 있다.
- [33] [화학식 2]
- [34]  $(R^1R^2SiO_{1/2})_a(R^6R^7SiO_{2/2})_l(R^8R^9SiO_{2/2})_m(R^5SiO_{3/2})_c$
- [35] 화학식 2에서  $R^1, R^2$  및  $R^5$ 는 화학식 1에서 정의한 바와 같고,  $R^6$ 는, 탄소수 6 내지 25의 아릴기이고,  $R^7, R^8$  및  $R^9$ 은 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이며,  $R^1, R^7, R^8$  및  $R^9$  중 적어도 하나는 알케닐기이며,  $a+l+m+c$ 을 1로 환산하였을 때에  $a$ 는 0.01 내지 0.10이고,  $l$ 은 0 내지 0.90이며,  $m$ 은 0 내지 0.90이고,  $c$ 은 0.01 내지 0.30이고,  $(l+m)/a$ 는 5 이상이며,  $(l+m)/c$ 는 5 이상이다.

[36] 화학식 2의 평균 조성식에서 a, l, m 및 c는 각 실록산 단위의 몰 비율을 나타내고, 그 총합(a+l+m+c)을 1로 환산하는 경우, a는 0.01 내지 0.10이고, l은 0 내지 0.90이며, m은 0 내지 0.90이고, c는 0.01 내지 0.30이다. 또한, 상기에서 l 및 m의 합을 화학식 1의 조성식의 b로 하였을 경우에, a, l, m 및 c는 화학식 1의 항목에서 언급한 몰 비율을 만족하도록 수치가 조절될 수 있다. 예를 들면, 화학식 2에서 (l+m)/c가 5 이상, 7 이상, 8 이상 또는 10 이상일 수 있다. 또한, 상기 평균 조성식에서 (l+m)/a는 5 이상, 8 이상 또는 10 이상일 수 있다. 상기에서 (l+m)/c의 상한은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 70, 60, 50, 40, 30 또는 25일 수 있다. 또한, (l+m)/a의 상한도 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 110, 100, 90, 80, 70, 60, 50 또는 40일 수 있다. 화학식 2에서 (l+m)/(a+l+m+c)는 예를 들면, 0.5 이상, 0.6 이상 또는 0.7 이상일 수 있다. 상기 (l+m)/(a+l+m+c)의 상한은 특별히 제한되지 않으나, 상기는 1 미만 또는 0.98 이하일 수 있다. 화학식 2에서 (l+m)/(l+m+c)는 예를 들면, 0.5 이상, 0.6 이상 또는 0.7 이상일 수 있다. 상기 (l+m)/(l+m+c)의 상한은 특별히 제한되지 않으나, 상기는 1 미만 또는 0.98 이하일 수 있다.

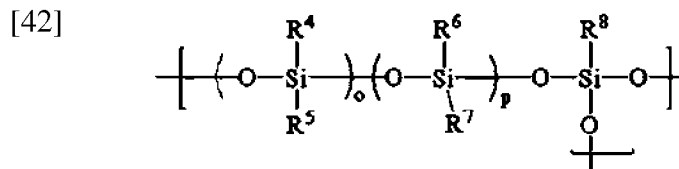
[37] 또한, 화학식 2의 평균 조성식에서 l 및 m은 모두 0이 아닐 수 있다. l 및 m이 모두 0이 아닌 경우에 l/m은 0.4 내지 2.0, 0.4 내지 1.5 또는 0.5 내지 1의 범위 내에 있을 수 있다.

[38] 하나의 예시에서, 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은, 하기 화학식 3 또는 4의 단위를 포함할 수 있다.

[39] [화학식 3]



[41] [화학식 4]



[43] 화학식 3 및 4에서 R<sup>1</sup> 내지 R<sup>8</sup>은 각각 독립적으로 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이고, o는 0 내지 300이며, p는 0 내지 300이다.

[44] 예시적인 오가노폴리실록산은, 화학식 3 또는 4의 단위를 하나 이상 포함할 수 있다. 화학식 3 또는 4의 단위는, 오가노폴리실록산을 형성하는 실록산 단위 중에서 D 단위의 규소 원자와 T 단위의 규소 원자가 산소 원자를 매개로 직접 결합되어 있는 형태의 단위이다. 하나의 예시에서 전술한 바와 같이, 상기

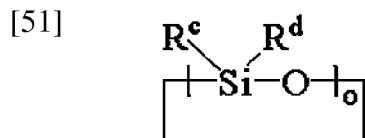
오가노폴리실록산이 2개 이상의 성분의 혼합물이면서 상기 각 성분의 조성의 평균이, 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식으로 표시되는 경우에도 상기 오가노폴리실록산은 하기 화학식 3 또는 4의 단위를 가지는 단일의 성분을 적어도 하나 포함할 수 있다. 화학식 3 또는 4의 단위를 포함하는 오가노폴리실록산은, 예를 들면, 후술하는 바와 같이 고리 구조의 실록산 화합물을 케이지(cage) 또는 부분 케이지(partial cage) 구조를 가지거나 T 단위를 포함하는 오가노폴리실록산을 반응시켜서 제조할 수 있다. 특히, 상기 방식을 적용하면, 화학식 3 또는 4의 단위를 포함하면서도, 구조 중에서 알콕시기가 결합된 규소 원자 및 히드록시기가 결합된 규소 원자 등이 최소화된 오가노폴리실록산의 제조가 가능하다.

- [45] 하나의 예시에서 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은,  $^1\text{H}$  NMR 측정에 의해 구해지는 스펙트럼에서 규소 원자에 결합된 알케닐기로부터 유리되는 면적(Ak) 대비 규소 원자에 결합된 알콕시기로부터 유래하는 피크의 면적(OR)의 비율(OR/Ak)이 0.05 이하, 0.03 이하, 0.01 이하, 0.005 이하 또는 0일 수 있다. 상기 범위에서 적절한 점도 특성을 나타내면서, 다른 물성도 우수하게 유지될 수 있다. 또한, 상기에서  $^1\text{H}$  NMR 측정에 의한 스펙트럼은 구체적으로는 하기 실시예에서 기재하는 방식에 따라 구해진다.
- [46] 또한, 하나의 예시에서 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은 KOH 적정에 의해 구해지는 산가(acid value)가 0.05 mgKOH/g 이하, 0.03 mgKOH/g 이하, 0.01 mgKOH/g 이하 또는 0 mgKOH/g일 수 있다. 상기 범위에서 적절한 점도 특성을 나타내면서, 다른 물성도 우수하게 유지될 수 있다. 또한, 상기에서 KOH 적정에 의한 산가는 구체적으로는 하기 실시예에서 기재하는 방식에 따라 구해진다.
- [47] 하나의 예시에서 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은, 25°C에서의 점도가 2,000 cP 이상, 3,000 cP 이상, 4,000 cP 이상, 5,000 cP 이상, 7,000 cP 이상, 9,000 cP 이상 또는 9,500 cP 이상일 수 있다. 이러한 범위에서 상기 오가노폴리실록산의 가공성 및 경도 특성 등이 적절하게 유지될 수 있다. 한편, 상기 점도의 상한은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 상기 점도는, 100,000 cP 이하, 90,000 cP 이하, 80,000 cP 이하, 70,000 cP 이하 또는 65,000 cP 이하일 수 있다.
- [48] 하나의 예시에서 화학식 1 또는 화학식 2의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산은, 중량평균분자량(Mw: Weight Average Molecular Weight)이 1,500 이상, 2,000 이상, 3,000 이상, 4,000 이상 또는 5,000 이상일 수 있다. 본 명세서에서 용어 중량평균분자량은 GPC(Gel Permeation Chromatograph)로 측정된 표준 폴리스티렌에 대한 환산 수치를 의미한다. 또한, 본 명세서에서 특별하게 달리 규정하지 않는 한, 용어 분자량은 중량평균분자량을 의미할 수 있다. 이러한 범위에서 상기 오가노폴리실록산의 성형성, 경도 및 강도 특성

등이 적절하게 유지될 수 있다. 한편, 상기 분자량의 상한은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면, 상기 분자량은, 14,000 이하, 12,000 이하 또는 10,000 이하일 수 있다.

- [49] 상기 오가노폴리실록산은, 예를 들면, 고리 구조의 실록산 화합물을 케이지 구조 또는 부분 케이지 구조를 가지거나, T 단위를 포함하는 오가노폴리실록산과 함께 포함하는 혼합물의 반응물일 수 있다. 상기에서 고리 구조의 실록산 화합물로는, 하기 화학식 5로 표시되는 화합물이 예시될 수 있다. 또한, 케이지 또는 부분 케이지 구조를 가지거나, T 단위를 포함하는 오가노폴리실록산은, 하기 화학식 6 또는 7의 평균 조성식으로 표시될 수 있다.

[50] [화학식 5]



[52] [화학식 6]

[53]  $[R^eSiO_{3/2}]$

[54] [화학식 7]

[55]  $[R^aR^b_2SiO_{1/2}]_p[R^eSiO_{3/2}]_q$

- [56] 화학식 5 내지 7에서,  $R^a$ 는 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고,  $R^b$ 는 탄소수 1 내지 4의 알킬기이며,  $R^c$  내지  $R^e$ 는, 각각 독립적으로 탄소수 6 내지 25의 아릴기, 탄소수 1 내지 20의 알킬기 또는 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고,  $o$ 는 3 내지 6이고,  $p$ 는 1 내지 3이며,  $q$ 는 1 내지 10이다.

- [57] 화학식 5 내지 7에서,  $R^a$ ,  $R^c$ ,  $R^d$  및  $R^e$ 의 구체적인 종류와  $o$ ,  $p$  및  $q$ 의 구체적인 수치, 그리고 상기 혼합물 내에서의 각 성분의 비율은 목적하는 구조의 오가노폴리실록산에 의하여 정해질 수 있다.

- [58] 화학식 5의 화합물을 화학식 6 및/또는 7의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산과 함께 포함하는 혼합물을 반응시키면, 목적하는 구조, 예를 들면, 전술한 부분 가교 구조를 가지는 오가노폴리실록산을 충분한 분자량으로 합성할 수 있다.

- [59] 상기와 같은 혼합물을 반응시키면, 합성된 오가노폴리실록산 내에서 규소 원자에 결합하고 있는 알콕시거나 히드록시기와 같은 관능기를 최소화하여, 우수한 물성을 가지는 목적물을 제조할 수 있다.

- [60] 하나의 예시에서 상기 혼합물은 하기 화학식 8로 표시되는 화합물을 추가로 포함할 수 있다.

[61] [화학식 8]

[62]  $(R^aR^b_2Si)_2O$

- [63] 화학식 8에서,  $R^a$ 는 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고,  $R^b$ 는 탄소수 1 내지 4의 알킬기이다.

- [64] 화학식 8에서, R<sup>a</sup> 및 R<sup>b</sup>의 구체적인 종류와 혼합물로의 배합 비율은 목적하는 오가노폴리실록산의 구조에 따라서 정해질 수 있다.
- [65] 하나의 예시에서 상기 혼합물 내의 각 성분의 반응은, 적절한 촉매의 존재 하에서 수행될 수 있다. 따라서, 상기 혼합물은 촉매를 추가로 포함할 수 있다. 상기 혼합물의 포함될 수 있는 촉매로는, 예를 들면, 염기 촉매를 들 수 있다. 적절한 염기 촉매로는, KOH, NaOH 또는 CsOH 등과 같은 금속 수산화물; 알칼리 금속 화합물과 실록산을 포함하는 금속 실라놀레이트(metal silanolate) 또는 테트라메틸암모늄 히드록시드(tetramethylammonium hydroxide), 테트라에틸암모늄 히드록시드(tetraethylammonium hydroxide) 또는 테트라프로필암모늄 히드록시드(tetrapropylammonium hydroxide) 등과 같은 4급 암모늄 화합물 등이 예시될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [66] 혼합물 내에서 상기 촉매의 비율은 목적하는 반응성 등을 고려하여 적절히 선택될 수 있고, 예를 들면, 혼합물 내의 반응물의 합계 중량 100 중량부에 대하여 0.01 중량부 내지 30 중량부 또는 0.03 중량부 내지 5 중량부의 비율로 포함될 수 있다. 본 명세서에서 특별히 달리 규정하지 않는 한, 단위 중량부는 각 성분간의 중량의 비율을 의미한다.
- [67] 하나의 예시에서, 상기 반응은, 적절한 용매의 존재 하에 수행될 수 있다. 용매로는, 상기 혼합물 내의 반응물, 즉 디실록산 또는 오가노폴리실록산 등과 촉매가 적절히 혼합될 수 있고, 반응성에 큰 지장을 주지 않는 것이라면 어떠한 종류도 사용될 수 있다. 용매로는, n-펜탄, i-펜탄, n-헥산, i-헥산, 2,2,4-트리메틸펜탄, 시클로헥산 또는 메틸시클로헥산 등의 지방족 탄화수소계 용매; 벤젠, 톨루엔, 크실렌, 트리메틸벤젠, 에틸 벤젠 또는 메틸에틸 벤젠 등의 방향족계 용매, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 디에틸케톤, 메틸 n-프로필 케톤, 메틸 n-부틸 케톤, 시클로헥사논, 메틸시클로헥사논 또는 아세틸아세톤 등의 케톤계 용매; 테트라히드로푸란, 2-메틸 테트라히드로푸란, 에틸 에테르, n-프로필 에테르, 이소프로필 에테르, 디글라임, 디옥신, 디메틸 디옥신, 에틸렌글리콜 모노 메틸 에테르, 에틸렌글리콜 디메틸 에테르, 에틸렌글리콜디에틸 에테르, 프로필렌글리콜 모노 메틸 에테르 또는 프로필렌글리콜 디메틸 에테르 등의 에테르계 용매; 디에틸 카보네이트, 메틸 아세테이트, 에틸 아세테이트, 에틸 락테이트, 에틸렌글리콜 모노 메틸 에테르 아세테이트, 프로필렌글리콜 모노 메틸 에테르 아세테이트 또는 에틸렌글리콜 디아세테이트 등의 에스테르계 용매; N-메틸 피롤리돈, 포름아미드, N-메틸 포름아미드, N-에틸 포름아미드, N,N-디메틸 아세트아미드 또는 N,N-디에틸아세트아미드 등의 아미드계 용매가 예시될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [68] 상기 반응은, 예를 들면, 상기 반응물에 촉매를 첨가하고 반응시켜서 제조될 수 있다. 상기에서 반응 온도는 예를 들면, 0°C 내지 150°C 또는 30°C 내지 130°C의 범위 내에서 조절될 수 있다. 또한, 상기 반응 시간은 예를 들면, 1시간 내지

3일의 범위 내에서 조절될 수 있다.

- [69] 경화성 조성물은 (B) 규소 원자에 결합하고 있는 수소 원자를 하나 또는 2개 이상 포함하는 오가노폴리실록산을 포함할 수 있다.
- [70] (B) 화합물은, 경화성 조성물을 가교시키는 가교제로서 작용할 수 있다. (B) 화합물로는, 규소 원자에 결합한 수소 원자(Si-H)를 포함하는 것이라면, 다양한 종류가 사용될 수 있다. (B) 화합물은, 선형, 분지형, 고리형 또는 가교형의 오가노폴리실록산일 수 있고, 규소 원자가 2개 내지 1000개 또는 3내지 300개인 화합물일 수 있다.
- [71] 하나의 예시에서 (B) 화합물은, 하기 화학식 9의 화합물 또는 하기 화학식 10의 평균 조성식으로 표시되는 화합물일 수 있다.
- [72] [화학식 9]
- [73]  $R_3SiO(R_2SiO)_nSiR_3$
- [74] 화학식 9에서 R은 각각 독립적으로 수소 또는 1가의 탄화수소기이고, R 중 하나 또는 두 개 이상은 수소 원자이며, R 중 적어도 하나는 아릴기이고, n은 1 내지 100이다.
- [75] [화학식 10]
- [76]  $(R_3SiO_{1/2})_h(R_2SiO_{2/2})_i(RSiO_{3/2})_j(SiO_2)_k$
- [77] 화학식 10에서 R은 각각 독립적으로 수소 또는 1가의 탄화수소기이고, R 중 하나 또는 두 개 이상은 수소 원자이며, R 중 적어도 하나는 아릴기이고, h+i+j+k를 1로 환산하였을 때, h는 0.1 내지 0.8이고, i는 0 내지 0.5이며, j는 0.1 내지 0.8이고, k는 0 내지 0.2이다.
- [78] 화학식 9의 화합물은, 규소 원자에 결합된 수소 원자를 적어도 2개 가지는 선형 오가노폴리실록산이며, 화학식 9에서, n은 1 내지 100, 1 내지 50, 1 내지 25, 1 내지 10 또는 1 내지 5일 수 있다.
- [79] 하나의 예시에서 (B) 화합물에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한 규소 원자 결합 수소 원자(H)의 몰비(H/Si)는 0.2 내지 0.8 또는 0.3 내지 0.75일 수 있다. 상기 몰비를 0.2 또는 0.3 이상으로 조절하여, 조성물의 경화성을 우수하게 유지하고, 또한, 0.8 또는 0.75 이하로 조절하여, 균열 내성 및 내열충격성 등을 우수하게 유지할 수 있다.
- [80] 또한, (B) 화합물은 적어도 하나의 아릴기를 포함할 수 있고, 이에 따라 화학식 9에서 R 중 적어도 하나, 또는 화학식 10에서 R 중 적어도 하나는 아릴기일 수 있다. 이에 따라 경화물의 굴절률 및 경도 특성 등을 효과적으로 제어할 수 있다. 상기 아릴기는, (B) 화합물에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한, 상기 아릴기(Ar)의 몰비(Ar/Si)가 0.5 내지 1.5 또는 0.5 내지 1.3이 되는 양으로 존재할 수 있다. 상기 몰비(Ar/Si)를 0.5 이상으로 조절하여, 경화물의 굴절률 및 경도 특성을 극대화할 수 있고, 또한 1.5 또는 1.3 이하로 조절하여, 조성물의 점도 및 내크랙 특성을 적절하게 유지할 수 있다.
- [81] (B) 화합물은, 25°C에서의 점도가 0.1 cP 내지 100,000 cP, 0.1 cP 내지 10,000 cP,

- 0.1 cP 내지 1,000 cP 또는 0.1 cP 내지 300 cP일 수 있다. (B) 화합물이 상기와 같은 점도를 가지면, 조성물의 가공성 및 경화물의 경도 특성 등의 우수하게 유지할 수 있다.
- [82] (B) 화합물은, 예를 들면, 2,000 미만, 1,000 미만 또는 800 미만의 분자량을 가질 수 있다. (B) 화합물의 분자량이 1,000 이상이면, 경화물의 강도가 떨어질 우려가 있다. (B) 화합물의 분자량의 하한은 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 250일 수 있다. (B) 화합물의 경우, 분자량은 중량평균분자량이거나, 혹은 화합물의 통상적인 분자량을 의미할 수 있다.
- [83] (B) 화합물을 제조하는 방법은 특별히 제한되지 않고, 예를 들면, 오가노폴리실록산의 제조에 통상적으로 공지된 방식을 적용하거나, 혹은 상기 (A) 오가노폴리실록산에 준하는 방식을 적용하여 제조할 수 있다.
- [84] 하나의 예시에서 (B) 화합물의 함량은, 경화성 조성물에 포함되는 알케닐기의 양에 따라서 결정될 수 있다. 하나의 예시에서 상기 (B) 화합물은, 경화성 조성물에 포함되는 알케닐기(Ak) 전체에 대한 (B) 화합물에 포함되는 규소 원자에 결합한 수소 원자(H)의 몰비(H/Ak)가 0.5 내지 2.0 또는 0.7 내지 1.5가 되는 범위에서 선택될 수 있다. 상기 몰비(H/Ak)로 배합함으로써, 경화 전에 우수한 가공성과 작업성을 나타내고, 경화되어 뛰어난 균열 내성, 경도 특성, 내열 충격성 및 접착성을 나타내며, 가혹 조건에서의 백탁이나, 표면의 끈적임 등을 유발하지 않는 조성물을 제공할 수 있다. (B) 화합물의 함량은, 중량 비율로는, 예를 들면, (A) 화합물 100 중량부에 대하여, 50 중량부 내지 500 중량부 또는 50 중량부 내지 400 중량부의 범위일 수 있다.
- [85] 경화성 조성물은, (C) 가교 구조를 가지는 오가노폴리실록산을 추가로 포함할 수 있다.
- [86] 본 명세서에서 용어 「가교 구조」의 오가노폴리실록산은, 구조 중에 T 단위 또는 통상(SiO<sub>2</sub>)로 표시되는 경우가 있는 소위 4관능성 실록산 단위(이하, 「Q 단위」라 호칭할 수 있다.) 중 적어도 하나의 단위를 포함하는 오가노폴리실록산으로서, 상기 부분 가교 구조의 오가노폴리실록산에는 해당하지 않는 오가노폴리실록산을 의미할 수 있다.
- [87] 하나의 예시에서 상기 (C) 오가노폴리실록산은 하기 화학식 11의 평균 조성식으로 표시될 수 있다.
- [88] [화학식 11]
- [89]  $(R_3SiO_{1/2})_d(R_2SiO_{2/2})_e(RSiO_{3/2})_f(SiO_{4/2})_g$
- [90] 화학식 11에서 R은 각각 독립적으로 1가 탄화수소기 또는 에폭시기이되, R 중 적어도 하나는 알케닐기이고, R 중 적어도 하나는 아릴기이며, d+e+f+g를 1로 환산하였을 때에 d는 0.05 내지 0.5이고, e는 0 내지 0.3이며, f는 0.6 내지 0.95이고, g는 0 내지 0.2이며, (d+e)/(d+e+f+g)는 0.2 내지 0.7이고, e/(e+f+g)는 0.3 이하이며, f/(f+g)는 0.8 이상이다.
- [91] 화학식 11에서 R 중 하나 또는 2개 이상은 알케닐기일 수 있다. 하나의

예시에서 알케닐기는, 상기 (C) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한 상기 알케닐기(Ak)의 몰비(Ak/Si)가 0.05 내지 0.4 또는 0.05 내지 0.35가 되도록 하는 양으로 존재할 수 있다. 상기 몰비(Ak/Si)를 0.05 이상으로 조절하여, 반응성을 적절하게 유지하고, 미반응 성분이 경화물의 표면으로 배어나오는 현상을 방지할 수 있다. 또한, 상기 몰비(Ak/Si)를 0.4 또는 0.35 이하로 조절하여, 경화물의 경도 특성, 균열 내성 및 내열충격성 등을 우수하게 유지할 수 있다.

- [92] 화학식 11에서 R 중 하나 이상은 아릴기일 수 있다. 이에 따라 경화물의 굴절률 및 경도 특성 등을 효과적으로 제어할 수 있다. 아릴기는, (C) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한, 상기 아릴기(Ar)의 몰비(Ar/Si)가 0.5 내지 1.5 또는 0.5 내지 1.2가 되는 양으로 존재할 수 있다. 상기 몰비(Ar/Si)를 0.5 이상으로 조절하여, 경화물의 굴절률 및 경도 특성을 극대화할 수 있고, 또한 1.5 또는 1.2 이하로 조절하여, 조성물의 점도 및 내열 충격성 등도 적절하게 유지할 수 있다.
- [93] 화학식 11의 평균 조성식에서 d, e, f 및 g는 각 실록산 단위의 몰 비율을 나타내고, 그 총합을 1로 환산하면, d는 0.05 내지 0.5이며, e는 0 내지 0.3이고, f는 0.6 내지 0.95이며, g는 0 내지 0.2이다. 단, f 및 g는 동시에 0은 아니다. 경화물의 강도, 균열 내성 및 내열충격성을 극대화하기 위하여, 상기에서  $(d+e)/(d+e+f+g)$ 는 0.2 내지 0.7이며,  $e/(e+f+g)$ 는 0.3 이하이고,  $f/(f+g)$ 는 0.8 이상의 범위로 조절할 수 있다. 상기에서  $e/(e+f+g)$ 의 하한은 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 상기  $e/(e+f+g)$ 는 0을 초과할 수 있다. 또한, 상기에서  $f/(f+g)$ 의 상한은 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 상한은, 1.0일 수 있다
- [94] (C) 오가노폴리실록산은, 25°C에서의 점도가 5,000 cP 이상 또는 10,000 cP 이상일 수 있고, 이에 따라 경화 전의 가공성과 경화 후의 경도 특성 등의 적절하게 유지할 수 있다.
- [95] (C) 오가노폴리실록산은, 예를 들면, 800 내지 20,000 또는 800 내지 10,000의 분자량을 가질 수 있다. 분자량을 800 이상으로 조절하여, 경화 전의 성형성이나, 경화 후의 강도를 효과적으로 유지될 수 있고, 분자량을 20,000 또는 10,000 이하로 조절하여, 점도 등을 적절한 수준으로 유지할 수 있다.
- [96] (C) 오가노폴리실록산을 제조하는 방법은 특별히 제한되지 않고, 예를 들면, 당업계에서 통상적으로 공지되어 있는 제조 방법을 적용하거나, 또는 상기 (A) 오가노폴리실록산의 제조와 유사한 방식을 적용할 수 있다.
- [97] (C) 오가노폴리실록산은, 예를 들면, 상기 (A) 오가노폴리실록산 100 중량부에 대하여, 50 중량부 내지 1,000 중량부 또는 50 중량부 내지 700 중량부로 혼합될 수 있다. (C) 오가노폴리실록산의 중량 비율을 50 중량부 이상으로 조절하여, 경화물의 강도를 우수하게 유지하고, 또한 1000 중량부 또는 700 중량부 이하로 조절하여, 균열 내성 및 내열충격성을 우수하게 유지할 수 있다.
- [98] 경화성 조성물은, 또한 (D) 선형 오가노폴리실록산을 추가로 포함할 수 있다.

상기에서 선형 오가노폴리실록산은, 실록산 단위로서 D 단위 및 M 단위만을 포함하는 오가노폴리실록산을 의미할 수 있다.

[99] 하나의 예시에서 상기 선형 오가노폴리실록산은 하기 화학식 12의 평균 조성식으로 표시될 수 있다.

[100] [화학식 12]

[101]  $(R^{16}_3SiO_{1/2})_i(R^{17}_2SiO_{2/2})_j$

[102] 화학식 12에서,  $R^{16}$  및  $R^{17}$ 은 각각 독립적으로, 수소, 히드록시기, 에폭시기, 아크릴로일기, 메타크릴로일기, 이소시아네이트기 또는 1가의 탄화수소기를 나타내며, 적어도 2개는 알케닐기이고, 적어도 1개는 아릴기이며,  $i+j$ 를 1로 환산하였을 때,  $i$ 는 0 내지 0.5이고,  $j$ 는 0.5 내지 0.98이다.

[103] 화학식 12에서 1가 탄화수소기의 구체적인 예는 화학식 1에서 기술한 바와 같다.

[104] 화학식 12에서  $R^{16}$  및  $R^{17}$  중 2개 이상은 알케닐기이다. 하나의 예시에서 알케닐기는, 상기 화합물 (D)에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한 상기 알케닐기(Ak)의 몰비(Ak/Si)가 0.02 내지 0.2 또는 0.02 내지 0.15가 되는 양으로 존재할 수 있다. 몰비(Ak/Si)를 0.02 이상으로 조절하여, 성분 (B)와의 반응성을 적절하게 유지하고, 미반응 성분이 경화물의 표면으로 배어나오는 현상을 방지할 수 있다. 또한, 상기 몰비(Ak/Si)를 0.2 이하로 조절하여, 경화물의 균열 내성을 우수하게 유지할 수 있다.

[105] 또한, 상기 화학식 12에서  $R^{16}$  및  $R^{17}$  중 적어도 하나는 아릴기일 수 있다. 상기 아릴기는, 화합물 (D)에 포함되는 전체 규소 원자(Si)에 대한, 아릴기(Ar)의 몰비(Ar/Si)가 0.3 내지 1.3 또는 0.4 내지 1.3가 되는 양으로 존재할 수 있고, 예를 들면 0.6 내지 1.3이 되는 양으로 존재할 수 있다. 상기 몰비(Ar/Si)를 0.3 이상으로 조절하여, 경화물의 굴절률 및 경도 특성을 극대화할 수 있고, 또한 1.3 이하로 조절하여, 조성물의 점도 등도 적절하게 유지할 수 있다.

[106] 화학식 12의 평균 조성식에서  $i$  및  $j$ 는 각 실록산 단위의 몰 비율을 나타내고, 그 총합을 1로 환산하는 경우,  $i$ 는 0 내지 0.5이고,  $j$ 는 0.5 내지 0.98이다.

[107] (D) 화합물은, 25°C에서 점도가 1,000 cP 내지 100,000 cP, 또는 1,000 cP 내지 50,000 cP일 수 있다. 이 범위에서 조성물의 경화 전의 가공성 내지는 작업성과 경화 후의 경도 특성 등을 우수하게 유지할 수 있다.

[108] 또한, (D) 화합물은, 예를 들면, 1,000 내지 50,000 또는 1,000 내지 30,000의 분자량을 가질 수 있다. (D) 화합물의 분자량을 1,000 이상으로 조절하여, 점도가 적절하게 유지되고, 경화되어 우수한 강도 및 균열 내성을 가지는 조성물을 제공할 수 있다. 또한, (D) 화합물의 분자량을 50,000 이하로 조절하여, 조성물의 점도를 적절하게 유지하여, 작업성 및 가공성을 우수하게 유지할 수 있다.

[109] (D) 화합물은, 예를 들면, (B) 성분에 대하여 기술한 것과 동일한 방식으로 제조할 수 있다.

[110] 한편, 경화성 조성물 내에서 상기 (D) 성분의 배합 비율은 특별히 제한되지

않고, 예를 들면, 조성물의 점도 등의 물성을 고려하여 적절한 비율로 배합될 수 있다.

- [111] 경화성 조성물은 입자, 예를 들면 무기 입자를 포함할 수 있다. 상기 무기 입자는 상기 조성물 또는 그 경화물의 굴절률과의 차이의 절대값이 0.1 이하가 되는 범위의 굴절률을 가질 수 있다.
- [112] 상기 입자는, 예를 들어, 상기 조성물 중에 형광체가 배합되는 경우, 경화 과정에서 상기 형광체가 침강하는 문제점을 방지할 수 있고, 또한 내열성, 방열성 균열 내성 등도 향상시켜, 전체적인 신뢰성을 개선할 수 있다. 또한, 상기 입자는 상기 범위의 굴절률을 가져서 상기와 같은 작용을 하면서도 조성물 또는 경화물의 투명도도 유지시켜서, 소자에 적용되는 경우 그 휘도를 향상시킬 수 있다.
- [113] 상기 입자로는, 상기 입자를 제외한 조성물 또는 그 경화물과의 굴절률의 차이의 절대값이 0.1 이하인 한 당업계에서 사용되는 다양한 종류의 입자를 모두 사용할 수 있다. 상기 입자는, 상기 입자를 제외한 조성물 또는 그 경화물과의 굴절률의 차이의 절대값이 0.07 이하 또는 0.05 이하일 수 있다. 예를 들면, 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 오르가노 실리카, 알루미늄, 알루미늄 실리카, 티타니아, 지르코니아, 산화 세륨, 산화 하프늄, 오산화 니오브, 오산화 탄탈, 산화 인듐, 산화 주석, 산화 인듐 주석, 산화 아연, 규소, 황아연, 탄산칼슘, 황산바륨, 알루미늄 실리케이트 또는 산화마그네슘 등이 예시될 수 있으며, 상기 다공성의 형태이거나, 혹은 중공 입자(hollow particle)의 형태일 수 있다.
- [114] 상기 입자의 평균 입경은, 예를 들면, 1 nm 내지 50 m 또는 2 nm 내지 10 m일 수 있다. 상기 평균 입경을 1 nm 이상으로 하여, 입자를 조성물 또는 그 경화물 내에 균일하게 분산시킬 수 있고, 또한 50 m 이하로 하여, 입자의 분산을 효과적으로 수행하고, 또한 입자의 침강을 방지할 수 있다.
- [115] 상기 입자는 상기 (A) 화합물 100 중량부 또는 (A) 화합물 및 (C) 화합물의 합계 중량 100 중량부에 대하여, 0.1 중량부 내지 30 중량부 또는 0.2 중량부 내지 10 중량부로 조성물에 포함될 수 있다. 상기 입자의 함량이 0.1 중량부 이상이며, 탁월한 형광체의 침강 억제 또는 소자의 신뢰성 향상 효과가 확보될 수 있고, 30 중량부 이하이면, 공정성이 우수하게 유지될 수 있다.
- [116] 상기 조성물은, 히드로실릴화 촉매를 추가로 포함할 수 있다. 상기 히드로실릴화 촉매는, 전술한 (A) 화합물 및/또는 (C) 화합물의 알케닐기와 (B) 화합물의 규소 원자 결합 수소 원자의 반응을 촉진하기 위해 사용될 수 있다. 히드로실릴화 촉매로는, 이 분야에서 공지된 통상의 성분을 모두 사용할 수 있다. 이와 같은 촉매의 예로는, 백금, 팔라듐 또는 로듐계 촉매 등을 들 수 있다. 본 출원에서는, 촉매 효율 등을 고려하여, 백금계 촉매를 사용할 수 있고, 이러한 촉매의 예로는 염화 백금산, 사염화 백금, 백금의 올레핀 착체, 백금의 알케닐 실록산 착체 또는 백금의 카보닐 착체 등을 들 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

- [117] 상기 히드로실릴화 촉매의 함량은, 소위 촉매량, 즉 촉매로서 작용할 수 있는 양으로 포함되는 한 특별히 제한되지 않는다. 통상적으로, 백금, 팔라듐 또는 로듐의 원자량을 기준으로 0.1 ppm 내지 500 ppm 또는 0.2 ppm 내지 100 ppm의 양으로 사용할 수 있다.
- [118] 상기 조성물은 또한, 각종 기재에 대한 접착성의 추가적인 향상의 관점에서, 접착성 부여제를 추가로 포함할 수 있다. 접착성 부여제는 조성물 또는 경화물에 자기 접착성을 개선할 수 있는 성분으로서, 특히 금속 및 유기 수지에 대한 자기 접착성을 개선할 수 있다.
- [119] 접착성 부여제의 예로는, 비닐기 등의 알케닐기, (메타)아크릴로일옥시기, 히드로실릴기(SiH기), 에폭시기, 알콕시기, 알콕시실릴기, 카르보닐기 및 페닐기로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상 또는 2종 이상의 관능기를 가지는 실란; 또는 2 내지 30 또는 4 내지 20개의 규소 원자를 가지는 환상 또는 직쇄상 실록산 등의 유기 오가노폴리실록산을 들 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기와 같은 접착성 부여제의 일종 또는 이종 이상의 혼합을 사용할 수 있다.
- [120] 상기 접착성 부여제가 조성물에 포함될 경우, 그 함량은 (A) 화합물 100 중량부 또는 (A) 및 (C) 화합물의 합계 중량 100 중량부에 대하여, 0.1 중량부 내지 20 중량부일 수 있으나, 상기 함량은 목적하는 접착성 개선 효과 등을 고려하여 적절히 변경될 수 있다.
- [121] 상기 조성물은, 필요에 따라서, 2-메틸-3-부텐-2-올, 2-페닐-3-1-부텐-2-올, 3-메틸-3-펜텐-1-인, 3,5-디메틸-3-헥센-1-인, 1,3,5,7-테트라메틸-1,3,5,7-테트라헥세닐시클로테트라실록산 또는 에티닐시클로헥산 등의 반응 억제제; 실리카, 알루미늄, 지르코니아 또는 티타니아 등의 무기 충전제; 에폭시기 및/또는 알콕시실릴기를 가지는 탄소 관능성 실란, 그의 부분 가수분해 축합물 또는 실록산 화합물; 폴리에테르 등과 병용될 수 있는 연무상 실리카 등의 요변성 부여제; 은, 구리 또는 알루미늄 등의 금속 분말이나, 각종 카본 소재 등과 같은 도전성 부여제; 안료 또는 염료 등의 색조 조정제 등의 첨가제를 일종 또는 이종 이상을 추가로 포함할 수 있다.
- [122] 하나의 예시에서 상기 경화성 조성물은 형광체를 추가로 포함할 수 있다. 이 경우 사용될 수 있는 형광체의 종류는 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 백색광을 구현하기 위하여 LED 패키지에 적용되는 통상적인 종류의 형광체가 사용될 수 있다.
- [123] 본 출원은, 또한 반도체 소자에 관한 것이다. 예시적인 반도체 소자는, 상기 경화성 조성물의 경화물을 포함하는 봉지재에 의해 봉지된 것일 수 있다.
- [124] 상기에서 봉지재로 봉지되는 반도체 소자로는, 다이오드, 트랜지스터, 사이리스터, 포토커플러, CCD, 고체상 화상 픽업 소자, 일체식 IC, 혼성 IC, LSI, VLSI 및 LED(Light Emitting Diode) 등이 예시될 수 있다.
- [125] 하나의 예시에서 상기 반도체 소자는, 발광 다이오드일 수 있다.

- [126] 상기 발광 다이오드로는, 예를 들면, 기판 상에 반도체 재료를 적층하여 형성한 발광 다이오드 등이 예시될 수 있다. 상기 반도체 재료로는, GaAs, GaP, GaAlAs, GaAsP, AlGaInP, GaN, InN, AlN, InGaAlN 또는 SiC 등이 예시될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 상기 기판으로는, 사파이어, 스피넬, SiC, Si, ZnO 또는 GaN 단결정 등이 예시될 수 있다.
- [127] 또한, 발광 다이오드의 제조 시에는 필요에 따라서, 기판과 반도체 재료의 사이에 버퍼층을 형성할 수도 있다. 버퍼층으로서, GaN 또는 AlN 등이 사용될 수 있다. 기판상로의 반도체 재료의 적층 방법은, 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, MOCVD법, HDVPE법 또는 액상성장법 등을 사용할 수 있다. 또한, 발광 다이오드의 구조는, 예를 들면, MIS 접합, PN 접합, PIN 접합을 가지는 모노접합, 헤테로접합, 이중 헤테로 접합 등일 수 있다. 또한, 단일 또는 다중양자우물구조로 상기 발광 다이오드를 형성할 수 있다.
- [128] 하나의 예시에서, 상기 발광 다이오드의 발광 파장은, 예를 들면, 250 nm 내지 550 nm, 300 nm 내지 500 nm 또는 330 nm 내지 470 nm일 수 있다. 상기 발광 파장은, 주발광 피크 파장을 의미할 수 있다. 발광 다이오드의 발광파장을 상기 범위로 설정함으로써, 보다 긴 수명으로, 에너지 효율이 높고, 색재현성이 높은 백색 발광 다이오드를 얻을 수 있다.
- [129] 상기 발광 다이오드는, 상기 조성물을 사용하여 봉지될 수 있다. 또한 발광 다이오드의 봉지는 상기 조성물만으로 수행될 수 있고, 경우에 따라서는 다른 봉지재가 상기 조성물과 병용될 수 있다. 2종의 봉지재를 병용하는 경우, 상기 조성물을 사용한 봉지 후에, 그 주위를 다른 봉지재로 봉지할 수도 있고, 다른 봉지재로 먼저 봉지한 후, 그 주위를 상기 조성물로 봉지할 수도 있다. 다른 봉지재로는, 에폭시 수지, 실리콘 수지, 아크릴 수지, 우레아 수지, 이미드 수지 또는 유리 등을 들 수 있다.
- [130] 상기 조성물로 발광 다이오드를 봉지하는 방법으로는, 예를 들면, 몰드형 거푸집에 상기 조성물을 미리 주입하고, 거기에 발광 다이오드가 고정된 리드프레임 등을 침지시키고, 조성물을 경화시키는 방법, 발광 다이오드를 삽입한 거푸집 중에 조성물을 주입하고, 경화시키는 방법 등을 사용할 수 있다. 조성물을 주입하는 방법으로는, 디스펜서에 의한 주입, 트랜스퍼 성형 또는 사출성형 등이 예시될 수 있다. 또한, 그 외의 봉지 방법으로서, 조성물을 발광 다이오드 상에 적하, 공판인쇄, 스크린 인쇄 또는 마스크를 메개로 도포하고, 경화시키는 방법, 저부에 발광 다이오드를 배치한 컵 등에 조성물을 디스펜서 등에 의해 주입하고, 경화시키는 방법 등이 사용될 수 있다.
- [131] 또한, 상기 조성물은, 필요에 따라서, 발광 다이오드를 리드 단자나 패키지에 고정하는 다이본드재나, 발광 다이오드 상의 부동화(passivation)막 또는 패키지 기판 등으로도 이용될 수 있다.
- [132] 상기 조성물의 경화가 필요한 경우, 경화 방법은 특별히 제한되지 않고, 예를 들면, 60°C 내지 200°C의 온도에서 10분 내지 5시간 동안 상기 조성물을 유지하여

수행하거나, 적정 온도 및 시간에서의 2단계 이상의 과정을 거쳐 단계적인 경화 공정을 진행할 수도 있다.

- [133] 봉지재의 형상은 특별히 한정되지 않으며, 예를 들면, 포탄형의 렌즈 형상, 판상 또는 박막상 등으로 구성할 수 있다.
- [134] 또한, 종래의 공지에 방법에 따라 발광 다이오드의 추가적인 성능 향상을 도모할 수 있다. 성능 향상의 방법으로서, 예를 들면, 발광 다이오드 배면에 광의 반사층 또는 집광층을 설치하는 방법, 보색 착색부를 저부에 형성하는 방법, 주발광 피크보다 단파장의 광을 흡수하는 층을 발광 다이오드 상에 설치하는 방법, 발광 다이오드를 봉지한 후 추가로 경질 재료로 몰딩하는 방법, 발광 다이오드를 관통홀에 삽입하여 고정하는 방법, 발광 다이오드를 플립칩 접속 등에 의해서 리드 부재 등과 접속하여 기판 방향으로부터 광을 취출하는 방법 등을 들 수 있다.
- [135] 상기 발광 다이오드는, 예를 들면, 액정 디스플레이(LCD; Liquid Crystal Display)의 백라이트, 조명 기구, 각종 센서, 프린터, 복사기 등의 광원, 차량용 계기 광원, 신호등, 표시등, 표시장치, 면상발광체의 광원, 디스플레이, 장식 또는 각종 라이트 등에 효과적으로 적용될 수 있다.

### 발명의 효과

- [136] 예시적인 경화성 조성물은, 우수한 가공성 및 작업성을 나타낸다. 또한, 상기 경화성 조성물은, 경화되면 탁월한 광추출 효율, 균열 내성, 경도, 내열 충격성 및 접착성을 나타낸다. 또한, 상기 조성물은, 가혹 조건에서도 장시간 동안 안정적인 내구 신뢰성을 나타내고, 백탁 및 표면에서의 끈적임 등이 유발되지 않는 봉지재 등을 제공할 수 있다.

### 발명의 실시를 위한 형태

- [137] 이하 본 출원에 따르는 실시예 및 본 출원에 따르지 않는 비교예를 통하여 본 출원을 보다 상세히 설명하나, 본 출원의 범위가 하기 제시된 실시예에 의해 제한되는 것은 아니다.
- [138] 이하에서, 부호 Vi는 비닐기를 나타내고, 부호 Ph는 페닐기를 나타내며, 부호 Me는 메틸기를 나타내고, 부호 Ep는 에폭시기를 나타낸다.
- [139] 또한, 이하에서 물성은 하기의 방식으로 측정한다.
- [140] 1. 오가노폴리실록산에 대한 <sup>1</sup>H-NMR 측정
- [141] 오가노폴리실록산에 대한 <sup>1</sup>H-NMR 분석은 다음의 조건에서 수행하였다.
- [142] <<sup>1</sup>H-NMR 분석 내용>
- [143] 측정 기기: Varian Unity Inova 500MHz NMR
- [144] 사용 용매: acetone-d6
- [145] 측정 조건:
- [146] Pulse sequence: s2pul
- [147] Sweep width: 8012.8hz

[148] Acquisition time: 2.045 sec

[149] Delay time: 2 sec

[150] Pulse width: 45 degree pulse (8.10 usec)

[151] Number of scan: 16

[152]

[153] 2. 오가노폴리실록산에 대한 산가 측정

[154] 톨루엔 500 mL, 이소프로필알코올(IPA) 495 mL 및 물(distilled water) 5 mL를 배합하여 측정용 용매를 제조하였다. 또한, 베이스 용매(base solution)로서 0.1 N의 농도의 KOH 용액(용매: 이소프로필 알코올(IPA))을 준비하고, 표지자(indicator)로는 알파-나프톨벤제인(alpha-naphtholbenzein)(pH: 0.8 ~ 8.2 yellow, 10.0 blue green)을 준비하였다. 이어서, 시료 약 1 내지 2 g을 채취하여 측정용 용매 6 g에 녹인 후에 표지자를 첨가한 후에 베이스 용매로 적정하였다. 적정 완료 시점에서 사용된 베이스 용매의 양으로 산가(acid value)를 mg KOH/g의 단위로 구하였다.

[155]

[156] 3. 소자 특성 평가

[157] 폴리프탈아미드(PPA)로 제조된 3017 LED 패키지를 사용하여 소자 특성을 평가한다. 구체적으로, 폴리프탈아미드 컵 내에 경화성 조성물을 디스펜싱하고, 70°C에서 1 시간 동안 유지한 후, 다시 150°C에서 1 시간 동안 유지하여 경화시켜, 표면 실장형 LED를 제조한다.

[158] 그 후, 하기 제시된 방법에 따라 열충격 테스트와 장기 신뢰성 테스트를 진행한다.

[159]

[160] (1) 열충격 테스트

[161] 제조된 LED를 -40°C에서 30분 동안 유지하고, 다시 100°C에서 30분 동안 유지하는 것을 1 사이클로 하여, 상기를 50회, 즉 50 사이클 반복한 후에 실온에서 유지하여, 박리 상태를 조사하여 내열충격성을 평가한다. 평가 시에는 동일 경화성 조성물로 제조된 LED 10개에 대하여 각각 상기와 같은 시험을 하고, 박리된 LED의 수를 하기 표 1에 기재하였다.

[162]

[163] (2) 장기 신뢰성 테스트

[164] 제조된 LED를 85°C 및 85% 상대 습도의 조건에서 유지한 상태로 20 mA의 전류를 흘리면서 300 시간 동안 동작시킨다. 이어서, 동작 전의 초기 휘도 대비 상기 동작 후의 후기 휘도의 감소율을 측정하고, 하기 기준에 따라서 평가한다.

[165] <평가 기준>

[166] ○: 초기 휘도 대비 휘도 감소율이 10% 이하

[167] x: 초기 휘도 대비 휘도 감소율이 10% 초과

[168]

## [169] 합성 예 1.

[170] 옥타메틸시클로테트라실록산(octamethylcyclotetrasiloxane) 55.00 g, 옥타페닐시클로테트라실록산(octaphenylcyclotetrasiloxane) 120.4 g, 테트라메틸테트라비닐시클로테트라실록산(tetramethyltetra vinylcyclotetrasiloxane) 9.6 g, 옥타페닐-POSS(octaphenyl-polyhedral oligomeric silsesquioxane) 17.4 g 및 디비닐테트라메틸디실록산(divinyltetramethyldisiloxane) 15.7 g을 혼합하고, 상기 혼합물에 촉매로서 테트라메틸암모늄 히드록시드(TMAH; tetramethylammonium hydroxide) 0.6 mL를 배합하였다. 그 후, 상기 촉매가 배합된 혼합물을 115°C의 온도에서 약 20 시간 동안 반응시켰다. 반응 종료 후에 반응물로부터 저분자 물질을 제거하여, 하기 화학식 A로 표시되는 투명한 오일 형태의 오가노폴리실록산(A)을 수득하였다. 상기 오가노폴리실록산의 25°C에서의 점도는 35,200 cP였고, 분자량은 약 5,100이었다. 또한, 상기 오가노폴리실록산에 대하여 <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.008로 측정되었다

[171] [화학식 A]

[172]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{18}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{15}[\text{ViMeSiO}_{2/2}]_3[\text{PhSiO}_{3/2}]_2$ 

[173]

## [174] 합성 예 2.

[175] 테트라메틸테트라비닐시클로테트라실록산을 사용하지 않고, 옥타페닐-POSS와 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 각각 8.7 g 및 12.6 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성 예 1에 준한 방식으로 오가노폴리실록산을 합성하였다. 상기 오가노폴리실록산은, 하기 화학식 B로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 오가노폴리실록산(B)의 25°C에서의 점도는 19,600 cP였고, 분자량은 약 5,000이었다. 또한, 상기 오가노폴리실록산에 대하여 <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.009로 측정되었다

[176] [화학식 B]

[177]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{20}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{16}[\text{PhSiO}_{3/2}]_2$ 

[178]

## [179] 합성 예 3.

[180] 옥타메틸시클로테트라실록산(octamethylcyclotetrasiloxane) 60.00 g, 옥타페닐시클로테트라실록산(octaphenylcyclotetrasiloxane) 106.96 g, 옥타페닐-POSS(octaphenyl-polyhedral oligomeric silsesquioxane) 17.44 g 및 디비닐테트라메틸디실록산(divinyltetramethyldisiloxane) 12.56 g을 혼합하고, 상기 혼합물에 촉매로서 테트라메틸암모늄 히드록시드(TMAH; tetramethylammonium hydroxide) 0.63 mL를 배합하였다. 그 후, 상기 촉매가 배합된 혼합물을 115°C의 온도에서 약 20 시간 동안 반응시켜서, 하기 화학식 C로 표시되는 투명한 오일 형태의 폴리실록산을 수득하였다. 상기 폴리실록산의

25°C에서의 점도는 21,000 cP였고, 분자량은 약 6,400이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.006 mg KOH/g으로 측정되었다.

[181] [화학식 C]

[182]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{22}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{15}[\text{PhSiO}_{3/2}]_5$

[183]

[184] **합성 예 4.**

[185] 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 6.28 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성 예 3과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 D로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 58,600 cP였고, 분자량은 약 9,700이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.009 mg KOH/g으로 측정되었다.

[186] [화학식 D]

[187]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{40}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{27}[\text{PhSiO}_{3/2}]_9$

[188]

[189] **합성 예 5.**

[190] 옥타페닐-POSS 및 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 각각 34.88 g 및 15.72 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성 예 3과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 E로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 33,200 cP였고, 분자량은 약 4,600이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.008 mg KOH/g으로 측정되었다.

[191] [화학식 E]

[192]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{19}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{12}[\text{PhSiO}_{3/2}]_6$

[193]

[194] **합성 예 6.**

[195] 옥타메틸시클로테트라실록산, 옥타페닐시클로테트라실록산 및 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 각각 55.00 g, 120.34 g 및 18.85 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성 예 3과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 F로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 24,400 cP였고, 분자량은 약 4,200이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.008 mg KOH/g으로 측정되었다.

[196] [화학식 F]

[197]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{14}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{11}[\text{PhSiO}_{3/2}]_3$

[198]

[199] 합성예 7.

[200] 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 12.56 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성예 6와 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 G로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 47,000 cP였고, 분자량은 약 5,500이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.007 mg KOH/g으로 측정되었다.

[201] [화학식 G]

[202]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{21}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{17}[\text{PhSiO}_{3/2}]_4$ 

[203]

[204] 합성예 8.

[205] 옥타메틸시클로테트라실록산 및 옥타페닐시클로테트라실록산을 사용하지 않고, 그 대신

테트라메틸테트라페닐시클로테트라실록산(tetramethyltetraphenylcyclotetrasiloxane) 183.71 g을 배합하고, 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 12.10 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성예 3과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 H로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 19,800 cP였고, 분자량은 약 4,800이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.008 mg KOH/g으로 측정되었다.

[206] [화학식 H]

[207]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{MePhSiO}_{2/2}]_{32}[\text{PhSiO}_{3/2}]_4$ 

[208]

[209] 합성예 9.

[210] 옥타메틸시클로테트라실록산 30.0 g, 옥타페닐시클로테트라실록산 53.5 g, 옥타페닐-POSS 8.7 g 및 디비닐테트라메틸디실록산 6.3 g을 혼합하고, 상기 혼합물에 촉매로 테트라메틸암모늄 히드록시드 0.3 mL를 배합하였다. 그 후, 상기 촉매가 배합된 혼합물을 115°C의 온도에서 약 20 시간 동안 반응시켰다. 반응 종료 후에 반응물로부터 저분자 물질을 제거하여, 하기 화학식 I로 표시되는 투명한 오일 형태의 폴리실록산을 수득하였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 21,100 cP였고, 분자량은 약 6,100이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.01 mg KOH/g으로 측정되었다.

[211] [화학식 I]

[212]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{23}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{15}[\text{PhSiO}_{3/2}]_4$ 

[213]

## [214] 합성 예 10.

[215] 옥타페닐-POSS의 배합량을 4.4 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성에 9과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 J로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 10,200 cP였고, 분자량은 약 5,600이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.009 mg KOH/g으로 측정되었다.

[216] [화학식 J]

[217]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{24}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{16}[\text{PhSiO}_{3/2}]_2$ 

[218]

## [219] 합성 예 11.

[220] 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 9.4 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성에 9과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 K로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 12,200 cP였고, 분자량은 약 4,700이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.008 mg KOH/g으로 측정되었다.

[221] [화학식 K]

[222]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{17}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{11}[\text{PhSiO}_{3/2}]_4$ 

[223]

## [224] 합성 예 12.

[225] 옥타메틸시클로테트라실록산, 옥타페닐시클로테트라실록산 및 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 각각 27.5 g, 60.2 g 및 7.9 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성에 9과 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 L로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 33,200 cP였고, 분자량은 약 4,600이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.007 mg KOH/g으로 측정되었다.

[226] [화학식 L]

[227]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{18}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{15}[\text{PhSiO}_{3/2}]_2$ 

[228]

## [229] 합성 예 13.

[230] 옥타페닐-POSS를 사용하지 않고, 그 대신 화학식  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}][\text{PhSiO}_{3/2}]_{3.5}$ 로 표시되고, 분자량이 1,520인 폴리실록산 12.5 g을 사용하고, 디비닐테트라메틸디실록산의 배합량을 6.1 g으로 변경한 것을 제외하고는, 합성에 9와 동일한 방식으로 폴리실록산을 합성하였다. 상기 폴리실록산은, 하기 화학식 M으로 표시되고, 투명한 오일 형태였다. 상기 폴리실록산의 25°C에서의 점도는 15,500 cP였고, 분자량은 약 5,300이었다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로

측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크는 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.012 mg KOH/g으로 측정되었다.

[231] [화학식 M]

[232]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{20}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{13}[\text{PhSiO}_{3/2}]_4$

[233]

[234] **합성예 14.**

[235] 디메톡시디메틸실란(dimethoxydimethylsilane) 89.0 g,

디메톡시디페닐실란(dimethoxydiphenylsilane) 148.4 g,

디메톡시메틸비닐실란(dimethoxymethylvinylsilane) 14.7 g,

디비닐테트라메틸디실록산 15.7 g 및

페닐트리메톡시실란(phenyltrimethoxysilane) 26.7 g을 330 g의 톨루엔에 용해시킨

용액에 물 61.0 g 및 질산 7.9 mL를 추가로 배합하였다. 이어서, 상기 혼합물을

100°C에서 약 7 시간 동안 반응시켰다. 반응 종료 후에 반응 용액을 상온으로

냉각시키고, 물로 반응 용액이 중성이 될 때까지 세척하였다. 그 후, 용액에 KOH

0.1 g을 첨가하고, 탈수 축합 반응을 진행시켰다. 반응 후, AcOH(Acetyl

hydroxide)를 이용하여 반응 용액을 중화시키고, 물로 중성이 될 때까지 세척한

후, 감압 증류를 통하여 용매를 제거하여 오가노폴리실록산을 수득하였다.

수득된 오가노폴리실록산은 하기 화학식 N으로 표시되며, 투명도가 없는 오일

형태였고, 고리 구조의 저분자량 물질이 다량 포함되어 있었으며,

오가노폴리실록산이 상기 저분자량 물질과 유사한 분자량을 나타내어

오가노폴리실록산을 분리하는 것이 곤란하였다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는

스펙트럼 상에서 OMe/Vi로부터 유래되는 피크의 면적이 약 0.2이어서 구조 내에

다량의 메톡시기가 존재하는 것을 확인하였다. 또한, 산가는 약 0.270으로

측정되었다. 상기 반응 용액의 25°C에서의 점도는 2,300 cP로서 매우 낮은 수치를

나타내었다.

[236] [화학식 N]

[237]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{19}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{10}[\text{ViMeSiO}_{2/2}]_3[\text{PhSiO}_{3/2}]_2[\text{OMe}]_1$

[238]

[239] **합성예 15.**

[240] 옥타페닐-POSS를 사용하지 않고, 그 대신 페닐트리메톡시실란 13.4 g을 사용한

것을 제외하고는, 합성예 14와 동일한 방식으로 오가노폴리실록산을

합성하였다. 합성된 오가노폴리실록산은 하기 화학식 O로 표시될 수 있으며,

고리 구조의 저분자량 물질을 다량 포함하고 있었고, 오가노폴리실록산이 상기

저분자량 물질과 유사한 분자량을 나타내어 오가노폴리실록산을 분리하는 것이

곤란하였다. 또한, <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 OMe/Vi로부터

유래되는 피크의 면적이 약 0.7이어서 구조 내에 다량의 메톡시기가 존재하는

것을 확인하였다. 또한, 산가는 약 0.276으로 측정되었다. 상기 반응 용액의

25°C에서의 점도는 2,800 cP로서 매우 낮은 수치를 나타내었다.

- [241] [화학식 O]
- [242]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{20}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{16}[\text{PhSiO}_{3/2}]_2[\text{OMe}]_{1.4}$
- [243]
- [244] **합성예 16.**
- [245] 옥타페닐-POSS를 사용하지 않는 대신 디비닐테트라메틸디실록산 12.6 g을 사용한 것을 제외하고는, 합성예 1과 동일한 방식으로 오가노폴리실록산을 합성하였다. 합성된 오가노폴리실록산은 하기 화학식 P로 표시될 수 있고, 25°C에서의 점도가 9,800 cP이고, 분자량은 5,200이었다. 상기 오가노폴리실록산에 대하여 <sup>1</sup>H-NMR로 측정되는 스펙트럼 상에서 알콕시기로부터 유래되는 피크의 면적은 관찰되지 않았으며, 산가는 약 0.011로 측정되었다
- [246] [화학식 P]
- [247]  $[\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}]_2[\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}]_{21}[\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}]_{17}[\text{ViMeSiO}_{2/2}]_3$
- [248]
- [249] **실시예 1.**
- [250] 합성예 1에서 제조된 오가노폴리실록산(A)에 공지의 방식으로 합성한 것으로서, 각각 하기의 화학식 F 내지 H로 표시되는 화합물을 혼합하여, 히드로실릴화 반응에 의해 경화할 수 있는 경화성 조성물을 제조하였다(배합량: 오가노폴리실록산(A): 100 g, 화학식 F의 화합물: 5.0 g, 화학식 G의 화합물: 50 g, 화학식 H의 화합물: 10 g). 이어서 상기 조성물에 Pt(0)의 함량이 5 ppm이 되도록 촉매 (Platinum(0)-1,3-divinyl-1,1,3,3-tetramethyldisiloxane)를 배합하고, 균일하게 혼합한 후 탈포기로 기포를 제거하여 경화성 조성물을 제조하였다.
- [251] [화학식 F]
- [252]  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_2(\text{PhMeSiO}_{2/2})_5(\text{EpSiO}_{3/2})_3$
- [253] [화학식 G]
- [254]  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})(\text{PhSiO}_{3/2})_3$
- [255] [화학식 H]
- [256]  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_2(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{1.5}$
- [257]
- [258] **실시예 2.**
- [259] 합성예 2에서 제조된 오가노폴리실록산(B)에 공지의 방식으로 합성한 것으로서, 화학식 F로 표시되는 화합물과 하기 화학식 I 및 J로 표시되는 화합물을 혼합하여, 히드로실릴화 반응에 의해 경화할 수 있는 경화성 조성물을 제조하였다(배합량: 오가노폴리실록산(B): 50 g, 화학식 F의 화합물: 5.0 g, 화학식 I의 화합물: 110 g, 화학식 J의 화합물: 45 g). 이어서 상기 조성물에 Pt(0)의 함량이 5 ppm이 되도록 촉매 (Platinum(0)-1,3-divinyl-1,1,3,3-tetramethyldisiloxane)를 배합하고, 균일하게 혼합한 후 탈포기로 기포를 제거하여 경화성 조성물을 제조하였다.

- [260] [화학식 I]
- [261]  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})(\text{PhSiO}_{3/2})_3$
- [262] [화학식 J]
- [263]  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_3(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{1.5}$
- [264]
- [265] **실시예 3.**
- [266] 합성에 3에서 제조된 오가노폴리실록산(C) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37 g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.
- [267]
- [268] **실시예 4.**
- [269] 합성에 4에서 제조된 오가노폴리실록산(D) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.
- [270]
- [271] **실시예 5.**
- [272] 합성에 5에서 제조된 오가노폴리실록산(E) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0 g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g, 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.
- [273]
- [274] **실시예 6.**
- [275] 합성에 6에서 제조된 오가노폴리실록산(F) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.
- [276]
- [277] **실시예 7.**
- [278] 합성에 7에서 제조된 오가노폴리실록산(G) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37 g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.
- [279]
- [280] **실시예 8.**
- [281] 합성에 8에서 제조된 오가노폴리실록산(H) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0 g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고,

촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[282]

[283] **실시예 9.**

[284] 합성에 9에서 제조된 오가노폴리실록산(I) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 다시 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[285]

[286] **실시예 10.**

[287] 합성에 10에서 제조된 오가노폴리실록산(J) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 첨가한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[288]

[289] **실시예 11.**

[290] 합성에 11에서 제조된 오가노폴리실록산(K) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 다시 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[291]

[292] **실시예 12.**

[293] 합성에 12에서 제조된 오가노폴리실록산(L) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0 g, 상기 화학식 I의 화합물 100g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[294]

[295] **실시예 13.**

[296] 합성에 13에서 제조된 오가노폴리실록산(M) 35 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0g, 상기 화학식 I의 화합물 100 g 및 상기 화학식 H의 화합물 37g을 배합하고, 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[297]

[298] **비교예 1.**

[299] 오가노폴리실록산(A) 대신에 합성에 14에서 제조된 오가노폴리실록산(N)을 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1과 동일하게 경화성 조성물을 제조하였다.

[300]

[301] **비교예 2.**

[302] 오가노폴리실록산(B) 대신에 합성예 15에서 제조된 오가노폴리실록산(O)을 사용한 것을 제외하고는, 실시예 2와 동일하게 경화성 조성물을 제조하였다.

[303]

[304] **비교예 3.**

[305] 오가노폴리실록산(A) 대신에 합성예 16에서 제조된 오가노폴리실록산(P)을 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1과 동일하게 경화성 조성물을 제조하였다.

[306]

[307] **비교예 5.**

[308] 합성예 16에서 제조된 오가노폴리실록산(P) 140 g, 상기 화학식 F의 화합물 5.0 g, 상기 화학식 H의 화합물 20 g을 배합하고, 다시 촉매를 배합한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방식으로 경화성 조성물을 제조하였다.

[309]

[310] 상기 각 경화성 조성물에 대하여 측정한 물성을 하기 표 1에 나타내었다.

[311] 표 1

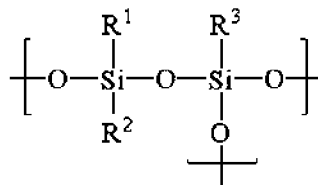
[Table 1]

	열충격 특성	신뢰성
실시예1	2/10	○
실시예2	0/10	○
실시예3	0/10	○
실시예4	0/10	○
실시예5	0/10	○
실시예6	0/10	○
실시예7	0/10	○
실시예8	0/10	○
실시예9	0/10	○
실시예10	0/10	○
실시예11	0/10	○
실시예12	0/10	○
실시예13	0/10	○
비교예1	9/10	×
비교예2	10/10	×
비교예3	5/10	×
비교예4	10/10	×
비교예5	10/10	×

[312]

## 청구범위

- [청구항 1] (A) 하기 화학식 1의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산; 및  
(B) 규소 원자에 결합된 수소 원자를 포함하는  
오가노폴리실록산을 포함하는 경화성 조성물:  
[화학식 1]  
 $(R^1R^2SiO_{1/2})_a(R^3R^4SiO_{2/2})_b(R^5SiO_{3/2})_c(SiO_2)_d$   
상기 화학식 1에서 R<sup>1</sup>은, 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고, R<sup>2</sup>  
는 탄소수 1 내지 4의 알킬기이며, R<sup>3</sup> 및 R<sup>4</sup>는 각각 독립적으로  
탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는  
탄소수 6 내지 25의 아릴기이고, R<sup>5</sup>는 탄소수 1 내지 20의 알킬기  
또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이며, R<sup>1</sup>, R<sup>3</sup> 및 R<sup>4</sup> 중 적어도  
하나는 알케닐기이고, a는 양의 수이며, b는 0 또는 양의 수이고,  
c는 양의 수이고, d는 0 또는 양의 수이며, b/a는 5 이상이고, b/c는 5  
이상이다.
- [청구항 2] 제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체 규소  
원자에 대한 상기 (A) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체  
알케닐기의 몰비(Ak/Si)가 0.02 내지 0.2인 경화성 조성물.
- [청구항 3] 제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체 규소  
원자에 대한 상기 (A) 오가노폴리실록산에 포함되는 전체  
아릴기의 몰비(Ar/Si)가 0.3 이상인 경화성 조성물.
- [청구항 4] 제 1 항에 있어서, 화학식 1의 b/(a+b+c+d)가 0.5 이상인 경화성  
조성물.
- [청구항 5] 제 1 항에 있어서, 화학식 1의 b/(b+c)가 0.5 이상인 경화성 조성물.
- [청구항 6] 제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 하기 화학식 2의 평균  
조성식을 가지는 경화성 조성물:  
[화학식 2]  
 $(R^1R^2SiO_{1/2})_a(R^6R^7SiO_{2/2})_l(R^8R^9SiO_{2/2})_m(R^5SiO_{3/2})_c$   
상기 화학식 2에서 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> 및 R<sup>5</sup>는 화학식 1에서 정의한 바와 같고,  
R<sup>6</sup>는, 탄소수 6 내지 25의 아릴기이고, R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup> 및 R<sup>9</sup>은 각각  
독립적으로 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의  
알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이며, R<sup>1</sup>, R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup> 및 R<sup>9</sup> 중  
적어도 하나는 알케닐기이며, a+l+m+c을 1로 환산하였을 때에 a는  
0.01 내지 0.10이고, l은 0 내지 0.90이며, m은 0 내지 0.90이고, c은  
0.01 내지 0.30이며, (l+m)/a는 5 이상이고, (l+m)/c는 5 이상이다.
- [청구항 7] 제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 하기 화학식 3의  
구조를 포함하는 경화성 조성물:  
[화학식 3]

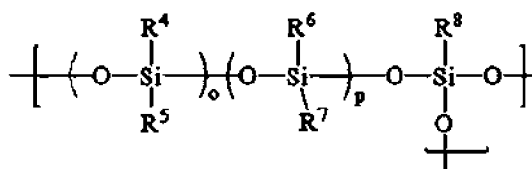


상기 화학식 3에서 R<sup>1</sup> 내지 R<sup>3</sup>는 각각 독립적으로 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이다.

[청구항 8]

제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 하기 화학식 4의 구조를 포함하는 경화성 조성물:

[화학식 4]



상기 화학식 4에서 R<sup>4</sup> 내지 R<sup>8</sup>은 각각 독립적으로 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 2 내지 20의 알케닐기 또는 탄소수 6 내지 25의 아릴기이고, o는 0 내지 300이며, p는 0 내지 300이다.

[청구항 9]

제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 1H NMR 스펙트럼에서 규소 원자에 결합된 알케닐기로부터 유래되는 면적(Ak) 대비 규소 원자에 결합된 알콕시기로부터 유래하는 피크의 면적(OR)의 비율(OR/Ak)이 0.05 이하인 경화성 조성물.

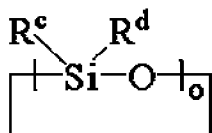
[청구항 10]

제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 KOH 적정에 의한 산가가 0.05 mgKOH/g 이하인 경화성 조성물.

[청구항 11]

제 1 항에 있어서, (A) 오가노폴리실록산은 하기 화학식 5의 화합물; 및 하기 화학식 6 또는 7의 평균 조성식으로 표시되는 오가노폴리실록산을 포함하는 혼합물의 반응물인 경화성 조성물:

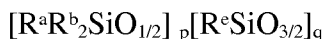
[화학식 5]



[화학식 6]



[화학식 7]



상기 화학식 5 내지 7에서, R<sup>a</sup>는 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고, R<sup>b</sup>는 탄소수 1 내지 4의 알킬기이며, R<sup>c</sup> 내지 R<sup>e</sup>는, 각각 독립적으로 탄소수 6 내지 25의 아릴기, 탄소수 1 내지

- 20의 알킬기 또는 탄소수 2 이상의 1가 탄화수소기이고, o는 3 내지 6이고, p는 1 내지 3이며, q는 1 내지 10이다.
- [청구항 12] 제 1 항에 있어서, (B) 오가노폴리실록산은, 하기 화학식 9의 화합물 또는 하기 화학식 10의 평균 조성식을 가지는 화합물인 경화성 조성물:
- [화학식 9]
- $$R^{15}_3SiO(R^{15}_2SiO)_nSiR^{15}_3$$
- 상기 화학식 9에서  $R^{15}$ 은 각각 독립적으로 수소 또는 1가의 탄화수소기이고,  $R^{15}$  중 하나 또는 두 개 이상은 수소 원자이며,  $R^{15}$  중 적어도 하나는 아릴기이고, n은 1 내지 100이다:
- [화학식 10]
- $$(R^{16}_3SiO_{1/2})_h(R^{16}_2SiO_{2/2})_i(R^{16}SiO_{3/2})_j(SiO_2)_k$$
- 상기 화학식 10에서  $R^{16}$ 은 각각 독립적으로 수소 또는 1가의 탄화수소기이고,  $R^{16}$  중 하나 또는 두 개 이상은 수소 원자이며,  $R^{16}$  중 적어도 하나는 아릴기이고, h+i+j+k를 1로 환산하였을 때, h는 0.1 내지 0.8이고, i는 0 내지 0.5이며, j는 0.1 내지 0.8이고, k는 0 내지 0.2이 되, i 및 k는 동시에 0이 아니다.
- [청구항 13] 제 1 항에 있어서, 하기 화학식 11의 평균 조성식을 가지는 오가노폴리실록산을 추가로 포함하는 경화성 조성물:
- [화학식 11]
- $$(R^{14}_3SiO_{1/2})_d(R^{14}_2SiO_{2/2})_e(R^{14}SiO_{3/2})_f(SiO_{4/2})_g$$
- 상기 화학식 10에서  $R^{14}$ 은 각각 독립적으로 1가 탄화수소기 또는 에폭시기이 되,  $R^{14}$  중 적어도 하나는 알케닐기이고,  $R^{14}$  중 적어도 하나는 아릴기이며, d+e+f+g를 1로 환산하였을 때에 d는 0.05 내지 0.5이고, e는 0 내지 0.3이며, f는 0.6 내지 0.95이고, g는 0 내지 0.2이 되, f 및 g는 동시에 0이 아니고, (d+e)/(d+e+f+g)는 0.2 내지 0.7이며, e/(e+f+g)는 0.3 이하이고, f/(f+g)는 0.8 이상이다.
- [청구항 14] 제 1 항의 경화성 조성물의 경화물로 봉지된 반도체 소자.
- [청구항 15] 제 1 항의 경화성 조성물의 경화물로 봉지된 발광 다이오드.
- [청구항 16] 제 15 항의 발광 다이오드를 포함하는 액정 디스플레이.
- [청구항 17] 제 15 항의 발광 다이오드를 포함하는 조명 기구.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/KR2012/010063**

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

***C08L 83/04(2006.01)i, C08K 5/54(2006.01)i, C08G 77/04(2006.01)i, H01L 23/29(2006.01)i, H01L 33/00(2010.01)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 83/04; C08G 77/04; C08L 83/06; C08K 5/54

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: curable composition, organopolysiloxane, alkenyl

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 10-2011-0087244 A1 (LG CHEM. LTD.) 02 August 2011 See claims 1-15, examples 1-4.	1-17
A	US 2010-0224906 A1 (KASHIWAGI et al.) 09 September 2010 See abstract, claims 1-13, the examples.	1-17
A	JP 2010-265442 A (NITTO DENKO CO.) 25 November 2010 See claims 1-10, the examples, table 1.	1-17
A	KR 10-2011-0087245 A (LG CHEM. LTD.) 02 August 2011 See claims 1-15, examples 1-6.	1-17

 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

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 FEBRUARY 2013 (19.02.2013)

Date of mailing of the international search report

**20 FEBRUARY 2013 (20.02.2013)**

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/KR2012/010063**

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2011-0087244 A	02.08.2011	KR 10-1152869 B1 US 2013-0009201 A1 WO 2011-090364 A2	12.06.2012 10.01.2013 28.07.2011
US 2010-0224906 A1	09.09.2010	CN 101824222 A EP 2226360 A1 JP 2010-229402 A KR 10-2010-0100634 A TW 201040229 A US 8373196 B2	08.09.2010 08.09.2010 14.10.2010 15.09.2010 16.11.2010 12.02.2013
JP 2010-265442 A	25.11.2010	CN 101747633 A EP 2196503 A1 JP 04-913858 B2 JP 2010-159411 A JP 2010-174220 A JP 2010-265436 A JP 2010-265437 A JP 2010-285593 A KR 10-2010-0068211 A US 2010-0148378 A1	23.06.2010 16.06.2010 27.01.2012 22.07.2010 12.08.2010 25.11.2010 25.11.2010 24.12.2010 22.06.2010 17.06.2010
KR 10-2011-0087245 A	02.08.2011	KR 10-1114922 B1 WO 2011-090362 A2	03.02.2012 28.07.2011

**A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))**  
  
*C08L 83/04(2006.01)i, C08K 5/54(2006.01)i, C08G 77/04(2006.01)i, H01L 23/29(2006.01)i, H01L 33/00(2010.01)i*

**B. 조사된 분야**

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)  
C08L 83/04; C08G 77/04; C08L 83/06; C08K 5/54

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: 경화성 조성물, 오가노폴리실록산, 알케닐


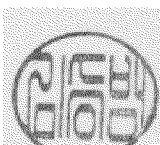
**C. 관련 문헌**

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
A	KR 10-2011-0087244 A1 (주식회사 엘지화학) 2011.08.02 청구항 1-15, 실시예 1-4 참조.	1-17
A	US 2010-0224906 A1 (KASHIWAGI 외) 2010.09.09 요약, 청구항 1-13, 실시예 참조.	1-17
A	JP 2010-265442 A (NITTO DENKO CO.) 2010.11.25 청구항 1-10, 실시예, 표1 참조.	1-17
A	KR 10-2011-0087245 A (주식회사 엘지화학) 2011.08.02 청구항 1-15, 실시예 1-6 참조.	1-17

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 2013년 02월 19일 (19.02.2013)	국제조사보고서 발송일 <b>2013년 02월 20일 (20.02.2013)</b>
--	--

ISA/KR의 명칭 및 우편주소  팩스 번호 82-42-472-7140	심사관 김승범 전화번호 82-42-481-3371 
--	--

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2011-0087244 A	2011.08.02	KR 10-1152869 B1 US 2013-0009201 A1 WO 2011-090364 A2	2012.06.12 2013.01.10 2011.07.28
US 2010-0224906 A1	2010.09.09	CN 101824222 A EP 2226360 A1 JP 2010-229402 A KR 10-2010-0100634 A TW 201040229 A US 8373196 B2	2010.09.08 2010.09.08 2010.10.14 2010.09.15 2010.11.16 2013.02.12
JP 2010-265442 A	2010.11.25	CN 101747633 A EP 2196503 A1 JP 04-913858 B2 JP 2010-159411 A JP 2010-174220 A JP 2010-265436 A JP 2010-265437 A JP 2010-285593 A KR 10-2010-0068211 A US 2010-0148378 A1	2010.06.23 2010.06.16 2012.01.27 2010.07.22 2010.08.12 2010.11.25 2010.11.25 2010.12.24 2010.06.22 2010.06.17
KR 10-2011-0087245 A	2011.08.02	KR 10-1114922 B1 WO 2011-090362 A2	2012.02.03 2011.07.28