



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2018년08월02일

(11) 등록번호 10-1874792

(24) 등록일자 2018년06월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C07F 7/10 (2006.01) C07F 7/08 (2006.01)
C08K 5/544 (2006.01) C08K 9/06 (2006.01)
C08K 9/08 (2006.01)

(52) CPC특허분류
C07F 7/10 (2013.01)
C07F 7/0834 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2016-0057371

(22) 출원일자 2016년05월11일

심사청구일자 2016년05월11일

(65) 공개번호 10-2017-0127148

(43) 공개일자 2017년11월21일

(56) 선행기술조사문헌

JP2011195825 A*

(뒷면에 계속)

(73) 특허권자

제이에스아이실리콘주식회사

경기도 성남시 중원구 사기막골로 124, 에스케이 테크노파크 메가 1511 (상대원동)

(72) 발명자

정일남

경기도 용인시 기흥구 신촌로47번길 11 신촌마을 포스홈타운2단지아파트 302-1703

김성민

경기도 성남시 수정구 제일로 101 셋별오피스텔 105호

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

양정근

전체 청구항 수 : 총 4 항

심사관 : 조혜진

(54) 발명의 명칭 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 신규 실리콘 결합제 및 그의 제조 방법

(57) 요약

본 발명은 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 신규 실리콘 결합제 및 그의 제조 방법에 관한 것이고, 구체적으로 아민기와 클로로기의 치환 반응으로 합성되는 이더기가 치환된 3차 아미노 프로필 실리콘 결합제와 그의 제조 방법에 관한 것이다. 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합제는 화학식 3으로 표시되고,

화학식 3:



상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 PhCH₂가 되고, R¹은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R²는 H 또는 Me가 되고, R³는 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 되는 것을 특징으로 한다.

(52) CPC특허분류

C08K 5/544 (2013.01)

C08K 9/06 (2013.01)

C08K 9/08 (2013.01)

(72) 발명자

김영민

경기도 성남시 중원구 둔촌대로389번길 3-1, 201호

조아라

경기도 성남시 중원구 은행로5번길 4-1 우정빌라
201호

(56) 선행기술조사문헌

US20140350277 A1

KR101249352 B1

KR1020130112751 A

US04006176 A

US07847117 B2

W02000015611 A1

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

명세서

청구범위

청구항 1

삭제

청구항 2

화학식 1로 표시되는 2차 아미노프로필알콕시 실란과 화학식 2로 표시되는 알킬할라이드의 반응을 반응시키는 것에 의하여 얻어지고,

화학식 1:



화학식 2:



화학식 3으로 표시되고,

화학식 3:



상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 PhCH₂가 되고, R¹은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R²는 H 또는 Me가 되고, R³는 Me, Et 또는 Bu가 되고, R⁴는 Me, Et, Pr, Bu, hexyl, benzyl, allyl, penylethyl, MeOCH₂CH₂, EtOCH₂CH₂, BuOCH₂CH₂, MeOCH₂CH₂CH₂CH₂, MeOCH₂CHMe, MeOCH₂CH₂OCH₂CH₂, EtOCH₂CH₂OCH₂CH₂ 또는 BuOCH₂CH₂OCH₂CH₂가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 되는 것, 및 X는 Cl, Br 또는 I가 되는 것을 특징으로 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합체의 제조 방법.

청구항 3

청구항 2에 있어서, 상기 반응은 상온 내지 180 ℃의 온도에서 진행되는 것을 특징으로 하는 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합체의 제조 방법.

청구항 4

청구항 2에 있어서, 상기 반응은 메탄올, 에탄올, 프로판올, 톨루엔 또는 THF의 용매에서 진행되는 것을 특징으로 하는 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합체의 제조 방법.

청구항 5

청구항 2에 있어서, 상기 반응은 용매가 없이 진행되는 것을 특징으로 하는 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합체의 제조 방법.

발명의 설명

기술 분야

본 발명은 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 신규 실리콘 결합체 및 그의 제조 방법에 관한 것이고, 구체적으로 아민기와 클로로기의 치환 반응으로 합성되는 이더기가 치환된 3차 아미노 프로필 실리콘 결합체와 그의 제조 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0001]

[0002] 최근 타이어 제조 과정에서 카본 블랙 충전제의 사용을 감소시키는 반면 실리카의 사용량을 늘리고 있다. 타이어 고무와 실리카의 상호 작용을 향상시키기 위하여 실리카 표면을 실리콘 결합제로 처리하는 방법이 적용되었지만 최근 타이어용 디엔 폴리머의 한 쪽 끝에 실리카와 결합력이 좋은 실리콘 결합제를 도입하는 기술이 개발되었다. US8,293,832는 디알킬아미노기가 치환된 실리콘 결합제가 타이어용 디엔 폴리머의 한 쪽 끝에 도입되면 실리카 충전제에 대한 친화성이 향상되어 자동차의 연비가 높아질 수 있다고 개시하고 있다. 이러한 선행기술과 함께 자동차용 타이어 고무를 변형시키기 위한 아미노실리콘 결합제의 개발이 시도되고 있다. 이에 따라 타이어고무를 변형시키는데 사용되는 공지의 아미노실리콘 결합제에 비하여 성능이 향상된 새로운 아미노실리콘 결합제의 개발이 요구된다. 이와 같은 요구에 따라 최근 본 발명의 발명자는 자동차용 타이어고무를 변형시키는데 사용될 수 있는 아미노실리콘 결합제로 아민과 이더기가 함께 치환된 유기기를 도입하여 실리카와의 친화력이 높은 아미노실리콘 결합제의 제조에 관련된 발명을 출원하였다(특허출원번호 10-2015-0154110; 2015년11월03일 출원). 본 발명은 상기 선행기술 또는 본 발명자에 의하여 출원된 선행기술과 다른 새로운 실리콘 결합제를 제안하기 위한 것으로 아래와 같은 목적을 가진다.

선행기술문헌

특허문헌

[0003] (특허문헌 0001) 선행기술 1: US 8,293,832(Oshima Mayumi Sumitomo Chemical Company Limited, 2011년11월10일) Conjugated Diene Polymer Conjugated Diene Polymer Composition and Method for Producing Conjugated Diene Polymer

발명의 내용

해결하려는 과제

[0004] 본 발명의 목적은 이더기를 가진 2차 아미노프로필알콕시실란에 알킬할라이드를 반응시켜 아민기와 클로로기의 치환반응으로 합성되는 이더기가 치환된 3차 아미노프로필알콕시실란 결합제 및 그의 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0005] 본 발명의 적절한 실시 형태에 따르면, 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합제는 화학식 3으로 표시되고,

[0006] 화학식 3:

[0007]
$$R^3-O-(CH_2)_nN(R^4)CH_2CH(R^2)CH_2SiR_m(OR^1)_{3-m}$$

[0008] 상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 $PhCH_2$ 가 되고, R^1 은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R^2 는 H 또는 Me가 되고, R^3 는 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 된다.

[0009] 본 발명의 다른 적절한 실시 형태에 따르면, 화학식 1로 표시되는 2차 아미노프로필알콕시 실란과 화학식 2로 표시되는 알킬할라이드의 반응을 반응시키는 것에 의하여 얻어지고,

[0010] 화학식 1:

[0011]
$$R^3-O-(CH_2)_nNHCH_2CH(R^2)CH_2SiR_m(OR^1)_{3-m}$$

[0012] 화학식 2:

[0013] R^4-X

[0014] 화학식 3으로 표시되고,

[0015] 화학식 3:



[0017] 상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 $PhCH_2$ 가 되고, R^1 은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R^2 는 H 또는 Me가 되고, R^3 는 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 된다.

[0018] 본 발명의 또 다른 적절한 실시 형태에 따르면, 상기 반응은 상온 내지 180 °C의 온도에서 진행된다.

[0019] 본 발명의 또 다른 적절한 실시 형태에 따르면, 상기 반응은 메탄올, 에탄올, 프로판올, 톨루엔 또는 THF의 용매에서 진행된다.

[0020] 본 발명의 또 다른 적절한 실시 형태에 따르면, 상기 반응은 용매가 없이 진행된다.

발명의 효과

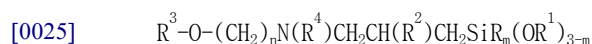
[0021] 본 발명에 따른 실리콘 결합제는 타이어 고무와 실리카의 상호 작용이 향상되도록 하는 것에 의하여 카본 블랙 충전제의 사용이 감소되도록 한다. 본 발명에 따른 실리콘 결합제는 타이어의 제조 과정에 적용되어 낮은 수준의 타이어 구름 저항을 제공하면서 낮은 중합체 히스테리시스를 발생시킨다. 또한 본 발명에 따른 실리콘 결합제의 제조 방법은 낮은 연비, 습윤 접착성(Wet Grip Property), 기계적 강도, 내마모성 및 낮은 저온 취화성이 서로 균형을 이루도록 하는 타이어 트레드용 고무 조성물이 얻어지도록 한다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0022] 아래에서 본 발명은 첨부된 도면에 제시된 실시 예를 참조하여 상세하게 설명이 되지만 실시 예는 본 발명의 명확한 이해를 위한 것으로 본 발명은 이에 제한되지 않는다.

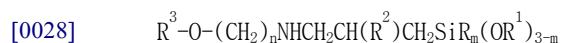
[0023] 본 발명에 따른 실리콘 화합물은 화학식 3으로 표시될 수 있고,

[0024] 화학식 3:



[0026] 화학식 1 및 화학식 2로 표시되는 2차 아미노프로필알콕시실란 및 알킬할라이드를 반응시켜 얻어질 수 있고,

[0027] 화학식 1:



[0029] 화학식 2:



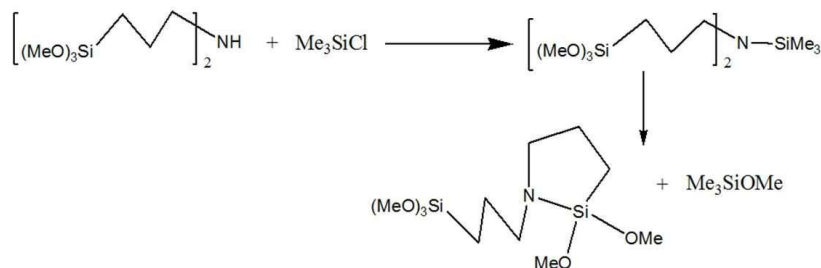
[0031] 상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 $PhCH_2$ 가 되고, R^1 은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R^2 는 H 또는 Me가 되고, R^3 는 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 된다.

[0032] 타이어용 디엔 폴리머의 한쪽 끝에 반응시키기 위한 아미노실리콘 결합체 중에서 3차 아민을 대신하여 1차 또는 2차 아민을 도입하면 질소와 수소의 결합이 극성의 증가로 인하여 질소에 3개의 알킬기가 치환된 3차 아민에 비하여 실리카와의 친화력이 높일 수 있다. 그러나 1차 또는 2차 아민기에 있는 수소는 중합개시제인 알킬리튬과 반응하고, 이로 인하여 타이어용 스티렌-부타디엔 공중합체를 변형시키기 어렵다는 문제점을 가진다. 그러므로 1차 또는 2차 아민기를 가진 결합체는 트리메틸실릴기로 보호하거나 규소에 결합된 알콕시와 아민이 반응하여 트리메틸메톡시실란을 배출하고, 분자 내에 5각형 고리를 형성하도록 할 필요가 있다. 질소에 결합된 트리메틸실릴기는 중합이 끝난 후에 증기로 고분자를 처리할 때 가수분해에 의하여 분리되면서 질소와 수소결합이 될 수 있다. 5각형 고리화합물은 중합개시제인 부틸리튬과 반응하면 알킬 음이온이 규소를 공격하여 고리가 열리게 하고, 리튬은 질소에 결합하고, 이후 중합되어 증기로 고분자를 처리할 때 가수분해하여 분리되어 다시 질소와 수소결합이 된다.

[0033] 이와 같은 반응은 아래와 같이 반응식 4로 표시될 수 있다(T. R. Salikhov et al, Russian Journal of General

Chemistry, 2014, 84, 875).

[0034] 반응식 1:



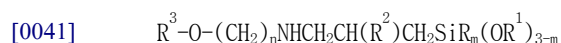
[0035]

[0036] 아미노실리콘 결합체의 질소에 결합된 수소를 트리메틸실릴기로 보호하는 반응은 트리메틸클로로실란이 사용되고, 부산물로 발생하는 염화수소를 잡기 위하여 트리에틸아민이 사용될 수 있다. 상기 화합물에서 트리메틸메톡시실란을 떼어내고 5각형의 실라아자화합물을 합성하기 위하여 황산암모늄 또는 염산암모늄 염이 촉매로 사용될 수 있다. 일반적으로 트리메틸메톡시실란의 끓는점이 다른 반응물에 비하여 낮으므로 트리메틸메톡시실란을 증류하면서 반응시키면 효과적으로 반응이 완결될 수 있다.

[0037] 아미노실리콘 결합체를 대신하여 아미노기를 비롯하여 이더기가 함께 치환된 실리콘 결합체로 변형된 스티렌-부타디엔 공중합체가 실리카와 친화력을 증진시키면 중합체/충진제 상호작용이 개선되어 타이어의 제조 과정에서 유리하게 적용될 수 있다. 또한 타이어 트레드 화합물의 경우, 보다 낮은 수준의 타이어 구름저항을 제공할 수 있으면서 보다 낮은 중합체 히스테리시스를 발생시키도록 한다. 이와 같이 제조된 디엔계 고무-실리카 혼합물은 저 연비성, 웨트그립성, 기계적 강도, 내마모성 및 내저온 취화성의 균형이 맞추어진 타이어 트레드용으로 사용되는 고무 조성물이 얻어질 수 있다.

[0038] 본 발명에 따르면, 반응식 1과 같이 3-클로로프로필트리메톡시실란과 알콕시알킬아민을 반응시켜 얻은 화학식 1로 표시되는 2차 아민이 가진 N-H결합을 트리메틸실릴기로 바꾸는 대신 화학식 2와 같은 여러 가지 알킬클로라이드를 반응시켜 3차 아민으로 바꿀 수 있다. 2차 아민을 예시하면 화학식 1과 같이 표시될 수 있고, 상기 화합물은 본 발명의 발명자에 의하여 2015년11월03일에 출원된 특허출원번호 10-2015-0154110에 개시되어 있고, 상기 발명의 명세서는 참조로 본 명세서에 결합될 수 있다.

[0040] 화학식 1:



[0042] 상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 $PhCH_2$ 가 되고, R^1 은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R^2 은 H 또는 Me가 되고, R^3 은 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, n은 2 또는 3이 된다.

[0043] 화학식 1로 표시되는 2차 아민과 반응하는 알킬할라이드는 화학식 2로 표시될 수 있다.

[0045] 화학식 2:



[0047] 상기에서 R^4 는 Me, Et, Pr, Bu, hexyl, benzyl, allyl, penylethyl, $MeOCH_2CH_2$, $EtOCH_2CH_2$, $BuOCH_2CH_2$, $MeOCH_2CH_2CH_2CH_2$, $MeOCH_2CHMe$, $MeOCH_2CH_2OCH_2CH_2$, $EtOCH_2CH_2OCH_2CH_2$ 또는 $BuOCH_2CH_2OCH_2CH_2$ 가 되고, X는 Cl, Br 또는 I가 된다. 화학식 2로 표시되는 화합물은 공업적으로 생산될 수 있고, 알콕시알킬할라이드는 대응되는 알콕시알콜을 피리딘 촉매 하에서 티오닐클로라이드를 반응시켜 얻어질 수 있다(Jpn. Kokai Tokyo Koho, 04021646, 24 Jan 1992, PCT Int. Appl., 2010021680, 25 Feb 2010). 화학식 1과 화학식 2의 반응에 의하여 화학식 3으로 표시되는 실리콘 결합체가 얻어질 수 있다.

[0049] 화학식 3:



- [0051] 상기에서 R은 Me, Et, Pr, Bu, Ph 또는 PhCH_2 가 되고, R^1 은 Me, Et, Pr 또는 Bu가 되고, R^2 는 H 또는 Me가 되고, R^3 는 Me, Et 또는 Bu가 되고, m은 0, 1 또는 2가 되고, 그리고 n은 2 또는 3이 된다.
- [0052] 상기 반응은 아민이 할로젠으로 치환되는 유기화합물을 생성하는 구핵치환반응이므로 극성용매를 사용하는 것이 유리하다. 상기 반응을 위한 용매로 알콕시실란이 가진 알코올 즉 메톡시실란이 되는 경우 메탄올이 사용될 수 있고, 에톡시실란이 되는 경우 에탄올이 사용될 수 있다. 용매와 알콕시실란의 알코올이 서로 다른 경우 반응 중 알코올 사이의 치환이 발생되지 않을 수 있다. 그러나 아민이나 알콕시실란기가 극성을 띠므로 용매가 사용되지 않아도 반응이 진행될 수 있다. 아민과 할로젠이 치환된 유기화합물 사이의 반응은 80 ~ 150 °C 사이의 온도에서 진행될 수 있고, 용매가 사용되거나 끓는점이 낮은 출발물질이 사용되는 경우 압력이 인가되지 않은 상압에서 반응이 진행될 수 있다. 상기 반응에서 부산물로 염화수소가 발생될 수 있고, 아민과 곧바로 염을 형성하여 고체가 될 수 있다. 그러므로 반응 후 생성물에 결합된 염화수소는 트리에틸아민과 같은 다른 염기로 세척될 필요가 있다. 상기 반응을 위하여 용기는 유리피막으로 도포되거나 스텐리스 철 소재로 만들어질 수 있다. 상기 반응에서 아민과 할로젠이 치환된 유기화합물 사이의 몰 비는 1:1이 될 수 있고, 할로젠이 치환된 실란을 소량 사용하는 것에 의하여 4차 암모늄 할라이드 염이 형성되어 수율이 낮아지는 것이 방지될 수 있다.
- [0053] 위에서 제시된 화합물을 사용하여 제조된 아미노기와 이더기의 두 관능기를 가진 새로운 아미노실리콘 화합물은 실리콘 결합제로 널리 사용될 수 있다. 특히 타이어 고무를 변형을 위하여 유리하게 사용될 수 있다. 아래에서 본 발명에 따른 실리콘 결합제의 제조를 위한 실시예가 제시된다.
- [0055] 실시 예 1: 3-[N,N-bis(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0056] 500mL 2구 둥근바닥플라스크에 응축기와 자석교반기를 장치하고 응축기 끝부분에는 건조된 질소가 통과하도록 하여 전 장치가 질소대기 하에 유지되도록 하였다. 건조된 질소기체 하에서 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 자석교반기로 저어주며 130°C 3시간 교반시켰다. 이 용액에 n-헥산을 넣어 고체를 떨어뜨린 다음 여과시킨 후 감압증류를 통하여 3-[N,N-bis(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 55.4g (수율: 75%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $\text{Si-CH}_2\text{-C}$, 1.4ppm(m, 2H)에서 $\text{C-CH}_2\text{-C}$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $\text{N-CH}_2\text{-C}$, 3.24ppm(s, 6H)에서 C-O-CH_3 , 3.47ppm(t, 4H)에서 $\text{O-CH}_2\text{-C}$, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH_3 피크를 확인 하였다.
- [0058] 실시 예 2: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0059] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 2-에톡시에틸클로라이드 27.1g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 60.3g (수율 78%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $\text{Si-CH}_2\text{-C}$, 1.11ppm(t, 3H)에서 C-CH_3 , 1.4ppm(m, 2H)에서 $\text{C-CH}_2\text{-C}$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $\text{N-CH}_2\text{-C}$, 3.24ppm(s, 3H)에서 C-O-CH_3 , 3.45ppm(m, 6H)에서 $\text{O-CH}_2\text{-C}$, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH_3 피크를 확인 하였다.
- [0061] 실시 예 3: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-부톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0062] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 2-부톡시에틸클로라이드 34.2g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-부톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 67.9g (수율 80.5%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $\text{Si-CH}_2\text{-C}$, 0.96ppm(t, 3H)에서 C-CH_3 , 1.4ppm(m, 6H)에서 $\text{C-CH}_2\text{-C}$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $\text{N-CH}_2\text{-C}$, 3.24ppm(s, 3H)에서 C-O-CH_3 , 3.45ppm(m, 6H)에서 $\text{O-CH}_2\text{-C}$, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH_3 피크를 확인 하였다.
- [0064] 실시 예 4: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0065] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 125.7g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 62.5g (수율 80.8%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $\text{Si-CH}_2\text{-C}$, 1.45ppm(m, 4H)에서 $\text{C-CH}_2\text{-C}$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $\text{N-CH}_2\text{-C}$, 3.24ppm(s, 6H)에서 C-O-CH_3 , 3.42ppm(m, 4H)에서 $\text{O-CH}_2\text{-C}$, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH_3 피크를 확인 하였다.

- [0067] 실시 예 5: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(4-메톡시부틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0068] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 4-메톡시부틸 클로라이드 30.7g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(4-메톡시부틸)아미노]프로필트리메톡시실란 64.4g (수율 79.6%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.45ppm(m, 6H)에서 C-CH₂-C, 2.45ppm(m, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.24ppm(s, 6H)에서 C-O-CH₃, 3.42ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃ 피크를 확인 하였다.
- [0070] 실시 예 6: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(1-메틸-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0071] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 1-메틸-2-에톡시에틸클로라이드 30.7g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(1-메틸-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 63g (수율 77.9%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.1ppm(m, 6H)에서 C-CH₃, 1.45ppm(m, 2H)에서 C-CH₂-C, 2.45ppm(m, 4H)에서 N-CH₂-C, 3.12ppm(m, 1H)에서 N-CH-C, 3.24ppm(s, 3H)에서 C-O-CH₃, 3.42ppm(m, 6H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃ 피크를 확인 하였다.
- [0073] 실시 예 7: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-메톡시-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0074] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 2-메톡시-2-에톡시에틸클로라이드 34.7g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-메톡시-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 68.8g (수율 81.1%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.1ppm(t, 3H)에서 C-CH₃, 1.4ppm(m, 2H)에서 C-CH₂-C, 2.53ppm(m, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.24ppm(s, 6H)에서 C-O-CH₃, 3.44ppm(m, 6H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃ 4.43ppm(t, 1H)에서 O-CH-C, 피크를 확인 하였다.
- [0076] 실시 예 8: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-부톡시-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0077] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(2-메톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 118.7g (0.5mol) 과 2-부톡시-2-에톡시에틸클로라이드 45.2g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(2-부톡시-2-에톡시에틸)아미노]프로필트리메톡시실란 76.3g (수율 80%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.03ppm(m, 6H)에서 C-CH₃, 1.4ppm(m, 6H)에서 C-CH₂-C, 2.53ppm(m, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.24ppm(s, 3H)에서 C-O-CH₃, 3.44ppm(m, 6H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃ 4.43ppm(t, 1H)에서 O-CH-C, 피크를 확인 하였다.
- [0079] 실시 예 9: 3-[N-벤질-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0080] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 벤질클로라이드 31.7g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-벤질-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 69.2g (수율 77.8%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.11ppm(t, 3H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.36ppm(m, 4H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 3.62ppm(m, 2H)에서 N-CH₂-C, 7.25ppm(m, 5H)에서 C=CH-C, 피크를 확인 하였다.
- [0082] 실시 예 10: 3-[N-알릴-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0083] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 알릴클로라이드 19.1g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-알릴-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 61.6g (수율 80.6%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.11ppm(t, 3H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.36ppm(m, 4H)에서 N-CH₂-C, 3.03ppm(d, 2H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 5.16ppm(m, 2H)에서 C=CH₂, 5.83ppm(m, 1H)에서 C-CH=C, 피크를 확인 하였다.
- [0085] 실시 예 11: 3-[N-페네틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성

- [0086] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 페네틸클로라이드 35.2g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-페네틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 70.1g (수율 75.9%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.11ppm(t, 3H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.36ppm(m, 4H)에서 N-CH₂-C, 2.65ppm(t, 2H)에서 C-CH₂-C, 2.69ppm(t, 2H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 7.25ppm(m, 5H)에서 C=CH-C, 피크를 확인 하였다.
- [0088] 실시 예 12: 3-[N-헥실-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0089] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 헥실클로라이드 30.2g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-헥실-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 66.4g (수율 76%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.03ppm(m, 6H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 12H)에서 C-CH₂-C, 2.36ppm(t, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 피크를 확인 하였다.
- [0091] 실시 예 13: 3-[N-프로필-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0092] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 프로필브로마이드 30.8g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-프로필-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 61.7g (수율 80.3%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.03ppm(m, 6H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 6H)에서 C-CH₂-C, 2.36ppm(t, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 피크를 확인 하였다.
- [0094] 실시 예 14: 3-[N-에틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0095] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 에틸브로마이드 27.2g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-에틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 59.1g (수율 80.5%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.06ppm(m, 6H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.37ppm(m, 6H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 피크를 확인 하였다.
- [0097] 실시 예 15: 3-[N-메틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란의 합성
- [0098] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 132.7g (0.5mol) 과 메틸아이오다이드 35.5g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-메틸-N-(3-에톡시프로필)아미노]프로필트리메톡시실란 59g (수율 84.5%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.11ppm(t, 3H)에서 C-CH₃, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.27ppm(s, 3H)에서 N-CH₃, 2.37ppm(t, 4H)에서 N-CH₂-C, 3.39ppm(m, 4H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 9H)에서 Si-O-CH₃, 피크를 확인 하였다.
- [0100] 실시 예 16: 3-[N-알릴-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디메톡시실란의 합성
- [0101] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디메톡시실란 117.7g (0.5mol) 과 알릴브로마이드 30.3g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-알릴-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디메톡시실란 56.6g (수율 82.2%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.14ppm(s, 3H)에서 Si-CH₃, 1.3ppm(m, 2H)에서 Si-CH₂-C, 1.48ppm(m, 4H)에서 C-CH₂-C, 2.37ppm(t, 4H)에서 N-CH₂-C, 3.03ppm(d, 2H)에서 N-CH₂-C, 3.24ppm(s, 3H)에서 C-O-CH₃, 3.39ppm(t, 2H)에서 O-CH₂-C, 3.55ppm(s, 6H)에서 Si-O-CH₃, 5.16ppm(m, 2H)에서 C=CH₂, 5.83ppm(m, 1H)에서 C-CH=C, 피크를 확인 하였다.
- [0103] 실시 예 17: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디메톡시실란의 합성
- [0104] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디메톡시실란 124.7g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디

메톡시실란 58.6g (수율 79.8%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.9ppm(t, 3H)에서 $C-CH_3$, 1.35ppm(m, 4H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.48ppm(m, 4H)에서 $C-CH_2-C$, 2.42ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.55ppm(s, 6H)에서 $Si-O-CH_3$, 피크를 확인 하였다.

[0106] 실시 예 18: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리에톡시실란의 합성

[0107] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리에톡시실란 146.7g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리에톡시실란 68.4g (수율 81.1%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.22ppm(t, 9H)에서 $C-CH_3$, 1.48ppm(m, 4H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.83ppm(m, 6H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0109] 실시 예 19: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필프로필디에톡시실란의 합성

[0110] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필프로필디에톡시실란 145.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필프로필디에톡시실란 71.1g (수율 81.4%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.96ppm(t, 3H)에서 $C-CH_3$, 1.22ppm(t, 6H)에서 $Si-O-C-CH_3$, 1.3ppm(m, 4H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.45ppm(m, 6H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.83ppm(m, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0112] 실시 예 20: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디에톡시실란의 합성

[0113] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디에톡시실란 138.7g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필에틸디에톡시실란 64.4g (수율 80.1%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.9ppm(m, 3H)에서 $Si-C-CH_3$, 1.22ppm(t, 6H)에서 $C-CH_3$, 1.35ppm(m, 4H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.48ppm(m, 4H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.83ppm(m, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0115] 실시 예 21: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리프로폭시실란의 합성

[0116] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리프로폭시실란 167.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필트리프로폭시실란 75g (수율 79%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.58ppm(m, 2H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.22ppm(t, 9H)에서 $C-CH_3$, 1.35ppm(m, 4H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.53ppm(m, 10H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.79ppm(t, 6H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0118] 실시 예 22: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디프로폭시실란의 합성

[0119] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디프로폭시실란 145.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필메틸디프로폭시실란 68.9g (수율 82.1%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.14ppm(s, 3H)에서 $Si-CH_3$, 0.96ppm(t, 6H)에서 $C-CH_3$, 1.3ppm(m, 2H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.5ppm(m, 8H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.79ppm(t, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0121] 실시 예 23: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필부틸디프로폭시실란의 합성

[0122] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필부틸디프로폭시실란 166.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필부틸디프로폭시실란 78.3g (수율 80%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.96ppm(t, 9

H)에서 $C-CH_3$, 1.3ppm(m, 4H)에서 $Si-CH_2-C$, 1.44ppm(m, 12H)에서 $C-CH_2-C$, 2.45ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $C-O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.79ppm(t, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 피크를 확인 하였다.

[0124] 실시 예 24: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필페닐디에톡시실란의 합성

[0125] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필페닐디에톡시실란 162.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필페닐디에톡시실란 71.6g (수율 77.5%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 1.22ppm(t, 6H)에서 $C-CH_3$, 1.45ppm(m, 2H)에서 $Si-CH_2-C$ 1.48ppm(m, 4H)에서 $C-CH_2-C$, 2.41ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.83ppm(t, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 7.3ppm(m, 5H)에서 $C=CH-C$, 피크를 확인 하였다.

[0127] 실시 예 25: 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필벤질디프로폭시실란의 합성

[0128] 실시 예 1과 같은 방법으로 3-[N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필벤질디프로폭시실란 183.8g (0.5mol) 과 2-메톡시에틸클로라이드 23.6g (0.25mol)를 넣고 반응시켜 3-[N-(2-메톡시에틸)-N-(3-메톡시프로필)아미노]프로필벤질디프로폭시실란 81g (수율 78.7%)을 얻었다. 얻어진 생성물은 300MHz 수소핵자기공명 분석결과, 0.96ppm(t, 6H)에서 $C-CH_3$, 1.3ppm(m, 2H)에서 $Si-CH_2-C$ 1.5ppm(m, 8H)에서 $C-CH_2-C$, 2.41ppm(m, 6H)에서 $N-CH_2-C$, 2.6ppm(s, 2H)에서 $Si-CH_2-C$, 3.24ppm(s, 6H)에서 $O-CH_3$, 3.42ppm(m, 4H)에서 $O-CH_2-C$, 3.79ppm(t, 4H)에서 $Si-O-CH_2$, 7.13ppm(m, 5H)에서 $C=CH-C$, 피크를 확인 하였다.

[0130] 본 발명에 따른 실리콘 결합제는 타이어 고무와 실리카의 상호 작용이 향상되도록 하는 것에 의하여 카본 블랙 충전제의 사용이 감소되도록 한다. 본 발명에 따른 실리콘 결합제는 타이어의 제조 과정에 적용되어 낮은 수준의 타이어 구름 저항을 제공하면서 낮은 중합체 히스테리시스를 발생시킨다. 또한 본 발명에 따른 실리콘 결합제의 제조 방법은 낮은 연비, 습윤 접촉성(Wet Grip Property), 기계적 강도, 내마모성 및 낮은 저온 취화성으로서로 균형을 이루도록 하는 타이어 트레드용 고무 조성물이 얻어지도록 한다.

[0131] 위에서 본 발명은 제시된 실시 예를 참조하여 상세하게 설명이 되었지만 이 분야에서 통상의 지식을 가진 자는 제시된 실시 예를 참조하여 본 발명의 기술적 사상을 벗어나지 않는 범위에서 다양한 변형 및 수정 발명을 만들 수 있을 것이다. 본 발명은 이와 같은 변형 및 수정 발명에 의하여 제한되지 않으며 다만 아래에 첨부된 청구범위에 의하여 제한된다.

【심사관 직권보정사항】

【직권보정 1】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 제2항

【변경전】

n은 2 또는 3이 되는 것을 특징으로 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합제의 제조 방법

【변경후】

n은 2 또는 3이 되는 것, 및 X는 Cl, Br 또는 I가 되는 것을 특징으로 이더기 치환 3차 아미노기를 가진 실리콘 결합제의 제조 방법