



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2018-0113579  
(43) 공개일자 2018년10월16일

- |  |   |
|--|---|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)<br/>C08G 77/54 (2006.01) H01L 33/56 (2010.01)</p> <p>(52) CPC특허분류<br/>C08G 77/54 (2013.01)<br/>H01L 33/56 (2013.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2018-7026545</p> <p>(22) 출원일자(국제) 2017년01월19일<br/>심사청구일자 없음</p> <p>(85) 번역문제출일자 2018년09월13일</p> <p>(86) 국제출원번호 PCT/EP2017/000059</p> <p>(87) 국제공개번호 WO 2017/140407<br/>국제공개일자 2017년08월24일</p> <p>(30) 우선권주장<br/>16000371.1 2016년02월15일<br/>유럽특허청(EPO)(EP)</p> | <p>(71) 출원인<br/>에이제트 일렉트로닉 머티어리얼스 (룩셈부르크)<br/>에스.에이.알.엘.<br/>룩셈부르크 엘-1648 플레이스 기욤 II 46</p> <p>(72) 발명자<br/>그로텐필러 랄프<br/>독일 65199 비스바덴 쾰베르크슈트라쎄 35<br/>카사스 가르시아-밍겔란 아브라함<br/>독일 65207 비스바덴 알테 도르프슈트라쎄 64<br/>기타 후미오<br/>독일 65185 비스바덴 라인슈트라쎄 105</p> <p>(74) 대리인<br/>특허법인코리아나</p> |
|--|---|

전체 청구항 수 : 총 13 항

(54) 발명의 명칭 실라잔-실록산 랜덤 공중합체, 이의 제조 및 용도

(57) 요약

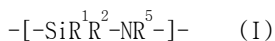
본 발명은 실라잔-실록산 랜덤 공중합체뿐 아니라 이의 제조 및 특히 LED 에서의 이의 용도에 관한 것이다.

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

제 1 단량체 단위  $M^1$  및 제 2 단량체 단위  $M^2$  를 랜덤 시퀀스로 포함하는 중합체로서, 제 1 단량체 단위  $M^1$  은 식 (I) 을 갖고, 제 2 단량체 단위  $M^2$  는 식 (II) 를 갖는 중합체:



[식 중,

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$  및  $\text{R}^5$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 H 및 카르빌로 이루어진 군으로부터 선택되고;

$a$  는 1 이상 10 이하의 정수임].

#### 청구항 2

제 1 항에 있어서,  $\text{R}^1$  및  $\text{R}^2$  가 각각의 경우 독립적으로 H 또는 1 개 이상 20 개 이하의 탄소 원자를 갖는 알킬 또는 페닐인 중합체.

#### 청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,  $\text{R}^1$  및  $\text{R}^2$  가 독립적으로 H 또는 메틸인 중합체.

#### 청구항 4

제 1 항 내지 제 3 항 중 어느 한 항에 있어서,  $\text{R}^3$  및  $\text{R}^4$  가 각각의 경우 독립적으로 H 또는 1 개 이상 40 개 이하의 탄소 원자를 갖는 알킬 또는 페닐인 중합체.

#### 청구항 5

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,  $\text{R}^3$  및  $\text{R}^4$  가 독립적으로 메틸 또는 페닐인 중합체.

#### 청구항 6

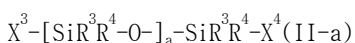
제 1 항 내지 제 5 항 중 어느 한 항에 있어서,  $\text{R}^5$  가 각각의 경우 독립적으로 H 또는 1 개 이상 20 개 이하의 탄소 원자를 갖는 알킬 또는 페닐인 중합체.

#### 청구항 7

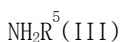
제 1 항 내지 제 6 항 중 어느 한 항에 있어서,  $\text{R}^5$  가 각각의 경우 독립적으로 H 또는 메틸인 중합체.

#### 청구항 8

오르가노실란, 아민 및 오르가노실록산을 반응시킴으로써 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 단계를 포함하는 방법으로서, 오르가노실란이 두 할로젠 말단 기를 포함하고, 오르가노실록산이 식 (II-a) 를 갖고:



아민이 식 (III) 을 갖는 방법:



[식 중,

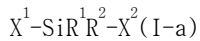
$X^3$  및  $X^4$ 는 동일하고, 각각의 경우 독립적으로 OH, Cl, Br, I 로 이루어진 군으로부터 선택되고;

$R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$ 는 각각의 경우 독립적으로 H 또는 카르빌 기이고;

a 는 1 이상 10 이하의 정수임].

#### 청구항 9

제 8 항에 있어서, 오르가노실란이 식 (I-a) 를 갖는 방법:



[식 중,

$R^1$  및  $R^2$ 는 각각의 경우 독립적으로 H 또는 카르빌이고;

$X^1$  및  $X^2$ 는 각각의 경우 독립적으로 Cl, Br, I 로 이루어진 군으로부터 선택됨].

#### 청구항 10

제 8 항 또는 제 9 항에 있어서, 상기 방법이 이와 같이 수득된 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 조성물을 제공하는 단계, 및 이후 기판 상에 상기 조성물을 침적시키는 단계를 추가로 포함하는 방법.

#### 청구항 11

제 10 항에 있어서, 전자 소자가 LED 칩이고, 실라잔-실록산 랜덤 공중합체가 LED 칩 상에 직접 침적되는 방법.

#### 청구항 12

제 10 항 또는 제 11 항에 있어서, 상기 조성물이 발광 물질을 추가로 포함하는 방법.

#### 청구항 13

제 12 항에 있어서, 발광 물질이 포스포린 방법.

### 발명의 설명

### 기술 분야

[0001] 본 발명은 실라잔-실록산 랜덤 공중합체뿐 아니라 이의 제조 및 특히 LED 에서의 이의 용도에 관한 것이다.

### 배경 기술

[0002] 최근, 전자 산업은 주요한 개선 없이 수십 년 동안 사용되어온 기존의 기술의 신속한 대체를 확인하였다.

[0003] 한 상기 예는 발광 다이오드 (LED) 에 의해 대체된 기존의 백열성 전구이다. 백열성 전구의 수명은 일반적으로 약 수천 시간인데, LED 는 수만 시간의 수명을 주장한다. 이러한 긴 수명은, LED 의 발광 물질이 산소 및 수분과 같은 환경적 요소에 의한 저하로부터 효과적으로 보호될 수 있는 경우에만 단지 가능해진다. 흔히, 이는 중합체의 LED 를 캡슐화함으로써 수행된다. 그러나, 상기 중합체의 캡슐화는 하기 여러 추가 요건을 충족시킬 필요가 있다:

[0004] - 중합체는 기계적 및/또는 광학 특성의 저하 없이 고온을 견뎌야 함;

[0005] - 광학 투명도 및 높은 서비스 온도 이외에, 중합체는 높은 굴절률을 가져야 함;

[0006] - 중합체는 높은 강도의 방사선에 대한 높은 저항성을 갖도록 요구됨; 및

[0007] - 탄성 모듈러스가 매우 약함 내지 강함에서 다양할 수 있는 중합체에 대한 요구가 존재함.

[0008] 최근, 폴리실라잔/폴리실록산 공중합체가 캡슐화 중합체로서 US 2015/0188006 A1 에 제안되었다.

- [0009] 상기 공중합체는 예를 들어 WO 02/068535 A1 에 개시되어 있다.
- [0010] 그러나, 이러한 중합체뿐 아니라 이의 제조 방법은, 특히 기계적 특성 및 열 및/또는 광 안정성 사이의 균형에 관해 여전히 개선의 여지가 남아있다. 이들은 양호한 열 및 광 안정성을 나타내는 한편, 현재의 폴리실라잔은, 예를 들어 극심한 크랙 형성, 특히 마이크로-크랙을 형성하는 경향이 있고, 또한 첨가제와 제한된 양립성을 나타낸다.
- [0011] 따라서, 본 출원의 목적은 개선된 특성, 특히 LED 적용에서 개선된 특성을 갖는 중합체를 제공하는 것이다.
- [0012] 또한, 본 출원의 목적은 개선된 특성을 갖는 상기 중합체를 제조하는 방법을 제공하는 것이다.
- [0013] 추가로, 본 출원의 목적은 산업 스케일로 용이하게 업-스케일될 수 있고/있거나 맞춤 제조된 중합체의 용이한 제조를 허용하는 유연한 다목적 방법을 제공하는 것이다.

### 발명의 내용

- [0014] 놀랍게도, 본 발명자들은 상기 목적이 본 출원의 방법 및 중합체에 의해 (개별적으로 또는 임의의 조합으로) 달성될 수 있다는 것을 발견하였다.
- [0015] 따라서, 본 출원은 랜덤 시퀀스로 제 1 단량체 단위  $M^1$  및 제 2 단량체 단위  $M^2$  를 포함하는 중합체를 제공하고, 여기서 제 1 단량체 단위  $M^1$  은 식 (I) 을 갖고, 제 2 단량체 단위  $M^2$  는 식 (II) 를 갖는다:
- [0016]  $-\text{[SiR}^1\text{R}^2\text{-NR}^5\text{]-}$  (I)
- [0017]  $-\text{[SiR}^3\text{R}^4\text{-[O-SiR}^3\text{R}^4\text{]}_a\text{-NR}^5\text{]-}$  (II)
- [0018] [식 중,
- [0019]  $R^1, R^2, R^3, R^4$  및  $R^5$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 H 및 카르빌로 이루어진 군으로부터 선택되고;
- [0020] a 는 1 이상 10 이하의 정수임].
- [0021] 따라서, 본 출원은 오르가노실란, 아민 및 오르가노실록산을 반응시킴으로써 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 단계를 포함하는 방법을 제공하고, 여기서 오르가노실란은 두 할로겐 말단 기를 포함하고, 오르가노실록산은 식 (II-a) 를 갖고,
- [0022]  $X^3\text{-[SiR}^3\text{R}^4\text{-O]}_a\text{-SiR}^3\text{R}^4\text{-X}^4$  (II-a)
- [0023] 아민은 식 (III) 을 갖는다:
- [0024]  $\text{NH}_2\text{R}^5$  (III)
- [0025] [식 중,
- [0026]  $X^3$  및  $X^4$  는 동일하고, 각각의 경우 독립적으로 OH, Cl, Br, I 로 이루어진 군으로부터 선택되고;
- [0027]  $R^3, R^4$  및  $R^5$  는 각각의 경우 독립적으로 H 또는 카르빌 기이고;
- [0028] a 는 1 이상 10 이하의 정수임].

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0029] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "오르가노실란" 은 실란의 오르가닐 유도체를 의미하기 위해 사용되고, 즉 하나 이상의 수소가 상응하는 수의 오르가닐 기로 대체된 실란을 의미하기 위해 사용된다.
- [0030] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "오르가노실록산" 은 실록산의 오르가닐 유도체를 의미하기 위해 사용되고, 즉 하나 이상의 수소가 상응하는 수의 오르가닐 기로 대체된 실록산을 의미하기 위해 사용된다.
- [0031] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "오르가닐" 은 관능기 유형에 관계 없이, 탄소 원자에 1 개의 자유 원자기를 갖는

임의의 유기 치환기를 의미하기 위해 사용된다.

- [0032] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "오르가노헤테릴" 은 탄소를 함유하여 유기이지만 탄소 원자 이외의 원자에 자유 원자가를 갖는 임의의 1가 (univalent) 기를 의미하기 위해 사용된다.
- [0033] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "카르빌 기" 는 오르가닐 기 및 오르가노헤테릴 기 모두를 포함한다. 본원에 사용된 바, 용어 "카르빌 기" 는 임의의 비(非)-탄소 원자를 갖지 않거나 (예를 들어,  $-C\equiv C-$ ), 하나 이상의 헤테로원자를 임의로 포함하는 (예를 들어, 카르보닐 등), 하나 이상의 탄소 원자를 포함하는 임의의 1가 (monovalent) 또는 다가 유기 라디칼 모이어티를 의미하는 것으로 이해될 것이다.
- [0034] 용어 "히드로카르빌 기" 는 하나 이상의 H 원자를 부가적으로 함유하고, 하나 이상의 헤테로 원자를 임의로 함유하는 카르빌 기를 의미하는 것으로 이해될 것이다.
- [0035] 본원에 사용된 바, 용어 "헤테로 원자" 는 H- 또는 C-원자가 아닌 유기 화합물의 원자를 의미하는 것으로 이해될 것이고, 바람직하게는 N, O, S, P, Si, Se, As, Te 또는 Ge 를 의미하는 것으로 이해될 것이다.
- [0036] 3 개 이상의 C 원자 사슬을 포함하는 카르빌 또는 히드로카르빌 기는 직쇄, 분지형 및/또는 시클릭 (스피로 및/또는 융합 고리 포함) 일 수 있다.
- [0037] 바람직한 카르빌 및 히드로카르빌 기는 알킬, 알콕시, 알킬카르보닐, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐옥시 및 알콕시카르보닐옥시 (이들 각각은 임의 치환되고, 1 내지 40 개, 바람직하게는 1 내지 25 개, 매우 바람직하게는 1 내지 18 개의 C 원자를 가짐), 추가로 6 내지 40 개, 바람직하게는 6 내지 25 개의 C 원자를 갖는 임의 치환된 아릴 또는 아릴옥시, 추가로 알킬아릴옥시, 아릴카르보닐, 아릴옥시카르보닐, 아릴카르보닐옥시 및 아릴옥시카르보닐옥시 (이들 각각은 임의 치환되고, 6 내지 40 개, 바람직하게는 7 내지 40 개의 C 원자를 가짐) 를 포함하고, 여기서 모든 이러한 기는 임의로 바람직하게는 N, O, S, P, Si, Se, As, Te 및 Ge 로부터 선택되는 하나 이상의 헤테로 원자를 함유한다.
- [0038] 카르빌 또는 히드로카르빌 기는 포화 또는 불포화 비(非)시클릭 기, 또는 포화 또는 불포화 시클릭 기일 수 있다. 불포화 비시클릭 또는 시클릭 기가 바람직하고, 특히 아릴, 알케닐 및 알키닐 기 (특히 에티닐) 가 바람직하다.  $C_1-C_{40}$  카르빌 또는 히드로카르빌 기가 비시클릭인 경우, 기는 직쇄 또는 분지형일 수 있다.  $C_1-C_{40}$  카르빌 또는 히드로카르빌 기는 예를 들어 하기를 포함한다:  $C_1-C_{40}$  알킬 기,  $C_1-C_{40}$  플루오로알킬 기,  $C_1-C_{40}$  알콕시 또는 옥사알킬 기,  $C_2-C_{40}$  알케닐 기,  $C_2-C_{40}$  알키닐 기,  $C_3-C_{40}$  알릴 기,  $C_4-C_{40}$  알킬디에닐 기,  $C_4-C_{40}$  폴리에닐 기,  $C_2-C_{40}$  케톤 기,  $C_2-C_{40}$  에스테르 기,  $C_6-C_{18}$  아릴 기,  $C_6-C_{40}$  알킬아릴 기,  $C_6-C_{40}$  아릴알킬 기,  $C_4-C_{40}$  시클로알킬 기,  $C_4-C_{40}$  시클로알케닐 기 등. 하기 기 중에서 바람직한 것은 각각 다음과 같다:  $C_1-C_{20}$  알킬 기,  $C_1-C_{20}$  플루오로알킬 기,  $C_2-C_{20}$  알케닐 기,  $C_2-C_{20}$  알키닐 기,  $C_3-C_{20}$  알릴 기,  $C_4-C_{20}$  알킬디에닐 기,  $C_2-C_{20}$  케톤 기,  $C_2-C_{20}$  에스테르 기,  $C_6-C_{12}$  아릴 기, 및  $C_4-C_{20}$  폴리에닐 기. 또한 포함된 것은, 탄소 원자를 갖는 기 및 헤테로 원자를 갖는 기의 조합, 예를 들어 실릴 기, 바람직하게는 트리알킬실릴 기로 치환된 알키닐 기, 바람직하게는 에티닐이다.
- [0039] 본원에 사용된 바, 용어 "아릴" 및 "헤테로아릴" 은 바람직하게는 또한 축합 고리를 포함할 수 있고, 하나 이상의 기 L 로 임의 치환되는, 4 내지 30 개의 고리 C 원자를 갖는 모노-, 바이- 또는 트리시클릭 방향족 또는 헤테로방향족 기를 의미하고, 여기서 L 은 할로젠,  $-CN$ ,  $-NC$ ,  $-NCO$ ,  $-NCS$ ,  $-OCN$ ,  $-SCN$ ,  $-C(=O)NR^0R^{00}$ ,  $-C(=O)X^0$ ,  $-C(=O)R^0$ ,  $-NH_2$ ,  $-NR^0R^{00}$ ,  $-SH$ ,  $-SR^0$ ,  $-SO_3H$ ,  $-SO_2R^0$ ,  $-OH$ ,  $-NO_2$ ,  $-CF_3$ ,  $-SF_5$ , P-Sp-, 임의 치환된 실릴, 또는 임의 치환되고, 임의로 하나 이상의 헤테로원자를 포함하고, 1 내지 40 개의 C 원자를 갖는 카르빌 또는 히드로카르빌로부터 선택되고, 바람직하게는 알킬, 알콕시, 티아알킬, 알킬카르보닐, 알콕시카르보닐 또는 알콕시카르보닐옥시 (임의로 플루오로인화되고, 1 내지 20 개의 C 원자를 가짐) 이고,  $R^0$ ,  $R^{00}$ ,  $X^0$ , P 및 Sp 는 상기 및 하기에 제시된 의미를 갖는다.
- [0040] 매우 바람직한 치환기 L 은 할로젠 (가장 바람직하게는 F) 또는 알킬, 알콕시, 옥사알킬, 티오알킬, 플루오로알킬 및 플루오로알콕시 (1 내지 12 개의 C 원자를 가짐) 또는 알케닐, 및 알키닐 (2 내지 12 개의 C 원자를 가짐) 로부터 선택된다.
- [0041] 특히 바람직한 아릴 및 헤테로아릴 기는 페닐, 하나 이상의 CH 기가 N 으로 대체된 페닐, 나프탈렌, 티오펜, 셀

레노펜, 티에노티오펜, 디티에노티오펜, 플루오렌 및 옥사졸이고, 이들 모두는 미치환, 상기 정의된 바와 같은 L 로 모노- 또는 폴리치환될 수 있다. 매우 바람직한 고리는 피롤, 바람직하게는 N-피롤, 푸란, 피리딘, 바람직하게는 2- 또는 3-피리딘, 피리미딘, 피리다진, 피라진, 트리아졸, 테트라졸, 피라졸, 이미다졸, 이소티아졸, 티아졸, 티아디아졸, 이속사졸, 옥사졸, 옥사디아졸, 티오펜, 바람직하게는 2-티오펜, 셀레노펜, 바람직하게는 2-셀레노펜, 티에노[3,2-b]티오펜, 티에노[2,3-b]티오펜, 푸로[3,2-b]푸란, 푸로[2,3-b]푸란, 셀레노[3,2-b]셀레노펜, 셀레노[2,3-b]셀레노펜, 티에노[3,2-b]셀레노펜, 티에노[3,2-b]푸란, 인돌, 이소인돌, 벤조[b]푸란, 벤조[b]티오펜, 벤조[1,2-b;4,5-b']디티오펜, 벤조[2,1-b;3,4-b']디티오펜, 퀴놀, 2- 메틸퀴놀, 이소퀴놀, 퀴놀살린, 퀴나졸린, 벤조트리아졸, 벤즈이미다졸, 벤조티아졸, 벤즈이소티아졸, 벤즈이속사졸, 벤족사디아졸, 벤족사졸, 벤조티아디아졸로부터 선택되고, 이들 모두는 미치환, 상기 정의된 바와 같은 L 로 모노- 또는 폴리치환될 수 있다. 아릴 및 헤테로아릴 기의 추가 예는 하기 나타난 기로부터 선택된 것이다.

[0042] 알킬 또는 알콕시 라디칼, 즉 말단  $\text{CH}_2$  기가 -O- 로 대체된 라디칼은 직쇄 또는 분지형일 수 있다. 이는 바람직하게는 직쇄 (또는 선형) 이다. 상기 알킬 및 알콕시 라디칼의 적합한 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실, 헵틸, 옥틸, 노닐, 데실, 운데실, 도데실, 트리데실, 테트라데실, 펜타데실, 메톡시, 에톡시, 프로폭시, 부톡시, 펜톡시, 헥소시, 헵톡시, 옥톡시, 노녹시, 데코시, 운데코시, 도데코시, 트리데코시 또는 테트라데코시이다. 바람직한 알킬 및 알콕시 라디칼은 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 또는 10 개의 탄소 원자를 갖는다. 상기 바람직한 알킬 및 알콕시 라디칼의 적합한 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실, 헵틸, 옥틸, 노닐, 데실, 메톡시, 에톡시, 프로폭시, 부톡시, 펜톡시, 헥소시, 헵톡시, 옥톡시, 노녹시 및 데코시로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.

[0043] 하나 이상의  $\text{CH}_2$  기가  $-\text{CH}=\text{CH}-$  로 대체된 알케닐 기는 직쇄 또는 분지형일 수 있다. 이는 바람직하게는 직쇄이고, 2 내지 10 개의 C 원자를 갖고, 이에 따라 바람직하게는 비닐, 프로프-1-에닐, 또는 프로프-2-에닐, 부트-1-에닐, 부트-2-에닐 또는 부트-3-에닐, 펜트-1-에닐, 펜트-2-에닐, 펜트-3-에닐 또는 펜트-4-에닐, 헥스-1-에닐, 헥스-2-에닐, 헥스-3-에닐, 헥스-4-에닐 또는 헥스-5-에닐, 헵트-1-에닐, 헵트-2-에닐, 헵트-3-에닐, 헵트-4-에닐, 헵트-5-에닐 또는 헵트-6-에닐, 옥트-1-에닐, 옥트-2-에닐, 옥트-3-에닐, 옥트-4-에닐, 옥트-5-에닐, 옥트-6-에닐 또는 옥트-7-에닐, 논-1-에닐, 논-2-에닐, 논-3-에닐, 논-4-에닐, 논-5-에닐, 논-6-에닐, 논-7-에닐 또는 논-8-에닐, 데크-1-에닐, 데크-2-에닐, 데크-3-에닐, 데크-4-에닐, 데크-5-에닐, 데크-6-에닐, 데크-7-에닐, 데크-8-에닐 또는 데크-9-에닐이다.

[0044] 특히 바람직한 알케닐 기는  $\text{C}_2\text{-C}_7\text{-1E}$ -알케닐,  $\text{C}_4\text{-C}_7\text{-3E}$ -알케닐,  $\text{C}_5\text{-C}_7\text{-4}$ -알케닐,  $\text{C}_6\text{-C}_7\text{-5}$ -알케닐 및  $\text{C}_7\text{-6}$ -알케닐, 특히  $\text{C}_2\text{-C}_7\text{-1E}$ -알케닐,  $\text{C}_4\text{-C}_7\text{-3E}$ -알케닐 및  $\text{C}_5\text{-C}_7\text{-4}$ -알케닐이다. 특히 바람직한 알케닐 기의 예는 비닐, 1E-프로페닐, 1E-부테닐, 1E-펜테닐, 1E-헥세닐, 1E-헵테닐, 3-부테닐, 3E-펜테닐, 3E-헥세닐, 3E-헵테닐, 4-펜테닐, 4Z-헥세닐, 4E-헥세닐, 4Z-헵테닐, 5-헥세닐, 6-헵테닐 등이다. 5 개 이하의 C 원자를 갖는 알케닐 기가 일반적으로 바람직하다.

[0045] 옥사알킬 기, 즉 하나의  $\text{CH}_2$  기가 -O- 로 대체된 것은 바람직하게는 예를 들어 직쇄 2-옥사프로필 (= 메톡시메틸), 2-(에톡시메틸) 또는 3-옥사부틸 (= 2-메톡시에틸), 2-, 3-, 또는 4-옥사펜틸, 2-, 3-, 4-, 또는 5-옥사헥실, 2-, 3-, 4-, 5-, 또는 6-옥사헵틸, 2-, 3-, 4-, 5-, 6- 또는 7-옥사옥틸, 2-, 3-, 4-, 5-, 6-, 7- 또는 8-옥사노닐 또는 2-, 3-, 4-, 5-, 6-, 7-, 8- 또는 9-옥사데실이다. 옥사알킬, 즉 하나의  $\text{CH}_2$  기가 -O- 로 대체된 것은 바람직하게는 예를 들어 직쇄 2-옥사프로필 (= 메톡시메틸), 2- (= 에톡시메틸) 또는 3-옥사부틸 (= 2-메톡시에틸), 2-, 3-, 또는 4-옥사펜틸, 2-, 3-, 4-, 또는 5-옥사헥실, 2-, 3-, 4-, 5-, 또는 6-옥사헵틸, 2-, 3-, 4-, 5-, 6- 또는 7-옥사옥틸, 2-, 3-, 4-, 5-, 6-, 7- 또는 8-옥사노닐 또는 2-, 3-, 4-, 5-, 6-, 7-, 8- 또는 9-옥사데실이다.

[0046] 하나의  $\text{CH}_2$  기가 -O- 및 하나의  $-\text{C}(\text{O})-$  로 대체된 알킬 기에서, 이러한 라디칼은 바람직하게는 이웃한다. 따라서, 이러한 라디칼은 함께 카르보닐옥시 기  $-\text{C}(\text{O})-\text{O}-$  또는 옥시카르보닐 기  $-\text{O}-\text{C}(\text{O})-$  를 형성한다. 바람직하게는, 이러한 기는 직쇄이고, 2 내지 6 개의 C 원자를 갖는다. 따라서, 이는 바람직하게는 아세틸옥시, 프로피오닐옥시, 부티릴옥시, 펜타노일옥시, 헥사노일옥시, 아세틸옥시메틸, 프로피오닐옥시메틸, 부티릴옥시메틸, 펜타노일옥시메틸, 2-아세틸옥시에틸, 2-프로피오닐옥시에틸, 2-부티릴옥시에틸, 3-아세틸옥시프로필, 3-프로피오닐옥시프로필, 4-아세틸옥시부틸, 메톡시카르보닐, 에톡시카르보닐, 프로폭시카르보닐, 부톡시카르보닐, 펜톡시카르보닐, 메톡시카르보닐메틸, 에톡시카르보닐메틸, 프로폭시카르보닐메틸, 부톡시카르보닐메틸, 2-(메톡시카르보닐)에틸, 2-(에톡시카르보닐)에틸, 2-(프로폭시카르보닐)에틸, 3-(메톡시카르보닐)프로필, 3-(에

톡시카르보닐)프로필, 및 4-(메톡시카르보닐)-부틸로 이루어진 군으로부터 선택된다.

[0047] 둘 이상의  $\text{CH}_2$  기가 -O- 및/또는 -C(O)O- 로 대체된 알킬 기는 직쇄 또는 분지형일 수 있다. 이는 바람직하게는 직쇄이고, 3 내지 12 개의 C 원자를 갖는다. 따라서, 이는 바람직하게는 비스-카르복시-메틸, 2,2-비스-카르복시-에틸, 3,3-비스-카르복시-프로필, 4,4-비스-카르복시-부틸, 5,5-비스-카르복시-펜틸, 6,6-비스-카르복시-헥실, 7,7-비스-카르복시-헵틸, 8,8-비스-카르복시-옥틸, 9,9-비스-카르복시-노닐, 10,10-비스-카르복시-데실, 비스-(메톡시카르보닐)-메틸, 2,2-비스-(메톡시카르보닐)-에틸, 3,3-비스-(메톡시카르보닐)-프로필, 4,4-비스-(메톡시카르보닐)-부틸, 5,5-비스-(메톡시카르보닐)-펜틸, 6,6-비스-(메톡시카르보닐)-헥실, 7,7-비스-(메톡시카르보닐)-헵틸, 8,8-비스-(메톡시카르보닐)-옥틸, 비스-(에톡시카르보닐)-메틸, 2,2-비스-(에톡시카르보닐)-에틸, 3,3-비스-(에톡시카르보닐)-프로필, 4,4-비스-(에톡시카르보닐)-부틸, 및 5,5-비스-(에톡시카르보닐)-헥실로 이루어진 군으로부터 선택된다.

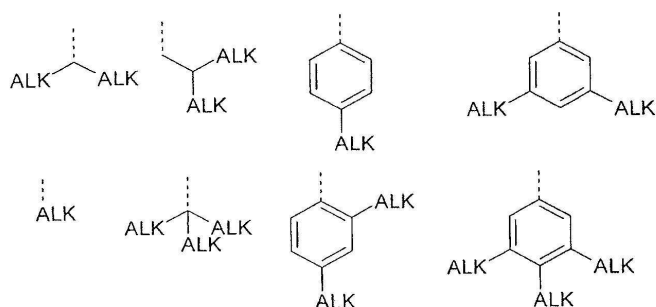
[0048] 티오알킬 기, 즉 하나의  $\text{CH}_2$  기가 -S- 로 대체된 것은 바람직하게는 직쇄 티오메틸 (- $\text{SCH}_3$ ), 1-티오에틸 (- $\text{SCH}_2\text{CH}_3$ ), 1-티오프로필 (= - $\text{SCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ ), 1- (티오부틸), 1-(티오펜틸), 1-(티오헥실), 1-(티오헵틸), 1-(티오옥틸), 1-(티오노닐), 1-(티오데실), 1-(티오운데실) 또는 1-(티오도데실) 이고, 여기서 바람직하게는  $\text{sp}^2$  혼성화 비닐 탄소 원자에 인접한  $\text{CH}_2$  기는 대체된다.

[0049] 플루오로알킬 기는 바람직하게는 퍼플루오로알킬,  $\text{C}_i\text{F}_{2i+1}$  (식 중, i 는 1 내지 15 의 정수임), 특히  $\text{CF}_3$ ,  $\text{C}_2\text{F}_5$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7$ ,  $\text{C}_4\text{F}_9$ ,  $\text{C}_5\text{F}_{11}$ ,  $\text{C}_6\text{F}_{13}$ ,  $\text{C}_7\text{F}_{15}$  또는  $\text{C}_8\text{F}_{17}$ , 매우 바람직하게는  $\text{C}_6\text{F}_{13}$ , 또는 부분 플루오린화 알킬, 특히 1,1-디플루오로알킬이고, 이들 모두는 직쇄 또는 분지형이다.

[0050] 알킬, 알콕시, 알케닐, 옥사알킬, 티오알킬, 카르보닐 및 카르보닐옥시 기는 비(非)키랄 또는 키랄 기일 수 있다. 특히 바람직한 키랄 기는 예를 들어 2-부틸 (=1-메틸프로필), 2-메틸부틸, 2-메틸펜틸, 3-메틸펜틸, 2-에틸헥실, 2-프로필펜틸, 특히 2-메틸부틸, 2-메틸부톡시, 2-메틸펜톡시, 3-메틸펜톡시, 2-에틸-헥소키, 1-메틸헥소키, 2-옥틸옥시, 2-옥사-3-메틸부틸, 3-옥사-4-메틸-펜틸, 4-메틸헥실, 2-헥실, 2-옥틸, 2-노닐, 2-데실, 2-도데실, 6-메톡시옥톡시, 6-메틸옥톡시, 6-메틸옥타노일옥시, 5-메틸헵틸옥시-카르보닐, 2-메틸부티릴옥시, 3-메틸발레로일옥시, 4-메틸헥사노일옥시, 2-클로로프로피오닐옥시, 2-클로로-3-메틸부티릴옥시, 2-클로로-4-메틸-발레릴-옥시, 2-클로로-3-메틸발레릴옥시, 2-메틸-3-옥사펜틸, 2-메틸-3-옥사-헥실, 1-메톡시프로필-2-옥시, 1-에톡시프로필-2-옥시, 1-프로폭시프로필-2-옥시, 1-부톡시프로필-2-옥시, 2-플루오로옥틸옥시, 2-플루오로데실옥시, 1,1,1-트리플루오로-2-옥틸옥시, 1,1,1-트리플루오로-2-옥틸, 2-플루오로메틸옥틸옥시이다. 매우 바람직한 것은 2-헥실, 2-옥틸, 2-옥틸옥시, 1,1,1-트리플루오로-2-헥실, 1,1,1-트리플루오로-2-옥틸 및 1,1,1-트리플루오로-2-옥틸옥시이다.

[0051] 바람직한 비키랄 분지형 기는 이소프로필, 이소부틸 (= 메틸프로필), 이소펜틸 (= 3-메틸부틸), tert.부틸, 이소프로폭시, 2-메틸-프로폭시 및 3-메틸부톡시이다.

[0052] 바람직한 구현예에서, 히드로카르빌 기는 서로 독립적으로 1차, 2차 또는 3차 알킬 또는 알콕시 (1 내지 30 개의 C 원자를 가짐) 로부터 선택되고, 여기서 하나 이상의 H 원자는 F, 또는 아릴, 아릴옥시, 헤테로아릴 또는 헤테로아릴옥시 (임의로 알킬화 또는 알콕시화되고, 4 내지 30 개의 고리 원자를 가짐) 로 임의로 대체된다. 이러한 유형의 매우 바람직한 기는 하기 식으로 이루어진 군으로부터 선택된다:



[0053]

[0054] [식 중, "ALK" 는 임의로 플루오린화되고, 바람직하게는 선형이고, 1 내지 20 개, 바람직하게는 1 내지 12 개의 C-원자, 3차 기의 경우 매우 바람직하게는 1 내지 9 개의 C 원자를 갖는 알킬 또는 알콕시를 의미하고, 파선은



이러한 기가 부착되어 있는 고리에 대한 연결을 의미함]. 이들 기 중에서 특히 바람직한 것은 모든 ALK 하위기가 동일한 것이다.

[0055]  $-CY^1=CY^2-$  는 바람직하게는  $-CH=CH-$ ,  $-CF=CF-$  또는  $-CH=C(CN)-$  이다.

[0056] 본원에 사용된 바, "할로젠" 은 F, Cl, Br 또는 I, 바람직하게는 F, Cl 또는 Br 을 포함한다.

[0057] 본 출원의 목적을 위해, 용어 "치환된" 은 하나 이상의 존재하는 수소가 본원에 정의된 기  $R^S$  로 대체되어 있는 것을 의미하기 위해 사용된다.

[0058]  $R^S$  는 각각의 경우 독립적으로 본원에 정의된 임의의 기  $R^T$ , 1 내지 40 개의 탄소 원자를 갖는 히드록아르빌로 이루어진 군으로부터 선택되고, 여기서 상기 히드록아르빌은 하나 이상의 기  $R^T$  및 1 내지 40 개의 탄소 원자를 갖는 히드록아르빌 (N, O, S, P, Si, Se, As, Te 또는 Ge 로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 헤테로원자 포함, 이때 N, O 및 S 가 바람직한 헤테로원자임) 로 추가로 치환될 수 있고, 여기서 상기 히드록아르빌은 하나 이상의 기  $R^T$  로 추가로 치환될 수 있다.

[0059]  $R^S$  로서 적합한 히드록아르빌의 바람직한 예는 각각의 경우 독립적으로 페닐, 하나 이상의 기  $R^T$  로 치환된 페닐, 알킬 및 하나 이상의 기  $R^T$  로 치환된 알킬로부터 선택될 수 있고, 여기서 알킬은 1 개 이상, 바람직하게는 5 개 이상, 보다 바람직하게는 10 개 이상, 가장 바람직하게는 15 개 이상의 탄소 원자를 갖고/갖거나 최대 40 개, 보다 바람직하게는 최대 30 개, 보다 더욱 바람직하게는 최대 25 개, 가장 바람직하게는 최대 20 개의 탄소 원자를 갖는다. 예를 들어,  $R^S$  로서 적합한 알킬이 또한 플루오린화 알킬, 즉 하나 이상의 수소가 플루오린으로 대체되어 있는 알킬, 및 퍼플루오린화 알킬, 즉 모든 수소가 플루오린으로 대체되어 있는 알킬을 포함한다는 것을 유의해야 한다.

[0060]  $R^T$  는 각각의 경우 독립적으로 F, Br, Cl,  $-CN$ ,  $-NC$ ,  $-NCO$ ,  $-NCS$ ,  $-OCN$ ,  $-SCN$ ,  $-C(O)NR^{000}$ ,  $-C(O)X^0$ ,  $-C(O)R^0$ ,  $-NH_2$ ,  $-NR^{000}$ ,  $-SH$ ,  $-SR^0$ ,  $-SO_3H$ ,  $-SO_2R^0$ ,  $-OH$ ,  $-OR^0$ ,  $-NO_2$ ,  $-SF_5$  및  $-SiR^{000}R^{000}$  로 이루어진 군으로부터 선택된다. 바람직한  $R^T$  는 F, Br, Cl,  $-CN$ ,  $-NC$ ,  $-NCO$ ,  $-NCS$ ,  $-OCN$ ,  $-SCN$ ,  $-C(O)NR^{000}$ ,  $-C(O)X^0$ ,  $-C(O)R^0$ ,  $-NH_2$ ,  $-NR^{000}$ ,  $-SH$ ,  $-SR^0$ ,  $-OH$ ,  $-OR^0$  및  $-SiR^{000}R^{000}$  로 이루어진 군으로부터 선택된다.

[0061]  $R^0$ ,  $R^{00}$  및  $R^{000}$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 H, F, 1 내지 40 개의 탄소 원자를 갖는 히드록아르빌로 이루어진 군으로부터 선택된다. 상기 히드록아르빌은 바람직하게는 5 개 이상, 보다 바람직하게는 10 개 이상, 가장 바람직하게는 15 개 이상의 탄소 원자를 갖는다. 상기 히드록아르빌은 바람직하게는 최대 30 개, 보다 더욱 바람직하게는 최대 25 개, 가장 바람직하게는 최대 20 개의 탄소 원자를 갖는다. 바람직하게는,  $R^0$ ,  $R^{00}$  및  $R^{000}$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 H, F, 알킬, 플루오린화 알킬, 알케닐, 알키닐, 페닐 및 플루오린화 페닐로 이루어진 군으로부터 선택된다. 보다 바람직하게는,  $R^0$ ,  $R^{00}$  및  $R^{000}$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 H, F, 알킬, 플루오린화, 바람직하게는 퍼플루오린화, 알킬, 페닐 및 플루오린화, 바람직하게는 퍼플루오린화, 페닐로 이루어진 군으로부터 선택된다.

[0062] 예를 들어,  $R^0$ ,  $R^{00}$  및  $R^{000}$  로서 적합한 알킬이 또한 퍼플루오린화 알킬, 즉 모든 수소가 플루오린으로 대체되어 있는 알킬을 포함한다는 것이 주목된다. 알킬의 예는 메틸, 에틸, n-프로필, 이소-프로필, n-부틸, 이소-부틸, tert-부틸 (또는 "t-부틸"), 펜틸, 헥실, 헵틸, 옥틸, 노닐, 데실, 운데실, 도데실, 트리데실, 테트라데실, 펜타데실, 헥사데실, 헵타데실, 옥타데실, 노나데실 및 에이코실 ( $-C_{20}H_{41}$ ) 로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.

[0063]  $X^0$  은 할로젠이다. 바람직하게는,  $X^0$  은 F, Cl 및 Br 로 이루어진 군으로부터 선택된다.

[0064] 본 출원은 랜덤 시퀀스로 제 1 단량체 단위  $M^1$  및 제 2 단량체 단위  $M^2$  를 포함하는, 본원에서 일반적으로 "실라잔-실록산 랜덤 공중합체" 로 지칭되는 중합체에 관한 것이다.



- [0065] 상기 제 1 단량체 단위  $M^1$  은 식 (I) 을 갖는다:
- [0066]  $[-SiR^1R^2-NR^5-]$  (I)
- [0067] [식 중,  $R^1$ ,  $R^2$  및  $R^5$  는 본원에 정의된 바와 같음].
- [0068] 상기 제 2 단량체 단위  $M^2$  는 식 (II) 를 갖는다:
- [0069]  $[-SiR^3R^4-[-O-SiR^3R^4-]_a-NR^5-]$  (II)
- [0070] [식 중,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  및  $a$  는 본원에 정의된 바와 같음].
- [0071]  $a$  는 1 이상 최대 10 의 정수이다. 예를 들어,  $a$  는 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 및 10 으로 이루어진 군 중 임의의 하나일 수 있다.
- [0072]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  는 각각의 경우 독립적으로 H 또는 카르빌 기, 바람직하게는 상기 정의된 바와 같은 카르빌 기 또는 H이다.
- [0073]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 카르빌 기는 각각의 경우 독립적으로 알킬, 치환된 알킬, 시클로알킬, 치환된 시클로알킬, 알케닐, 치환된 알케닐, 알카디에닐, 치환된 알카디에닐, 아릴, 및 치환된 아릴로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0074]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 보다 바람직한 카르빌 기는 각각의 경우 독립적으로 알킬, 치환된 알킬, 시클로알킬, 치환된 시클로알킬, 알케닐, 치환된 알케닐, 알카디에닐 및 치환된 알카디에닐로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0075]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 보다 더욱 바람직한 카르빌 기는 각각의 경우 독립적으로 알킬, 치환된 알킬, 알케닐, 치환된 알케닐, 알카디에닐 및 치환된 알카디에닐로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0076]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 보다 더욱 더 바람직한 카르빌 기는 각각의 경우 독립적으로 알킬 및 치환된 알킬로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0077]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 가장 바람직한 카르빌 기는 각각의 경우 독립적으로 알킬로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0078]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 알킬은 1 개 이상의 탄소 원자 및 최대 40 개의 탄소 원자, 바람직하게는 최대 30 개 또는 20 개의 탄소 원자, 보다 바람직하게는 최대 15 개의 탄소 원자, 보다 더욱 더 바람직하게는 최대 10 개의 탄소 원자, 가장 바람직하게는 최대 5 개의 탄소 원자를 갖는 알킬로부터 선택될 수 있다.
- [0079]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 1 개 이상의 탄소 원자 및 최대 5 개의 탄소 원자를 갖는 알킬은 예를 들어 독립적으로 메틸, 에틸, n-프로필, 이소-프로필, n-부틸, 이소-부틸, tert-부틸, n-펜틸, 이소-펜틸 (2,2-메틸-부틸) 및 네오-펜틸 (2,2-디메틸-프로필) 로 이루어진 군으로부터; 바람직하게는 메틸, 에틸, n-프로필 및 이소-프로필로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있고; 보다 바람직하게는 메틸 또는 에틸이고; 가장 바람직하게는 메틸이다.
- [0080]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 시클로알킬은 3 개 이상, 바람직하게는 4 개 이상, 가장 바람직하게는 5 개 이상의 탄소 원자를 갖는 시클로알킬로부터 선택될 수 있다.  $R^1$  및  $R^2$  에 있어서, 바람직한 시클로알킬은 최대 30 개, 바람직하게는 최대 25 개, 보다 바람직하게는 최대 20 개, 보다 더욱 바람직하게는 최대 15 개, 가장 바람직하게는 최대 10 개의 탄소 원자를 갖는 시클로알킬로부터 선택될 수 있다.
- [0081]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 시클로알킬의 바람직한 예는 시클로펜틸, 시클로헥실, 시클로헵틸 및 시클로옥틸로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0082]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 알케닐은 2 개 이상의 탄소 원자 및 최대 20 개, 보다 바람직하게는

최대 15 개, 보다 더욱 바람직하게는 최대 10 개, 가장 바람직하게는 최대 6 개의 탄소 원자를 갖는 알케닐로부터 선택될 수 있다. 상기 알케닐은 분자 내의 임의의 위치에 C=C 이중 결합을 포함할 수 있고; 예를 들어 C=C 이중 결합은 말단 또는 비(非)-말단일 수 있다.

- [0083]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 2 개 이상 및 최대 10 개의 탄소 원자를 갖는 알케닐은 비닐 또는 알릴, 바람직하게는 비닐일 수 있다.
- [0084]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 알카디에닐은 4 개 이상 및 최대 20 개, 보다 바람직하게는 최대 15 개, 보다 더욱 바람직하게는 최대 10 개, 가장 바람직하게는 최대 6 개의 탄소 원자를 갖는 알카디에닐로부터 선택될 수 있다. 상기 알케닐은 분자 내의 임의의 위치에 2 개의 C=C 이중 결합을 포함할 수 있고, 단 2 개의 C=C 이중 결합은 서로 인접하지 않고; 예를 들어 C=C 이중 결합은 말단 또는 비-말단일 수 있다.
- [0085]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 4 개 이상 및 최대 6 개의 탄소 원자를 갖는 알카디에닐은 예를 들어 부타디엔 또는 헥사디엔일 수 있다.
- [0086]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 바람직한 아릴은 6 개 이상의 탄소 원자, 및 최대 30 개, 바람직하게는 최대 24 개의 탄소 원자를 갖는 아릴로부터 선택될 수 있다.
- [0087]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  및  $R^5$  에 있어서, 아릴의 바람직한 예는 페닐, 나프틸, 페난트레닐, 안트라세닐, 테트라세닐, 벤즈[a]안트라세닐, 펜타세닐, 크리세닐, 벤조[a]피레닐, 아주레닐, 페릴레닐, 인데닐, 플루오레닐 및 이들 중 임의의 것으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있고, 여기서 하나 이상 (예를 들어, 2, 3 또는 4 개) 의 CH 기는 N 으로 대체되어 있다. 이 중에서, 페닐, 나프틸 및 이들 중 임의의 것, 여기서 하나 이상 (예를 들어, 2, 3 또는 4 개) 의 CH 기는 N 으로 대체되어 있다. 페닐이 가장 바람직하다.
- [0088] 바람직하게는, 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체는 GPC 에 의해 측정된 분자량  $M_w$  가 1,000 g/mol 이상, 보다 바람직하게는 2,000 g/mol 이상, 보다 더욱 바람직하게는 3,000 g/mol 이상이다.
- [0089] 요구되는 경우, 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체의 분자량은 개질될 수 있고, 바람직하게는 플루오라이드-촉매화 가교 또는 염기-촉매화 가교에 의해 증가될 수 있다. 이러한 방법은 당업자에게 잘 알려져 있다. 추가의 설명이 실시예에서 확인될 수 있다.
- [0090] 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체는 현재 사용되는 표준 물질, 예컨대 페닐실리콘 또는 오르가노폴리실라잔에 비해 탁월한 온도 저항성 및/또는 수명을 특징으로 한다. 이론에 구속되지 않으면서, 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체의 개선된 성능은 강성 영역의 형성을 방지하여 크랙, 특히 마이크로-크랙의 형성의 감소를 유도하는 것으로 여겨지는 이의 특정한 랜덤 구조로 인한 것이라고 여겨진다.
- [0091] 본 출원은 또한 하나 이상의 오르가노실란, 아민 및 하나 이상의 오르가노실록산을 반응시킴으로써 본원에 정의된 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 단계를 포함하는 방법에 관한 것이다.
- [0092] 하나 이상의 오르가노실란은 2 개의 할로젠 말단 기를 포함하고, 즉  $\alpha$ ,  $\omega$ -디할로-오르가노실란이다. 말단 기는 동일하거나 상이할 수 있고; 바람직하게는 동일하다. 바람직하게는, 2 개의 할로젠 말단 기는 모두 Cl 이다.
- [0093] 바람직하게는, 상기 오르가노실란은 식 (I-a) 를 갖는다:
- [0094]  $X^1-SiR^1R^2-X^2(I-a)$
- [0095] [식 중,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $X^1$  및  $X^2$  는 본원에 정의된 바와 같음].
- [0096]  $X^1$  및  $X^2$  는 각각의 경우 서로 독립적으로 Cl, Br, I 로 이루어진 군으로부터 선택된다. 바람직하게는,  $X^1$  및  $X^2$  는 Cl 이다.
- [0097] 오르가노실록산은 2 개의 할로젠 말단 기, 바람직하게는 2 개의 Cl 말단 기, 또는 2 개의 히드록시 (-OH) 말단 기를 포함한다.
- [0098] 바람직하게는, 상기 오르가노실록산은 식 (II-a) 를 갖는다:

- [0099]  $X^3-[\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_a-\text{SiR}^3\text{R}^4-X^4$  (II-a)
- [0100] [식 중, a,  $X^3$ ,  $X^4$ ,  $R^3$  및  $R^4$  는 본원에 정의된 바와 같음].
- [0101] a 는 1 이상 및 최대 10 의 정수이다. 예를 들어, a 는 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 및 10 으로 이루어진 군 중 임의의 하나일 수 있다.
- [0102]  $X^3$  및  $X^4$  는 동일하고, 각각의 경우 독립적으로 바람직하게는 Cl, Br, I 및 OH 로 이루어진 군으로부터 선택되고, 보다 바람직하게는 Cl 또는 OH 이다.
- [0103] 바람직하게는, 상기 아민은 식 (III) 을 갖는다:
- [0104]  $\text{NH}_2\text{R}^5$  (III)
- [0105] [식 중,  $R^5$  는 본원에 정의된 바와 같다. 바람직한  $R^5$  는 H 또는 메틸이고, 가장 바람직하게는 H 임].
- [0106] 상기 아민이 또한 상이한 기  $R^5$  와 아민의 블렌드일 수 있다는 것이 주목된다.
- [0107] 본 출원에 따른 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 바람직한 방법은 예를 들어 하기 경로 (A) 및 (B) 로 나타낼 수 있다:
- [0108]  $n \text{Cl}_2\text{SiR}^1\text{R}^2 + m \text{HO}-[\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_a-\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{OH} + 2m+3(n-m) \text{NH}_2\text{R}^5$
- [0109]  $\rightarrow -[\text{SiR}^1\text{R}^2-\text{NR}^5]_{n-m}-[\text{SiR}^1\text{R}^2-\text{O}-[\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_a-\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_m- + 2n \text{NR}^5\text{H}_3\text{Cl}$  (A) ( $n \geq m$  임),
- [0110]  $n \text{Cl}_2\text{SiR}^1\text{R}^2 + m \text{Cl}-[\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_a-\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{Cl} + (3n+3m) \text{NH}_2\text{R}^5$
- [0111]  $\rightarrow -[\text{SiR}^1\text{R}^2-\text{NR}^5]_n-[-[\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{O}]_a-\text{SiR}^3\text{R}^4-\text{NR}^5]_m- + (2n+2m) \text{NR}^5\text{H}_3\text{Cl}$  (B)
- [0112] 오르가노실란, 아민 및 오르가노실록산의 반응 조건은 특히 제한되어 있지 않다. 그러나, 바람직한 것은, 예를 들어 온도 및 용매에 대해, 조건의 특정한 범위 내에서 반응을 실시하는 것이다. 바람직하게는, 상기 용매는 비양성자성 유기 용매, 예컨대 탄화수소, 방향족 화합물, 에스테르 또는 에테르이다. 상기 용매의 예는 n-헵탄, 시클로헥산, 자일렌, 피리딘, 테트라히드로푸란, 1,4-디옥산, 메틸-아세테이트 또는 에틸-아세테이트이다.
- [0113] 바람직하게는, 본 반응은  $-30^\circ\text{C}$  이상 및 최대  $120^\circ\text{C}$ , 보다 바람직하게는  $-20^\circ\text{C}$  이상 및 최대  $110^\circ\text{C}$ , 가장 바람직하게는  $-10^\circ\text{C}$  이상 및 최대  $100^\circ\text{C}$  의 온도에서 수행된다.
- [0114] 또 다른 바람직한 합성 방법은 액체 아민, 예를 들어 액체 암모니아에서 반응을 수행하는 것이다. 이때, 아민은 동시에 용매 및 반응물이다. 액체 암모니아가 사용되는 경우, 바람직한 반응 조건은  $-20^\circ\text{C}$  이상 및 최대  $40^\circ\text{C}$  의 온도 및 최대 20 bar 의 압력이다.
- [0115] 본 출원은 또한 전자 소자의 제조 방법에 관한 것이고, 상기 방법은 오르가노실란, 아민 및 오르가노실록산을 반응시켜 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 단계 이외에, 이와 같이 수득된 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 조성물을 제공하고, 이를 전자 소자의 기판에 적용하는 단계를 포함한다.
- [0116] 바람직하게는, 전자 소자의 제조 방법은 이에 따라 하기 단계를 포함한다:
- [0117] (a) 오르가노실란, 암모니아 또는 아민 및 오르가노실록산을 반응시킴으로써 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 수득하는 단계,
- [0118] (b) 단계 (a) 에서 수득된 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 조성물을 제공하는 단계, 및
- [0119] (c) 이후, 상기 조성물을 기판 상에 침적시키는 단계.
- [0120] 바람직하게는, 실라잔-실록산 랜덤 공중합체 이외에, 상기 조성물은 발광 물질, 점도 조정제, 계면활성제, 필름 형성에 영향을 주는 첨가제, 증발 거동에 영향을 주는 첨가제, 가교제 및 용매로 이루어진 군으로부터 선택되는

하나 이상을 추가로 포함한다. 가장 바람직하게는, 상기 조성물은 발광 물질을 추가로 포함한다.

[0121] 바람직하게는, 상기 발광 물질은 포스포르, 즉 발광 특성을 갖는 물질이다. 용어 "발광" 은 인광뿐 아니라 형광 모두를 포함하는 것으로 의도된다.

[0122] 본 출원의 목적을 위해, 포스포르의 유형은 특히 제한되지 않는다. 적합한 포스포르는 당업자에게 잘 알려져 있고 상업적 공급원으로부터 쉽게 얻을 수 있다. 본 출원의 목적을 위해, 용어 "포스포르" 는 전자기 스펙트럼 중 한 파장을 흡수하고, 상이한 파장에서 방출하는 물질을 포함하는 것으로 의도된다.

[0123] 적합한 포스포르의 예는 하나 이상의 방사 중심을 포함하는 입자 형태의 무기 형광 물질이다. 상기 방사 중심은, 예를 들어 바람직하게는 희토류 원소, 전이 금속 원소, 주족 원소 및 이들 중 어느 것의 임의의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되는 이온 또는 원자인, 소위 활성자의 사용으로 형성될 수 있다. 적합한 희토류 원소의 예는 La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 적합한 전이 금속 원소의 예는 Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Au 및 Zn 으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 적합한 주족 원소의 예는 Na, Tl, Sn, Pb, Sb 및 Bi 로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 적합한 포스포르의 예는 석류석, 실리케이트, 오르토실리케이트, 티오갈레이트, 슬파이드, 니트라이드, 규소-기반 옥시니트라이드, 니트리도실리케이트, 니트리도알루미늄실리케이트, 옥소니트리도실리케이트, 옥소니트리도알루미늄실리케이트 및 희토류 도핑된 시알론을 기반으로 하는 포스포르를 포함한다.

[0124] 적합한 황색 포스포르는, 예를 들어 Ce 로 도핑된  $(\text{Gd}, \text{Y})_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}$ , 예컨대 시판 세륨-도핑된 이트륨 알루미늄 석류석 (흔히 "Ce:YAG" 또는 "YAG:Ce" 로 약칭됨); 또는  $\text{Th}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_{12}:\text{Ce}$  (TAG) ( $0 \leq x \leq 3$ ) (M 은 Y, Gd, La 및 Lu 로 이루어진 군으로부터 선택됨); 또는  $\text{Sr}_{2-x-y}\text{Ba}_x\text{Ca}_y\text{SiO}_4:\text{Eu}$  ( $0 \leq x \leq 2$ ; 및  $0 \leq y \leq 2$ ) 를 포함하거나 이를 기반으로 할 수 있다.

[0125] 녹색 포스포르의 예는  $\text{SrGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ ;  $\text{Sr}_{2-y}\text{Ba}_y\text{SiO}_4:\text{Eu}$  ( $0 \leq y \leq 2$ ) 및/또는  $\text{SrSi}_2\text{O}_2\text{N}_2:\text{Eu}$  의 군으로부터 선택될 수 있다.

[0126] 적합한 포스포르의 예는 하기로부터 선택될 수 있다:  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{BaSi}_2\text{O}_5:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{F}_2:\text{Eu}^{2+}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ),  $\text{BaSrMgSi}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{BaTiP}_2\text{O}_7$ ,  $(\text{Ba}, \text{Ti})_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Ti}$ ,  $\text{Ba}_3\text{WO}_6:\text{U}$ ,  $\text{BaY}_2\text{F}_8:\text{Er}^{3+}, \text{Yb}^{3+}$ ,  $\text{Be}_2\text{SiO}_4:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ,  $\text{CaAl}_2\text{O}_4:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaLa}_4\text{O}_7:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaAl}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaAl}_2\text{O}_4:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaAl}_4\text{O}_7:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaAl}_2\text{O}_4:\text{Tb}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Br}:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Cl}:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Cl}:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaB}_2\text{O}_4:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{B}_2\text{O}_5:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaB}_2\text{O}_4:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaB}_2\text{P}_2\text{O}_9:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_5\text{B}_2\text{SiO}_{10}:\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{Al}_{12}\text{O}_{19}:\text{Ce}^{3+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{Ba}_3(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{SiO}_2$  중  $\text{CaBr}_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{SiO}_2$  중  $\text{CaCl}_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{SiO}_2$  중  $\text{CaCl}_2:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Ce}^{3+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Ce}^{3+}, \text{Tb}^{3+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{U}$ ,  $\text{CaGa}_2\text{O}_4:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaGa}_4\text{O}_7:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaGeO}_3:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{SiO}_2$  중  $\text{CaI}_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{SiO}_2$  중  $\text{CaI}_2:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaLaBO}_4:\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{CaLaB}_3\text{O}_7:\text{Ce}^{3+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{La}_2\text{BO}_{6.5}:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaMoO}_4$ ,  $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Bi}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Cd}^{2+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Cu}^{+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{Na}^{+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Sm}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Tb}^{3+}$ ,  $\text{CaO}:\text{Tl}$ ,  $\text{CaO}:\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\alpha\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Sn}^{2+}$ ,  $\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}:\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}:\text{Sn}^{2+}$ ,  $\alpha\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaP}_2\text{O}_6:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\alpha\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\alpha\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Sn}^{2+}$ ,  $\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Sn}^{2+}$ ,  $\beta\text{-Ca}_2\text{P}_2\text{O}_7:\text{Sn}, \text{Mn}$ ,  $\alpha\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2:\text{Tr}$ ,  $\text{CaS}:\text{Bi}^{3+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Bi}^{3+}, \text{Na}$ ,  $\text{CaS}:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Cu}^{+}, \text{Na}^{+}$ ,  $\text{CaS}:\text{La}^{3+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Bi}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Ce}^{3+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Eu}^{2+}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaSO}_4:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Pb}^{2+}, \text{Cl}$ ,  $\text{CaS}:\text{Pb}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Pr}^{3+}, \text{Pb}^{2+}, \text{Cl}$ ,  $\text{CaS}:\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{CaS}:\text{Sb}^{3+}, \text{Na}$ ,

CaS:Sm<sup>3+</sup>, CaS:Sn<sup>2+</sup>, CaS:Sn<sup>2+</sup>,F, CaS:Tb<sup>3+</sup>, CaS:Tb<sup>3+</sup>,Cl, CaS:Y<sup>3+</sup>, CaS:Yb<sup>2+</sup>, CaS:Yb<sup>2+</sup>,Cl, CaSiO<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Ca<sub>3</sub>SiO<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Ca<sub>3</sub>SiO<sub>4</sub>Cl<sub>2</sub>:Pb<sup>2+</sup>, CaSiO<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>, CaSiO<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>,Pb, CaSiO<sub>3</sub>:Pb<sup>2+</sup>, CaSiO<sub>3</sub>:Pb<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, CaSiO<sub>3</sub>:Ti<sup>4+</sup>, CaSr<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Bi<sup>3+</sup>, β-(Ca,Sr)<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn<sup>2+</sup>Mn<sup>2+</sup>, CaTi<sub>0.9</sub>Al<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub>:Bi<sup>3+</sup>, CaTiO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, CaTiO<sub>3</sub>:Pr<sup>3+</sup>, Ca<sub>5</sub>(VO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cl, CaWO<sub>4</sub>, CaWO<sub>4</sub>:Pb<sup>2+</sup>, CaWO<sub>4</sub>:W, Ca<sub>3</sub>WO<sub>6</sub>:U, CaYAlO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, CaYBO<sub>4</sub>:Bi<sup>3+</sup>, CaYBO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, CaYB<sub>0.8</sub>O<sub>3.7</sub>:Eu<sup>3+</sup>, CaY<sub>2</sub>ZrO<sub>6</sub>:Eu<sup>3+</sup>, (Ca,Zn,Mg)<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn, CeF<sub>3</sub>, (Ce,Mg)BaAl<sub>11</sub>O<sub>18</sub>:Ce, (Ce,Mg)SrAl<sub>11</sub>O<sub>18</sub>:Ce, CeMgAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>:Ce:Tb, Cd<sub>2</sub>B<sub>6</sub>O<sub>11</sub>:Mn<sup>2+</sup>, CdS:Ag<sup>+</sup>,Cr, CdS:In, CdS:In, CdS:In,Te, CdS:Te, CdWO<sub>4</sub>, CsF, CsI, CsI:Na<sup>+</sup>, CsI:Tl, (ErCl<sub>3</sub>)<sub>0.25</sub>(BaCl<sub>2</sub>)<sub>0.75</sub>, GaN:Zn, Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Cr<sup>3+</sup>, Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Cr,Ce, GdNbO<sub>4</sub>:Bi<sup>3+</sup>, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Eu<sup>3+</sup>, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>Pr<sup>3+</sup>, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Pr,Ce,F, Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb<sup>3+</sup>, Gd<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce<sup>3+</sup>, KAl<sub>11</sub>O<sub>17</sub>:Tl<sup>+</sup>, KGa<sub>11</sub>O<sub>17</sub>:Mn<sup>2+</sup>, K<sub>2</sub>La<sub>2</sub>Ti<sub>3</sub>O<sub>10</sub>:Eu, KMgF<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>, KMgF<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>, K<sub>2</sub>SiF<sub>6</sub>:Mn<sup>4+</sup>, LaAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LaAlB<sub>2</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LaAlO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LaAlO<sub>3</sub>:Sm<sup>3+</sup>, LaAsO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LaBr<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, LaBO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, (La,Ce,Tb)PO<sub>4</sub>:Ce:Tb, LaCl<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Bi<sup>3+</sup>, LaOBr:Tb<sup>3+</sup>, LaOBr:Tm<sup>3+</sup>, LaOCl:Bi<sup>3+</sup>, LaOCl:Eu<sup>3+</sup>, LaOF:Eu<sup>3+</sup>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Pr<sup>3+</sup>, La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb<sup>3+</sup>, LaPO<sub>4</sub>:Ce<sup>3+</sup>, LaPO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LaSiO<sub>3</sub>Cl:Ce<sup>3+</sup>, LaSiO<sub>3</sub>Cl:Ce<sup>3+</sup>,Tb<sup>3+</sup>, LaVO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, La<sub>2</sub>W<sub>3</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LiAlF<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, LiAl<sub>5</sub>O<sub>8</sub>:Fe<sup>3+</sup>, LiAlO<sub>2</sub>:Fe<sup>3+</sup>, LiAlO<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, LiAl<sub>5</sub>O<sub>8</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Li<sub>2</sub>CaP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Ce<sup>3+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, LiCeBa<sub>4</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>14</sub>:Mn<sup>2+</sup>, LiCeSrBa<sub>3</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>14</sub>:Mn<sup>2+</sup>, LiInO<sub>2</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LiInO<sub>2</sub>:Sm<sup>3+</sup>, LiLaO<sub>2</sub>:Eu<sup>3+</sup>, LuAlO<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, (Lu,Gd)<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Lu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Ce<sup>3+</sup>, LuTaO<sub>4</sub>:Nb<sup>5+</sup>, Lu<sub>1-x</sub>Y<sub>x</sub>AlO<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup> (0 ≤ x ≤ 1), MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, MgSrAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Ce, MgB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, MgBa<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn<sup>2+</sup>, MgBa<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:U, MgBaP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgBaP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, MgBa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgBa(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Mg<sub>3</sub>Ca<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgCaP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>2</sub>Ca(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Mg<sub>2</sub>Ca(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, MgCeAl<sub>10</sub>O<sub>19</sub>:Tb<sup>3+</sup>, Mg<sub>4</sub>(F)GeO<sub>6</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>4</sub>(F)(Ge,Sn)O<sub>6</sub>:Mn<sup>2+</sup>, MgF<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>3</sub>Ge<sub>2</sub>O<sub>11</sub>F<sub>2</sub>:Mn<sup>4+</sup>, MgS:Eu<sup>2+</sup>, MgSiO<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>3</sub>SiO<sub>3</sub>F<sub>4</sub>:Ti<sup>4+</sup>, MgSO<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgSO<sub>4</sub>:Pb<sup>2+</sup>, MgSrBa<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgSrP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>, MgSr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>4</sub>:Sn<sup>2+</sup>, MgSr<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, Mg<sub>2</sub>Sr(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Mg<sub>2</sub>TiO<sub>4</sub>:Mn<sup>4+</sup>, MgWO<sub>4</sub>, MgYBO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Na<sub>3</sub>Ce(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Tb<sup>3+</sup>, NaI:Tl, Na<sub>1.23</sub>K<sub>0.42</sub>Eu<sub>0.12</sub>TiSi<sub>4</sub>O<sub>11</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Na<sub>1.23</sub>K<sub>0.42</sub>Eu<sub>0.12</sub>TiSi<sub>5</sub>O<sub>13</sub>·xH<sub>2</sub>O:Eu<sup>3+</sup>, Na<sub>1.29</sub>K<sub>0.46</sub>Er<sub>0.08</sub>TiSi<sub>4</sub>O<sub>11</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Na<sub>2</sub>Mg<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>10</sub>:Tb, Na(Mg<sub>2-x</sub>Mn<sub>x</sub>)LiSi<sub>4</sub>O<sub>10</sub>F<sub>2</sub>:Mn (0 ≤ x ≤ 2), NaYF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>, NaYO<sub>2</sub>:Eu<sup>3+</sup>, P46(70%) + P47 (30%), SrAl<sub>12</sub>O<sub>19</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Mn<sup>2+</sup>, SrAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrAl<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>3+</sup>, SrAl<sub>12</sub>O<sub>19</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrAl<sub>2</sub>S<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>2</sub>B<sub>5</sub>O<sub>9</sub>Cl:Eu<sup>2+</sup>, SrB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>(F,Cl,Br), SrB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Pb<sup>2+</sup>, SrB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Pb<sup>2+</sup>, Mn<sup>2+</sup>, SrB<sub>8</sub>O<sub>13</sub>:Sm<sup>2+</sup>, Sr<sub>x</sub>Ba<sub>y</sub>Cl<sub>z</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>4-z/2</sub>:Mn<sup>2+</sup>,Ce<sup>3+</sup>, SrBaSiO<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SiO<sub>2</sub> ≙ Sr(Cl,Br,I)<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SiO<sub>2</sub> ≙ SrCl<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>Cl(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>:Eu, Sr<sub>w</sub>F<sub>x</sub>B<sub>4</sub>O<sub>6.5</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>w</sub>F<sub>x</sub>B<sub>y</sub>O<sub>z</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Sm<sup>2+</sup>, SrF<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrGa<sub>12</sub>O<sub>19</sub>:Mn<sup>2+</sup>, SrGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>:Ce<sup>3+</sup>, SrGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>:Pb<sup>2+</sup>, SrIn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Pr<sup>3+</sup>, Al<sup>3+</sup>, (Sr,Mg)<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn, SrMgSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>2</sub>MgSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>3</sub>MgSi<sub>2</sub>O<sub>8</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrMoO<sub>4</sub>:U, SrO·3B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Cl, β-SrO·3B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Pb<sup>2+</sup>, β-SrO·3B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Pb<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, α-SrO·3B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Sm<sup>2+</sup>, Sr<sub>6</sub>P<sub>5</sub>BO<sub>20</sub>:Eu, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cl:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cl:Eu<sup>2+</sup>,Pr<sup>3+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cl:Mn<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>Cl:Sb<sup>3+</sup>, Sr<sub>2</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu<sup>2+</sup>, β-Sr<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F:Mn<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F:Sb<sup>3+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F:Sb<sup>3+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>F:Sn<sup>2+</sup>, Sr<sub>2</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Sn<sup>2+</sup>, β-Sr<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn<sup>2+</sup>, β-Sr<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Sn<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>(Al), SrS:Ce<sup>3+</sup>, SrS:Eu<sup>2+</sup>, SrS:Mn<sup>2+</sup>, SrS:Cu<sup>+</sup>,Na, SrSO<sub>4</sub>:Bi, SrSO<sub>4</sub>:Ce<sup>3+</sup>, SrSO<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrSO<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>,Mn<sup>2+</sup>, Sr<sub>5</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>Cl<sub>6</sub>:Eu<sup>2+</sup>, Sr<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Eu<sup>2+</sup>, SrTiO<sub>3</sub>:Pr<sup>3+</sup>, SrTiO<sub>3</sub>:Pr<sup>3+</sup>,Al<sup>3+</sup>, Sr<sub>3</sub>WO<sub>6</sub>:U, SrY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, ThO<sub>2</sub>:Eu<sup>3+</sup>, ThO<sub>2</sub>:Pr<sup>3+</sup>, ThO<sub>2</sub>:Tb<sup>3+</sup>, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Bi<sup>3+</sup>, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup>, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup>,Mn, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup>,Tb<sup>3+</sup>, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup>, YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup>,Cr<sup>3+</sup>,

YAl<sub>3</sub>B<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Th<sup>4+</sup>, Ce<sup>3+</sup>, Mn<sup>2+</sup>, YAlO<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Cr<sup>3+</sup>, YAlO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>9</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Mn<sup>4+</sup>, YAlO<sub>3</sub>:Sm<sup>3+</sup>, YAlO<sub>3</sub>:Tb<sup>3+</sup>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Tb<sup>3+</sup>, YAsO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, YBO<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, YBO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, YF<sub>3</sub>:Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>, YF<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>, YF<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Th<sup>4+</sup>, YF<sub>3</sub>:Tm<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>, (Y,Gd)BO<sub>3</sub>:Eu, (Y,Gd)BO<sub>3</sub>:Tb, (Y,Gd)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>1.34</sub>Gd<sub>0.60</sub>O<sub>3</sub>(Eu,Pr), Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Bi<sup>3+</sup>, YOBr:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Ce, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Er<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>(YOE), Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Tb<sup>3+</sup>, YOCl:Ce<sup>3+</sup>, YOCl:Eu<sup>3+</sup>, YOF:Eu<sup>3+</sup>, YOF:Tb<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Ho<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Eu<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Pr<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb<sup>3+</sup>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sup>3+</sup>, YPO<sub>4</sub>:Ce<sup>3+</sup>, YPO<sub>4</sub>:Ce<sup>3+</sup>, Tb<sup>3+</sup>, YPO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, YPO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Th<sup>4+</sup>, YPO<sub>4</sub>:V<sup>5+</sup>, Y(P,V)O<sub>4</sub>:Eu, Y<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce<sup>3+</sup>, YTaO<sub>4</sub>, YTaO<sub>4</sub>:Nb<sup>5+</sup>, YVO<sub>4</sub>:Dy<sup>3+</sup>, YVO<sub>4</sub>:Eu<sup>3+</sup>, ZnAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnBa<sub>2</sub>S<sub>3</sub>:Mn<sup>2+</sup>, (Zn,Be)<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Zn<sub>0.4</sub>Cd<sub>0.6</sub>S:Ag, Zn<sub>0.6</sub>Cd<sub>0.4</sub>S:Ag, (Zn,Cd)S:Ag, Cl, (Zn,Cd)S:Cu, ZnF<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, ZnGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Zn<sub>2</sub>GeO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, (Zn,Mg)F<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnMg<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, (Zn,Mg)<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, ZnO:Al<sup>3+</sup>, Ga<sup>3+</sup>, ZnO:Bi<sup>3+</sup>, ZnO:Ga<sup>3+</sup>, ZnO:Ga, ZnO-CdO:Ga, ZnO:S, ZnO:Se, ZnO:Zn, ZnS:Ag<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, ZnS:Ag,Cu,Cl, ZnS:Ag,Ni, ZnS:Au,In, ZnS-CdS (25-75), ZnS-CdS (50-50), ZnS-CdS (75-25), ZnS-CdS:Ag,Br,Ni, ZnS-CdS:Ag<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, ZnS-CdS:Cu,Br, ZnS-CdS:Cu,I, ZnS:Cl<sup>-</sup>, ZnS:Eu<sup>2+</sup>, ZnS:Cu, ZnS:Cu<sup>+</sup>, Al<sup>3+</sup>, ZnS:Cu<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>, ZnS:Cu,Sn, ZnS:Eu<sup>2+</sup>, ZnS:Mn<sup>2+</sup>, ZnS:Mn,Cu, ZnS:Mn<sup>2+</sup>, Te<sup>2+</sup>, ZnS:P, ZnS:P<sup>3-</sup>, Cl<sup>-</sup>, ZnS:Pb<sup>2+</sup>, ZnS:Pb<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>, ZnS:Pb,Cu, Zn<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, As<sup>5+</sup>, Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn,Sb<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Mn<sup>2+</sup>, P, Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>:Ti<sup>4+</sup>, ZnS:Sn<sup>2+</sup>, ZnS:Sn,Ag, ZnS:Sn<sup>2+</sup>, Li<sup>+</sup>, ZnS:Te,Mn, ZnS-ZnTe:Mn<sup>2+</sup>, ZnSe:Cu<sup>+</sup>, Cl 또는 ZnWO<sub>4</sub>.

- [0127] 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 상기 조성물에 포함된 용매는 특히 제한되지 않고, 단 상기 조성물의 성분은 상기 용매에서 특정한 용해도를 갖는다. 바람직하게는, 상기 용매는 비극성 또는 극성 비양성자성, 바람직하게는 유기 용매일 수 있다.
- [0128] 적합한 용매의 바람직한 예는 에테르, 시클릭 에테르, 에스테르, 탄화수소, 방향족 용매 및 이들 중 어느 것의 임의의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0129] 에테르의 바람직한 예는 1-메톡시-2-프로필아세테이트 및 디-n-부틸에테르이다.
- [0130] 시클릭 에테르의 바람직한 예는 테트라히드로푸란 (THF) 이다.
- [0131] 에스테르의 바람직한 예는 에틸-아세테이트 및 n-부틸-아세테이트이다.
- [0132] 탄화수소의 바람직한 예는 n-헵탄 및 시클로헥산이다.
- [0133] 방향족 용매의 바람직한 예는 톨루엔, 오르토-자일렌, 메타-자일렌, 파라-자일렌 및 이들 중 어느 것의 임의의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0134] 상기 기판은 상기 정의된 바와 같은 본 출원의 조성물이 침적될 수 있는 임의의 층 또는 물질일 수 있다. 적합한 기판은 물질 또는 형태에 관해 특히 제한되지 않는다. 예시적 기판은 LED 칩이고, 즉 본 출원의 조성물은 LED 칩 상에 직접 적용된다.
- [0135] 상기 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 조성물은 임의의 적합한 방법, 예를 들어 공업용 디스펜싱 시스템으로 기판 상에 침적될 수 있다.
- [0136] 기판이 LED 칩인 경우, 조성물은 바람직하게는 상기 조성물의 총 중량에 대해 적어도 90 wt% 또는 95 wt% 또는 99 wt% 의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체 및 발광 물질을 포함하거나, 이로 이루어지고, LED 칩에 직접 적용된다. 적합한 조성물은 바람직하게는 시험 방법에서 기재된 바에 따라 측정된 점도가 적어도 100 mPa · s 및 최대 100,000 mPa · s 이다. 기판 상에 조성물의 침적 중, 조성물의 점도는, 조성물이 침적되는 온도 (예를 들어 10℃ 내지 60℃) 를 변경함으로써 임의로 변형될 수 있다.
- [0137] 실라잔-실록산 랜덤 공중합체 및 발광 물질을 직접 LED 칩에 적용하는 것의 또 다른 가능성은 스프레이 코팅에 의한 것이다. 전형적인 스프레이 코팅 제형은 2-10 wt% 실라잔-실록산 랜덤 공중합체, 10-25 wt% 발광 물질, 63-88 wt% 용매 및 0-2 wt% 기타 첨가제로 이루어지고, 스프레이 코팅 제형의 성분의 각각의 중량 백분율은 합하여 100 wt% 이하이다. 용매는 순수 용매 또는 여러 용매의 혼합물, 통상적으로 하나 이상의 고비등



및 하나의 저비등 용매의 혼합물이다.

- [0138] 대안적으로, 실라잔-실록산 랜덤 공중합체 및 발광 물질은 임의의 기타 적합한 방법, 예컨대 스크린 프린팅 또는 잉크-젯 프린팅에 의해 적용될 수 있다.
- [0139] LED 에 적용된 후, 실라잔-실록산 랜덤 공중합체는 바람직하게는 가열 단계에 적용되고, 여기서 물질은 2 내지 48 h, 바람직하게는 4 내지 48 h 의 기간 동안, 100℃ 내지 250℃, 바람직하게는 150℃ 내지 220℃ 의 온도로 가열된다.
- [0140] 대안적으로, LED 에 적용된 후, 실라잔-실록산 랜덤 공중합체는 기후 챔버에서 가수분해 단계에 적용될 수 있다. 기후 챔버에서 바람직한 가수분해 조건은 70-90℃ 및 상대 습도 70-90% 에서 4-24 h 이다.
- [0141] 본 방법은 다양한 전자 소자에 적용될 수 있다. 바람직하게는, 상기 전자 소자는 전계-효과 트랜지스터 (FET), 박막 트랜지스터 (TFT), 집적 회로 (IC), 논리 회로, 캐패시터, RFID 태그 (전파 식별 태그, radio frequency identification tag), 발광 다이오드 (OLED), 광전지 (PV), 광검출기, 레이저 다이오드, 광전도체, 전자사진 장치 (electrophotographic device), 유기 기억 소자, 센서 소자, 전하 주입 층, 쇼트키 (Schottky) 다이오드, 평면화 층, 대전방지 필름, 전도성 기판 및 전도성 패턴으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 가장 바람직하게는, 상기 전자 소자는 발광 다이오드이다.
- [0142] 상기 발광 다이오드는 예를 들어 액정 디스플레이, 신호등, 아웃도어 디스플레이, 광고판용 백라이트 (단지 몇몇의 비제한적 예시임) 로 사용될 수 있다.
- [0143] 본 발명에 따른 전형적인 LED 패키지는 LED 칩 및/또는 리드 프레임 (lead frame) 및/또는 골드 와이어 (gold wire) 및/또는 솔더 (solder) (플립 칩) 및/또는 충전 물질, 컨버터, 1차 및 2차 옵틱, 및 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체를 포함하는 캡슐화 물질을 포함한다. 캡슐화 물질은 외부 환경적 영향에 대한 표면 보호 물질의 기능을 갖고, 장기간 신뢰성, 특히 에이징 안정성을 보장한다. 예를 들어, 본 발명에 있어서, 발광 다이오드는 US 6,274,924 및 6,204,523 에 기재된 것과 유사하게 구성된다.
- [0144] **시험 방법**
- [0145] 중합체의 분자량을 폴리스티렌 표준물에 대해 GPC 에 의해 측정하였다. 용리액으로서, 테트라히드로푸란 및 1.45 wt% (용리액의 총 중량에 대해) 헥사메틸디실라잔의 혼합물을 사용하였다. 컬럼은 Shodex KS-804 및 2 x KS-802 및 KS-801 이었다. 검출기는 Agilent 1260 굴절률 검출기였다.
- [0146] 3 rpm 의 회전 속도 및 25℃ 의 온도에서, Brookfield 콘형 스피들 RC3-50-1 을 이용하여, Brookfield 레오미터 R/S 플러스를 사용하여 점도를 측정하였다.
- [0147] **실시예**
- [0148] 하기 실시예는 예시적이고 비제한적인 방식으로 본 발명의 이점을 예시하도록 의도된다.
- [0149] 개시 물질을 상업적 공급원, 예를 들어 Gelest Inc. USA 사제 디클로로실란, Sigma-Aldrich 사제 디클로로메틸실란 및 디클로로디메틸실란, 및 ABCR 사제  $\alpha$ ,  $\omega$ -디클로로-디메틸실리콘으로부터 얻었다.
- [0150] 대안적으로,  $\alpha$ ,  $\omega$ -디클로로-디메틸실리콘은 예를 들어 테트라히드로푸란 또는 1,4-디옥산과 같은 불활성 용매 중 과량의 디클로로디메틸실란을 물과 반응시킴으로써 제조될 수 있다. 과량의 디클로로디메틸실란을 사용하는 것은 불완전한 가수분해를 유도하고, 이에 따라 Si-Cl 기가 잔류할 것이다. 용매 및 미반응 디클로로디메틸실란은 감압 하에서 증류에 의해 제거되어 무색 오일을 산출할 수 있고, 이는 추가 정제 없이 사용될 수 있거나 컬럼 크로마토그래피 또는 기타 방법에 의해 추가로 정제될 수 있다.
- [0151] 실시예 1
- [0152] 4 l 압력 용기를 0℃ 및 3 bar 내지 5 bar 의 압력에서 1500 g 의 액체 암모니아로 채웠다. 359 g 디클로로실란 및 442 g 1,3-디클로로-테트라메틸디실록산의 혼합물을 3 h 의 기간에 걸쳐 서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 409 g 의 무색 점성 오일이 남았다.
- [0153] 실시예 2
- [0154] 4 l 압력 용기를 0℃ 및 3 bar 내지 5 bar 의 압력에서 1500 g 의 액체 암모니아로 채웠다. 168 g 디클로로실란, 231 g 디클로로-메틸실란 및 419 g 1,3-디클로로-테트라메틸디실록산의 혼합물을 3 h 의 기간에 걸쳐

서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 422 g의 무색 점성 오일이 남았다.

[0155] 실시예 3

[0156] 4 l 압력 용기를 0°C 및 3 bar 내지 5 bar의 압력에서 1500 g의 액체 암모니아로 채웠다. 168 g 디클로로실란, 237 g 디클로로메틸실란 및 556 g 1,5-디클로로-헥사메틸트리실록산의 혼합물을 3 h의 기간에 걸쳐 서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 545 g의 무색 점성 오일이 남았다.

[0157] 실시예 4

[0158] 4 l 압력 용기를 0°C 및 3 bar 내지 5 bar의 압력에서 1500 g의 액체 암모니아로 채웠다. 442 g 디클로로메틸실란 및 384 g 1,3-디클로로테트라메틸디실록산의 혼합물을 3 h의 기간에 걸쳐 서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 429 g의 무색 점성 오일이 남았다.

[0159] 실시예 5

[0160] 4 l 압력 용기를 0°C 및 3 bar 내지 5 bar의 압력에서 1500 g의 액체 암모니아로 채웠다. 244 g 디클로로메틸실란, 266 g 디클로로디메틸실란 및 429 g 1,5-디클로로헥사메틸트리실록산의 혼합물을 3 h의 기간에 걸쳐 서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 526 g의 무색 점성 오일이 남았다.

[0161] 실시예 6

[0162] 4 l 압력 용기를 0°C 및 3 bar 내지 5 bar의 압력에서 1500 g의 액체 암모니아로 채웠다. 503 g 디클로로메틸실란 및 645 g 1,7-디클로로옥타메틸테트라실록산의 혼합물을 3 h의 기간에 걸쳐 서서히 첨가하였다. 수득한 반응 혼합물을 추가 3 h 동안 교반한 후, 교반기를 중지하고, 보다 낮은 상을 단리 및 증발시켜 용해된 암모니아를 제거하였다. 여과 후, 703 g의 무색 점성 오일이 남았다.

[0163] 실시예 7

[0164] 2 l 플라스크를 44 g 디클로로메틸실란, 56 g 1,3-디클로로테트라메틸디실록산 및 1500 ml n-헵탄의 혼합물로 채웠다. 반응 용액을 0°C로 냉각시키고, 염 형성이 추가로 관찰되지 않을 때까지 2 h의 기간에 걸쳐 기체 암모니아를 용액의 표면 아래에서 버블링하였다. 온도를 실온으로 상승시킨 후, 침전된 암모늄 클로라이드를 여과에 의해 제거하고, 수득한 무색 및 투명 용액을 40 mbar 이하의 진공 하 50°C의 온도에서 건조될 때까지 감소시켰다. 51 g의 무색 저점성 오일이 남았다.

[0165] 실시예 8

[0166] 2 l 플라스크를 44 g 디클로로메틸실란, 56 g 1,3-디클로로테트라메틸디실록산 및 1500 ml n-헵탄의 혼합물로 채웠다. 반응 용액을 0°C로 냉각시키고, 염 형성이 추가로 관찰되지 않을 때까지 2 h의 기간에 걸쳐 기체 메틸아민을 용액의 표면 아래에서 버블링하였다. 온도를 실온으로 상승시킨 후, 침전된 메틸암모늄 클로라이드를 여과에 의해 제거하고, 수득한 무색 및 투명 용액을 40 mbar 이하의 진공 하 50°C의 온도에서 건조될 때까지 감소시켰다. 56 g의 무색 저점성 오일이 남았다.

[0167] 실시예 9

[0168] 2 l 플라스크를 41 g 디클로로메틸실란, 59 g 1,7-디클로로옥타메틸테트라실록산 및 1500 ml n-헵탄의 혼합물로 채웠다. 반응 용액을 0°C로 냉각시키고, 염 형성이 추가로 관찰되지 않을 때까지 2 h의 기간에 걸쳐 기체 암모니아를 용액의 표면 아래에서 버블링하였다. 온도를 실온으로 상승시킨 후, 침전된 암모늄 클로라이드를 여과에 의해 제거하고, 수득한 무색 및 투명 용액을 40 mbar 이하의 진공 하 50°C의 온도에서 건조될 때까지 감소시켰다. 39 g의 무색 저점성 오일이 남았다.

[0169] 실시예 10 - 플루오라이드-촉매화 가교

[0170] 실시예 4의 100 g의 중합체를 100 g 1,4-디옥산 중에 용해시키고, 0°C로 냉각시켰다. 100 mg 테트라메틸암모늄 플루오라이드를 첨가하고, 수득한 반응 혼합물을 기체 형성이 중지될 때까지 4 h 동안 교반하였다. 250 g 자일렌을 첨가하고, 온도를 실온으로 상승시켰다. 탁한 용액을 여과하고, 수득한 투명한 용액을 20

mbar 이하의 진공 하 50℃ 의 온도에서 건조될 때까지 감소시켰다. 95 g 의 무색 고점성 오일이 남았다. 실시예 4 의 중합체 및 가교 중합체의 각각의 분자량을 표 1 에 나타낸다.

[0171] 실시예 11 - 염기-촉매화 가교

[0172] 실시예 4 의 100 g 의 중합체를 100 g 1,4-디옥산 중에 용해시키고, 0℃ 로 냉각시켰다. 100 mg KH 를 첨가하고, 반응 용액을 기체 형성이 중지될 때까지 4 h 동안 교반하였다. 300 mg 클로로트리메틸실란 및 250 g 자일렌을 첨가하고, 온도를 실온으로 상승시켰다. 탁한 용액을 여과하고, 수득한 투명 용액을 20 mbar 이하의 진공 하 50℃ 의 온도에서 건조될 때까지 감소시켰다. 95 g 의 무색 고점성 오일이 남았다. 실시예 4 의 중합체 및 가교 중합체의 각각의 분자량을 표 1 에 나타낸다.

[0173] 표 1

중합체	$M_n$ [g mol <sup>-1</sup> ]
실시예 4	3,100
실시예 10	5,200
실시예 11	4,750

[0174]

[0175] 실시예 12

[0176] LED 소자에서 이의 유용성을 보이기 위해, 실시예에서 수득된 중합체를 1 : 1 내지 1 : 3 범위의 중량 비로 포스포르 광 컨버터 입자 (Merck KGaA 에서 입수가능) 와 블렌딩한 다음, LED 패키지 (Excelitas 에서 입수가능) 상에 올려진 LED 칩상에 40 μm 내지 80 μm 두께 층으로서 블렌드를 코팅하였다. 중합체를 경화하기 위해, 이후 LED 를 8 시간 동안 150℃ 에서 핫플레이트 상에 두었다.

[0177] 완성된 LED 를 먼저 0.5 A 의 개시 전류에서 24 시간 동안 작동시켰다. LED 의 코팅에서 크랙 형성이 현미경으로 검출될 수 없는 경우, 전류를 0.1 A 씩 상승시키고, 또 다른 24 시간 동안 LED 를 작동시키고, 크랙 형성이 관찰될 수 있는 전류까지 현미경으로 조사하였다. LED 전류가 칩의 온도와 관련되기 때문에, 이러한 방법은 이와 같이 제조된 LED 의 수명 및 온도 저항성에 대한 지표를 제공한다. 표 2 는 실시예의 중합체로 제조된 LED 뿐 아니라 페닐실리콘, Durazane 1033 및 Durazane 1066 (참조 물질로서) 로 제조된 LED 에 대해, 크랙 형성이 발생하지 않는 가장 높은 LED 전류를 보여준다. 페닐실리콘의 예는 Dow Corning, USA 로부터 시판되는 OE-6550 이다. Durazane 1033 및 Durazane 1066 은 Merck, Darmstadt, Germany 로부터 시판되는 오르가노폴리실라잔이다.

[0178] 표 2

중합체	크랙 형성 없으면서 가장 높은 전류 [A]
Ex. 1	1.6
Ex. 2	1.7
Ex. 3	1.6
Ex. 4	1.6
Ex. 5	1.7
Ex. 6	1.6
Ex. 7	1.6
Ex. 8	1.7
Ex. 9	1.9
Ex. 10	1.9
Ex. 11	1.8
페닐실리콘	1.5
Durazane 1033	1.0
Durazane 1066	1.1

[0179]

[0180] 본 결과는, 본 발명의 실라잔-실록산 랜덤 공중합체가, 예를 들어 페닐실리콘 또는 오르가노폴리실라잔과 같은 종래의 물질에 비해 탁월한 온도 저항성 및/또는 수명을 특징으로 한다는 것을 명백히 보여준다.