

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국



(10) 국제공개번호

(43) 국제공개일
2018년 5월 17일 (17.05.2018) **WIPO | PCT**

WO 2018/088855 A1

(51) 국제특허분류:
C08L 83/04 (2006.01) *C08K 3/26* (2006.01)

SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 국제출원번호: PCT/KR2017/012759

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

(22) 국제출원일: 2017년 11월 10일 (10.11.2017)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:
10-2016-0150489 2016년 11월 11일 (11.11.2016) KR

(71) 출원인: 주식회사 케이씨씨 (**KCC CORPORATION**)
[KR/KR]; 06608 서울시 서초구 사평대로 344, Seoul (KR).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(72) 발명자: 이장민 (**LEE, Jang Min**); 15822 경기도 군포시 고산로517번길 20, 904동 1704호, Gyeonggi-do (KR). 유일혁 (**YOO, Il Hyuck**); 16697 경기도 수원시 영통구 영통로290번길 25, Gyeonggi-do (KR). 김경남 (**KIM, Kyung Nam**); 54961 전라북도 전주시 완산구 척동6길 6-5, Jeollabuk-do (KR). 박태환 (**PARK, Tae Hwan**); 03719 서울시 서대문구 연희로32길 48, 101동 106호, Seoul (KR).

(74) 대리인: 특허법인 태평양 (**BAE, KIM & LEE IP GROUP**); 06626 서울시 서초구 강남대로 343, 11층, Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,

(54) Title: ORGANOPOLYSILOXANE COMPOSITION

(54) 발명의 명칭: 유기폴리실록산 조성물

(57) Abstract: The present invention relates to an organopolysiloxane composition which comprises: an organopolysiloxane polymer containing a silicon-bonded hydroxyl group or a silicon-bonded hydrolysable group; precipitated calcium carbonate having a specific surface area according to the BET method of 15 to 35 m²/g; ground calcium carbonate having a specific surface area according to the BET method of 0.5 to 5 m²/g; a curing accelerating catalyst; and a silane-based curing agent, wherein the mixing weight ratio of the precipitated calcium carbonate and the ground calcium carbonate is 1: 0.04 to 1: 0.25, and the silane-based curing agent is a compound represented by the following formula 4: [formula 4] G_x-Si-R_{4-x} In formula 4, G is selected from the group consisting of alkoxy, acetoxy, oxime, and a hydroxy group, R is selected from the group consisting of a C₁ to C₁₀ alkenyl group, a C₁ to C₁₀ alkynyl group, and a C₆ to C₁₀ aryl group, and X is 2, 3, or 4.

(57) 요약서: 본 발명은 규소-결합된 하이드록실기 또는 규소-결합된 가수분해성기를 함유하는 유기폴리실록산 중합체, BET법 비표면적이 15 내지 35 m²/g인 경질 탄산칼슘, BET법 비표면적이 0.5 내지 5 m²/g인 중질 탄산칼슘, 경화촉진 촉매, 및 실란계 경화제를 포함하고, 상기 경질 탄산칼슘 및 상기 중질 탄산칼슘의 혼합 중량비가 1:0.04 내지 1:0.25이며, 상기 실란계 경화제는 하기 화학식 4로 표시되는 화합물인 유기폴리실록산 조성물에 관한 것이다. [화학식 4] G_x-Si-R_{4-x} 상기 화학식 4에서, G는 알콕시, 아세톡시, 옥실 및 하이드록실기로 이루어진 군에서 선택되고, R은 C₁ 내지 C₁₀의 알케닐기, C₁ 내지 C₁₀의 알킬닐기 및 C₆ 내지 C₁₀의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되며, x는 2, 3 또는 4이다.

WO 2018/088855 A1

명세서

발명의 명칭: 유기폴리실록산 조성물

기술분야

- [1] 본 발명은 유기폴리실록산 조성물에 관한 것으로, 보다 구체적으로는 BET법 비표면적이 서로 다른 이종의 탄산칼슘을 특정 범위로 포함하는 유기폴리실록산 조성물에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 일반적으로 유기실록산 조성물은 경화 후, 내후성 등이 우수한 실리콘 고무가 되므로, 이러한 특성상 건축 토목 분야를 비롯하여 여러 분야에서 접착제 또는 실링재로서 다양하게 사용되고 있다.
- [3] 이러한 유기실록산 조성물을 제조하기 위해서, 유기실리콘 중합체를 주요 성분으로 하여, 충전제, 경화촉진제, 경화제 및 커플링제를 포함하는 다양한 유기실록산 조성물이 개발되어 왔다. 예를 들어, 적어도 2개 이상의 규소-결합된 가수분해성기를 갖는 유기실리콘 화합물; 탄산칼슘; 경화촉진제; 실란 화합물; 및 실란 커플링제를 포함하는 유기실록산 조성물이 연구되었다.
- [4] 구체적으로, 유기폴리실록산 중합체, 경질 탄산칼슘 분말 및 트리알콕시실란을 티타늄 에틸아세토아세테이트 등의 축합반응 촉진 촉매의 존재 하에 경화한 조성물이 제안되었다. 그러나 상기 조성물은 보존 안정성이 우수하지만 접착 내구성이 떨어지는 문제가 있을 수 있다. 특히 평균 입경이 작은 탄산칼슘 충전제를 단독으로 사용하는 경우, 도막강도가 쉽게 저하될 수 있으며, 장시간 동안 경화 후, 표면 접착성이 감소할 수 있다.
- [5] 이를 해결하기 위하여, 다양하게 표면 처리된 탄산칼슘 및 첨가제를 첨가한 조성물이 연구되었으나, 장시간 노출되거나 사용시 접착층이 파괴되거나, 물 또는 습한 조건에 노출 시 내수성이 열악하여 부착성 감소 등의 문제가 발생할 수 있다.
- [6] 따라서, 전단접착강도가 우수하고, 신속한 표면 경화속도에 의한 초기 접착 강도를 확보할 수 있으며, 장기간 사용시에도 쉽게 박리하지 않고 접착성이 우수한 유기폴리실록산 조성물의 개발이 필요한 실정이다.
- [7] (특허문헌 1) 특허문헌 1: EP 1976933 B1
- [8] (특허문헌 2) 특허문헌 2: US 2007-0282047 A1

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [9] 본 발명은 전단접착강도와 내수성이 향상된 유기폴리실록산 조성물을 제공하는 것이다.

과제 해결 수단

- [10] 본 발명은 규소-결합된 하이드록실기 또는 규소-결합된 가수분해성기를 2개

이상 함유하는 유기폴리실록산 중합체, BET법 비표면적이 15 내지 35 m²/g인 경질 탄산칼슘, BET법 비표면적이 0.5 내지 5 m²/g인 중질 탄산칼슘, 경화촉진 촉매, 및 실란계 경화제를 포함하고, 상기 경질 탄산칼슘 및 상기 중질 탄산칼슘의 혼합 중량비가 1:0.04 내지 1:0.25이며, 상기 실란계 경화제는 하기 화학식 4로 표시되는 화합물인 것인 유기폴리실록산 조성물을 제공한다.

[11] [화학식 4]

[12] G_x-Si-R_{4-x}

[13] 상기 화학식 4에서,

[14] G는 알콕시, 아세톡시, 옥심 및 하이드록시기로 이루어진 군에서 선택되고,

[15] R은 C₁ 내지 C₁₀의 알케닐기, C₁ 내지 C₁₀의 알킬닐기 및 C₆ 내지 C₁₀의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되고,

[16] x는 2, 3 또는 4이다.

발명의 효과

[17] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물은 전단접착강도 및 신율이 우수하고, 경화 후 또는 장기간 사용시에도 내수성 및 접착 내구성이 우수하게 유지될 수 있다.

발명의 실시를 위한 형태

[18] 이하, 본 발명을 설명한다.

[19]

[20] 본 발명은, (a) 규소-결합된 하이드록실기 또는 규소-결합된 가수분해성기를 2개 이상 함유하는 유기폴리실록산 중합체, (b) BET(Brunauer-Emmett-Teller)법 비표면적이 15 m²/g 내지 35 m²/g인 경질 탄산칼슘, (c)

BET(Brunauer-Emmett-Teller)법 비표면적이 0.5 m²/g 내지 5 m²/g인 중질 탄산칼슘, (d) 경화촉진 촉매, 및 (e) 실란계 경화제를 포함하고, 상기 경질 탄산칼슘(b) 및 상기 중질 탄산칼슘(c)의 혼합 중량비가 1:0.04 내지 1:0.25의 범위인 유기폴리실록산 조성물에 관한 것이다.

[21] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물은 BET법 비표면적이 서로 다른 이종의 경질 탄산칼슘 및 중질 탄산칼슘을 특정 범위의 양으로 혼합하여 포함함으로써, 종래의 일정 BET 비표면적을 갖는 탄산칼슘을 단독으로 포함하는 유기폴리실록산 조성물에 비해 신율 및 전단접착강도가 우수하고, 경화 후 또는 장기간 사용시에도 내수성 및 접착 내구성이 우수하게 유지될 수 있다.

[22] 이러한 본 발명의 유기폴리실록산 조성물에 포함되는 각 성분을 구체적으로 설명하면 다음과 같다.

[23] (a) 유기폴리실록산 중합체

[24] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 유기폴리실록산 중합체는 하기 화학식 1로 표시되는 화합물일 수 있다.

- [25] [화학식 1]
- [26] $X-A-X'$
- [27] 상기 화학식 1에서, X 및 X'은 서로 동일하거나 상이하고, 각각 독립적으로 하이드록실기 또는 가수분해성기로 종결되는 실록산기로 이루어진 군에서 선택된다.
- [28] A는 중합체 사슬을 함유하는 실록산이다.
- [29] 상기 하이드록실기 또는 가수분해성기로 종결되는 X 또는 X'은 $-\text{Si}(\text{OH})_3$, $-(\text{R}^a)_3\text{Si}(\text{OH})_2$, $-(\text{R}^a)_2\text{SiOH}$, $-\text{R}^a\text{Si}(\text{OR}^b)_2$, $-\text{Si}(\text{OR}^b)_3$, $-(\text{R}^a)_2\text{SiOR}^b$ 및 $-(\text{R}^a)_2\text{Si-R}^c\text{-Si}(\text{R}^d)_p(\text{OR}^b)_{3-p}$ 로 이루어진 군에서 선택된다.
- [30] 상기 R^a 는 1가 하이드로카르빌기이며, 상기 R^b 및 R^d 는 각각 독립적으로, C_1 내지 C_{10} 의 알킬기 및 C_1 내지 C_{10} 의 알콕시기로 이루어진 군에서 선택된다.
- [31] 상기 R^c 는 6개 이하의 규소 원자를 갖는 1개 이상의 실록산 스페이서(spacer)가 개재될 수 있는 2가 탄화수소기이며, p는 0, 1 또는 2이다.
- [32] 구체적으로 상기 화학식 1에서, R^a 는 메틸기이고, R^b 및 R^d 는 6개 이하의 탄소 원자를 가질 수 있다.
- [33] 상기 화학식 1에서, 실록산인 A는 하기 화학식 2의 실록산 단위를 포함하는 것일 수 있다.
- [34] [화학식 2]
- [35] $-(\text{R}^5)_s\text{SiO}_{(4-s)/2}-$
- [36] 상기 화학식 2에서,
- [37] R^5 는 치환 또는 비치환된 C_1 내지 C_{10} 의 하이드로카르빌기이고, s는 0, 1 또는 2이다.
- [38] 상기 하이드로카르빌기는 염소, 불소, 브롬, 및 요오드와 같은 할로젠 원자; 클로로메틸, 퍼플루오로부틸, 트리플루오로에틸, 및 노나플루오로헥실과 같은 할로젠 원자 함유기; 산소 원자; (메트)아크릴 및 카르복실과 같은 산소 원자 함유기; 질소 원자; 아미노-작용기, 아미도-작용기, 및 시아노-작용기와 같은 질소 원자 함유기; 황 원자; 메르캅토기와 같은 황 원자 함유기로 치환될 수 있다.
- [39] 구체적으로, 상기 R^5 는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 비닐, 사이클로헥실, 페닐, 톨릴기, 3,3,3-트리플루오로프로필과 같이 염소 또는 불소로 치환된 프로필기, 클로로페닐, 베타-(퍼플루오로부틸)에틸 또는 클로로사이클로 헥실기일 수 있다.
- [40] 상기 화학식 1에서, 상기 A는 생성되는 중합체의 점도(본 발명에 따른 희석체의 부재 시에, 25 에서 20,000,000 cP 이하 (즉, 화학식 2의 단위가 최대 200,000개 또는 그 이상)를 제공하는 임의의 적합한 실록산 또는 실록산/유기 분자 사슬을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 A는 하기 화학식 3으로 표시되는 폴리디오르가노실록산 사슬을 가질 수 있다.
- [41] [화학식 3]
- [42] $-(\text{R}^5)_2\text{SiO})_t-$

- [43] 상기 화학식 3에서,
- [44] R^5 는 상기에서 설명한 바와 같고, t 는 200,000 이하의 정수이다.
- [45] 본 발명의 일 실시예에 따른 상기 유기폴리실록산 중합체의 점도는 25 에서 1,000 내지 100,000 cP이고, 구체적으로는 4,500 내지 50,000 cP, 더 구체적으로는 4,500 내지 5,500 cP일 수 있다. 상기 점도는 브룩필드(Brookfield) HBDV-PRO 점도계를 사용하여 25 에서 측정된 것을 의미한다.
- [46] 상기 화학식 2의 단위를 함유하는 유기폴리실록산 중합체는 상기에 정의된 바와 같이 수분을 사용하여 가수분해될 수 있는, 말단, 규소-결합된 하이드록실기 또는 말단, 규소-결합된 유기 라디칼을 갖는 유기폴리실록산 중합체일 수 있다. 상기 유기폴리실록산 중합체는 단일중합체 또는 공중합체일 수 있다. 또한, 말단 축합성기를 갖는 상이한 유기폴리실록산 중합체의 혼합물도 포함할 수 있다.
- [47] 이러한 유기폴리실록산 중합체의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 20 내지 45 중량%일 수 있으며, 구체적으로는 25 내지 40 중량%로 포함될 수 있다.
- [48] (b) 경질 탄산칼슘
- [49] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 경질 탄산칼슘은 충전제 및 물성보강을 위해 첨가되는 물질이며, 특히 기계적 강도를 부여하기 위한 성분일 수 있다.
- [50] 상기 경질 탄산칼슘은 BET법 비표면적이 15 내지 35 m^2/g 이고, 구체적으로는 23 내지 29 m^2/g 일 수 있다. 상기 비표면적은 기공분포 측정기(Porosimetry analyzer; Bell Japan Inc, Belsorp-II mini)를 사용하여 질소 가스 흡착 유통법에 의해 BET 6점법으로 측정할 수 있다.
- [51] 또한, 상기 경질 탄산칼슘의 평균 입경은 0.02 내지 0.1 μm 이고, 구체적으로는 0.05 내지 0.1 μm 일 수 있다. 상기 경질 탄산칼슘의 평균 입경은 레이저 회절법(laser diffraction method)을 이용하여 측정할 수 있다. 상기 레이저 회절법은 일반적으로 서브미크론(submicron) 영역에서부터 수 mm 정도의 입경의 측정이 가능하며, 고 재현성 및 고 분해성의 결과를 얻을 수 있다. 상기 경질 탄산칼슘의 평균 입경은 입경 분포의 50% 기준에서의 입경(D_{50})으로 정의할 수 있다.
- [52] 상기 경질 탄산칼슘의 함량은 상기 경질 및 중질 탄산칼슘의 혼합비를 만족하는 범위 내에서, 상기 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 40 내지 70 중량%일 수 있으며, 구체적으로는 40 내지 60 중량%로 포함될 수 있다. 상기 경질 탄산칼슘의 함량이 40 중량% 미만일 경우에는 기계적 물성이 저하될 수 있고, 70 중량%를 초과할 경우에는 경질 탄산칼슘의 분산성이 저하될 수 있다.
- [53] 상기 경질 탄산칼슘은 침강 탄산칼슘일 수 있으며, 치밀한 석회석을 탄산가스와 반응시켜 얻어진 경질 탄산칼슘 슬러리를 탈수하고 건조시켜 제조된 것일 수 있다.

- [54] 또한, 그 표면이 지방산으로 표면 처리되거나 또는 비표면처리된 것을 사용할 수 있다. 상기 표면 처리된 경질 탄산칼슘은 구체적으로 유기클로로실란, 유기폴리실록산, 헥사알킬디실라잔, 지방산, 및 지방산 유도체로 이루어진 군에서 선택된 처리제로 처리된 침강 탄산칼슘일 수 있다. 상기 지방산으로 표면 처리된 침강 탄산칼슘은 상기 유기폴리실록산 중합체(성분 (a))의 분산성을 높이고 조성물의 점도를 개선할 수 있다.
- [55] (c) 중질 탄산칼슘
- [56] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 중질 탄산칼슘은, 상기 경질 탄산칼슘을 단독으로 사용시 감소되는 전단접착강도를 높이기 위한 것으로, BET법 비표면적이 0.5 내지 $5 \text{ m}^2/\text{g}$ 일 수 있고, 구체적으로는 0.2 내지 $1.2 \text{ m}^2/\text{g}$ 일 수 있다.
- [57] 상기 중질 탄산칼슘을 혼합하여 사용함으로써 본 발명은 조성물의 신율 및 전단접착강도를 향상시킬 수 있다.
- [58] 상기 중질 탄산칼슘의 평균 입경은 상기 경질 탄산칼슘에 비해 상대적으로 큰 입경을 갖는 탄산칼슘을 의미할 수 있으며, 구체적으로는, 평균 입경이 4 내지 $5 \mu\text{m}$ 인 것을 의미할 수 있다.
- [59] 상기 중질 탄산칼슘의 BET법 비표면적 및 평균 입경의 측정은 상기 경질 탄산칼슘에서 측정한 방법과 동일한 방법을 이용하여 측정할 수 있다.
- [60] 상기 중질 탄산칼슘의 함량은 경질 탄산칼슘과 중질 탄산칼슘의 혼합비를 만족하는 범위 내에서, 상기 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 1 내지 15 중량%일 수 있고, 구체적으로는 2 내지 12 중량%로 포함될 수 있다. 상기 중질 탄산칼슘의 함량이 1 중량% 미만일 경우에는 도막강도가 감소하고 접착 내구성이 저하될 수 있으며, 15 중량%를 초과할 경우에는 기계적 물성이 저하되어 접착제 또는 실링재로서 적용이 어려울 수 있다.
- [61] 상기 중질 탄산칼슘은 분쇄 탄산칼슘일 수 있으며, 백색 석회석을 분쇄하고, 얻어진 분쇄물을 분급함으로써 제조된 것일 수 있다.
- [62] 또한, 상기 중질 탄산칼슘은 그 표면이 지방산으로 표면 처리되거나 또는 비표면처리된 것을 사용할 수 있다. 상기 표면 처리된 중질 탄산칼슘은 구체적으로 유기클로로실란, 유기폴리실록산, 헥사알킬디실라잔, 지방산, 및 지방산 유도체로 이루어진 군에서 선택된 처리제로 처리된 중질 탄산칼슘일 수 있다.
- [63] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 경질 탄산칼슘(b)과 상기 중질 탄산칼슘(c)의 혼합 중량비가 $1:0.04$ 내지 $1:0.25$ 일 수 있고, 구체적으로는, $1:0.04$ 내지 $1:0.15$ 일 수 있다. 상기 혼합 범위로 혼합된 경질 탄산칼슘 및 중질 탄산칼슘을 유기폴리실록산 중합체와 사용할 경우, 본 발명은 다양한 접착제 또는 실링재로서 우수한 전단접착강도, 신율 및 인장강도 등의 기계적 물성을 달성할 수 있다.
- [64] (d) 경화촉진 촉매

- [65] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 경화촉진 촉매는 경화를 촉진시키기 위한 촉매로서, 금속을 함유한 착합 촉매일 수 있다. 구체적으로, 경화촉진 촉매로는 티타늄, 주석, 납, 안티몬, 철, 카드뮴, 바륨, 망간, 아연, 크롬, 코발트, 니켈, 알루미늄, 갈륨, 게르마늄 및 지르코늄과 같은 금속을 함유한 착합 촉매를 사용할 수 있다. 이러한 경화촉진 촉매의 구체적인 예로는 비스(에틸 아세토아세테이트-O1'-O3)비스(2-메틸프로판-1-올라토)티타늄(Bis(ethyl acetoacetato-O1'-O3)bis(2-methylpropan-1-olato)titanium), 테트라이소프로폭시티탄, 테트라-*t*-부톡시 티타늄, 또는 디아이소프로폭시티타늄 비스(에틸아세토아세테이트) 등을 들 수 있다.
- [66] 상기 경화촉진 촉매의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 0.1 내지 3 중량%일 수 있고, 구체적으로는 0.5 내지 2.5 중량%로 포함될 수 있다. 경화촉진 촉매의 함량이 0.1 중량% 미만일 경우에는 조성물의 경화반응성이 저하될 수 있으며, 3 중량%를 초과할 경우에는 과경화로 인해 작업성이 저하될 수 있다.
- [67]
- [68] (e) 실란계 경화제
- [69] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 실란계 경화제는 하기 화학식 4로 표시되는 화합물일 수 있다.
- [70] [화학식 4]
- [71] G_x-Si-R_{4-x}
- [72] 상기 화학식 4에서,
- [73] G는 알콕시, 아세톡시, 옥심 및 하이드록시기로 이루어진 군에서 선택된다.
- [74] R은 C₁ 내지 C₁₀의 알케닐기, C₁ 내지 C₁₀의 알킬닐기 및 C₆ 내지 C₁₀의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되고, x는 2, 3 또는 4이다.
- [75] 구체적으로, 상기 G는 메톡시, 에톡시, 프로폭시, 아이소프로폭시, 부톡시, 또는 *t*-부톡시일 수 있고, R은 페닐, 비닐, 프로페닐, 아이소프로페닐, 또는 헥세닐일 수 있다.
- [76] 이러한 실란계 경화제의 구체적인 예로는, 비닐트리메톡시실란, 비닐트리에톡시실란, 비닐에톡시디메톡시실란, 비닐메톡시디에톡시실란, 비닐메톡시디옥시모실란, 비닐에톡시디옥시모실란, 비닐메톡시디아세톡시실란, 비닐에톡시디아세톡시실란, 비닐메톡시디하이드록시실란, 비닐에톡시디하이드록시실란, 페닐트리메톡시실란, 비닐트리아세톡시실란, , 디부톡시 디아세톡시실란, 페닐트리프로피옥시실란, 비닐트리스(메틸에틸케토옥시모)실란, 비닐트리스(아이소프로페녹시)실란, 에틸폴리실리케이트, *n*-프로필오르토실리케이트, 에틸오르토실리케이트, 메틸오르토실리케이트 등을 들 수 있다.

- [77] 상기 경화제의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 1 내지 10 중량%일 수 있고, 구체적으로는, 0.5 내지 5 중량%로 포함될 수 있다. 상기 경화제의 함량이 1 중량% 미만일 경우에는 조성물의 경화반응이 저하되어 겔화가 일어날 수 있으며, 10 중량%를 초과할 경우에는 과경화로 인해 작업성이 저하될 수 있다. 한편, 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물은 실란 함유 화합물(f), 글리콜계 화합물(g) 및 실리콘계 첨가제(h)를 더 포함할 수 있는데, 이에 대해 구체적으로 설명하면 다음과 같다.
- [78] (f) 실란 함유 화합물
- [79] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 실란 함유 화합물은 접착성을 증진시키기 위해 사용되는 첨가제이다. 상기 실란 함유 화합물은 조성물의 부착성 및 내수성 등을 고려할 때, 에폭시알킬알콕시실란 화합물, 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물 및 알킬알콕시실란 화합물의 혼합 화합물을 사용할 수 있다.
- [80] 상기 에폭시알킬알콕시실란 화합물의 구체적인 예로는 트리메톡시[3-(옥시란-2-일메톡시)프로필]실란, (3-글리시딜옥시프로필)트리메톡시실란, 또는 이들의 혼합물 등을 들 수 있다. 상기 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물의 구체적인 예로는 γ -아미노프로필 트리에톡시실란, 3-아미노프로필트리에톡시실란, 또는 이들의 혼합물 등을 들 수 있다. 상기 알킬알콕시실란 화합물의 구체적인 예로는 트리메톡시(메틸)실란, 4-메르캅토부틸트리메톡시실란, 3-메르캅토-3-메틸프로필트리메톡시실란, 또는 이들의 혼합물 등을 들 수 있다.
- [81] 상기 에폭시알킬알콕시실란 화합물과 상기 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물과, 상기 알킬알콕시실란 화합물의 혼합 비율은 1 : 0.05 내지 0.4 : 0.1 내지 0.5의 중량비일 수 있다. 만약, 상기 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물과 알킬알콕시실란 화합물의 혼합 비율이 상기 수치 범위를 벗어나면 부착성 및 내수성이 저하될 수 있다.
- [82] 구체적으로, 조성물의 부착성 및 내수성을 고려할 때, 실란 함유 화합물로는 트리메톡시[3-(옥시란-2-일메톡시)프로필]실란 또는 (3-글리시딜옥시프로필)트리메톡시실란과, 3-아미노프로필트리에톡시실란과, 트리메톡시(메틸)실란을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [83] 이러한 실란 함유 화합물의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 0.03 내지 15 중량%일 수 있고, 구체적으로는 0.01 내지 5 중량%로 포함될 수 있다.
- [84] (g) 글리콜계 화합물
- [85] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 글리콜계 화합물은 조성물의 저장안정성을 높이기 위해 사용되는 첨가제이다.
- [86] 상기 글리콜계 화합물의 구체적인 예로는, 에틸렌글리콜, 프로필렌글리콜, 1,3-프로판디올, 2-메틸-1,3-프로판디올, 1,2-부탄디올, 1,3-부탄디올,

1,4-부탄디올, 1,5-펜탄디올, 1,6-헥산디올, 3-메틸-1,5-펜탄디올, 네오펜틸글리콜, 디에틸렌글리콜, 디프로필렌글리콜, 폴리에틸렌글리콜, 폴리프로필렌글리콜, 폴리테트라메틸렌글리콜, 또는 이들의 혼합물 등을 들 수 있다.

[87] 상기 글리콜계 화합물의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 0.001 내지 5 중량%일 수 있다. 상기 글리콜계 화합물의 함량이 0.001 중량% 미만일 경우에는 조성물의 저장안정성 효과가 미미할 수 있으며, 5 중량%를 초과할 경우에는 과량으로 인해 조성물의 물성이 저하될 수 있다.

[88] (h) 실리콘계 첨가제

[89] 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물에 있어서, 상기 실리콘계 첨가제는 조성물의 점도를 조절하기 위해 사용되는 첨가제이다. 상기 실리콘계 첨가제는 유기폴리실록산 중합체와 반응하지 않고, 25 에서 90 내지 약 110 cSt인 유기폴리실록산일 수 있다. 상기 실리콘계 첨가제의 구체적인 예로는, 폴리디메틸실록산 등을 들 수 있다.

[90] 상기 실리콘계 첨가제의 함량은 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 1 내지 10 중량%일 수 있고, 구체적으로는, 1 내지 3 중량%로 포함될 수 있다. 상기 실리콘계 첨가제의 함량이 상기 범위를 벗어날 경우 조성물의 점도를 조절하는 효과가 저하되거나, 다른 물성에 영향을 미칠 수 있다.

[91] 한편, 상기 실리콘계 첨가제 대신에 수소 처리된 중간 정제유(Distillates (petroleum), hydrotreated middle)가 조성물의 점도를 조절하는데 사용될 수도 있다.

[92] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 유기폴리실록산 조성물은 필요에 따라 본 발명의 물성 특성을 저해하지 않은 범위 내에서 안료, 증량제, 광개시제, 접착 촉진제, 열안정제, 난연제, UV 안정제, 사슬연장제, 충전제, 수분제거제 등의 기타 첨가제를 더 포함할 수 있다.

[93] 이러한 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물은, 비중이 ASTM D792로 측정시 1.42 내지 1.52일 수 있고, 점도가 ASTM D4287로 측정시 180 내지 400 Pa·s일 수 있고, 지축 건조가 30분 이하일 수 있다. 또한, 부착성은 ASTM C1193으로 측정시 100% CF일 수 있고, 인장강도는 ASTM D412로 측정시 2.0 MPa 이상(구체적으로, 2.3 내지 2.5 MPa)일 수 있고, 신율은 ASTM D412로 측정시 100% 이상(구체적으로, 200 내지 250%)일 수 있고, 전단접착강도는 ASTM D1002로 측정시 2.0 MPa 이상(구체적으로, 2.5 내지 3.0 MPa)일 수 있다.

[94] 이상에서 설명한 본 발명의 일 실시예에 따른 유기폴리실록산 조성물은 다양한 접착제, 봉지제 또는 실링제로 사용할 수 있으며, 구체적으로는 전자장치 조립용, 자동차 부품용, 건축용 등의 실링제, 접착제 또는 봉지제로서 다양하게 사용될 수 있다.

[95]

[96] 이하 본 발명을 실시예를 통하여 상세히 설명하면 다음과 같다. 단, 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명이 하기 실시예에 의해 한정되는

것은 아니다.

[97]

[98] [실시예 1]

[99] 반응기에 유기폴리실록산 중합체로서 점도가 25 에서 5000 cP인 디메틸하이드록시 실릴 종결된 폴리디메틸실록산 (Siloxanes and Silicones, di-Me, hydroxy-terminated, SF2001EDK005)를 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 37.372 중량%로 첨가하고, RPM 70/300 및 상압 1013 mbar 하에 교반하였다. 이후 BET법 비표면적이 약 23 내지 29 m²/g이고, 평균 입경이 약 0.08 μm인 경질 탄산칼슘(SHIRAISHI KOGYO KAISHA, LTD., HAKUENCA CC)을 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 52.925 중량% 및 BET법 비표면적이 약 0.97 m²/g이고, 평균 입경이 약 4.5 μm인 중질 탄산칼슘(오미아코리아, Omyacarb 5T)을 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 2.5 중량%(경질 및 중질 혼합 탄산칼슘의 혼합 중량비 1:0.047)를 첨가한 후, 약 30분 동안 상압 교반을 유지한 다음, 헤라작업을 진행하였다. 이후, 상기 혼합물을 RPM 70/300, 압력 0 내지 50mbar 하에 40분 동안 감압교반을 수행하였다. 그 다음, 상기 혼합물에 프로필렌 글리콜 0.156 중량% 및 액상의 실리콘계 첨가제로 25에서 100 cSt인 폴리디메틸실록산(Siloxanes and Silicones, di-Me, hydroxy-terminated, SF1000NFX100) 2.179 중량%를 첨가한 후 RPM 50/70 및 상압 1013mbar 하에서 약 1분간 교반하였다. 상기 혼합물을 RPM 60/150 및 압력 0 내지 50 mbar하에 약 10분간 감압교반한 후, 미분산 컴파운드 위주로 헤라작업을 진행하였다. 그 다음, 경화촉진 촉매로서 비스(에틸 아세토아세테이트-O1'-O3)비스(2-메틸프로판-1-올라토)티타늄(Bis(ethyl acetoacetato-O1'-O3)bis(2-methylpropan-1-olato)titanium) 1.500 중량%, 실란계 경화제로서 비닐트리메톡시실란 2.800 중량%를 첨가하였다. 이 혼합물을 다시 RPM 50/70 및 상압 1013mbar 하에서 약 1분간 교반한 후, RPM 60/150 및 압력 0 내지 50 mbar하에 약 10분간 감압교반하였다. 여기에 접착 부여제로서 실란 함유 화합물인 (3-글리시딜옥시프로필)트리메톡시 실란, 3-아미노프로필트리에톡시 실란 및 트리메톡시(메틸)실란을 1:0.148:0.355의 물비로 하여 각각 0.426 중량%, 0.050 중량% 및 0.074 중량%를 첨가한 후 RPM 50/70 및 상압 1013mbar 하에 약 1분간 교반하였다. 상기 혼합물을 RPM 60/150 및 압력 0 내지 50 mbar 하에 약 10분간 감압교반하였다. 이때, 상기 실리콘계 첨가제인 폴리디메틸실록산은 각각의 첨가제 첨가시 소량씩 나누어 첨가할 수 있다.

[100] 상기 실시예 1의 각각의 성분 및 함량은 하기 표 1과 같다.

[101] [실시예 2 내지 8]

[102] 하기 표 1에 기재된 조성 및 함량을 적용한 것을 제외하고는, 상기 실시예 1과 동일한 과정을 거쳐 유기폴리실록산 조성물을 제조하였다.

[103] [표1]

성분		합량(중량%)							
		실시 예 1	실시 예 2	실시 예 3	실시 예 4	실시 예 5	실시 예 6	실시 예 7	실시 예 8
25에서 5000 cP 점도를 갖는 디메틸하이드록시실릴 중결된 폴리디메틸실록산		37.37 2	37.37 2	37.37 2	37.37 2	37.37 2	37.37 2	37.37 2	37.37 2
25에서 100 cSt인 점도를 갖는 폴리디메틸실록산		2.197	2.197	2.197	2.197	2.197	2.197	2.197	2.197
중질 탄산칼슘(BET: 0.97m ² /g)		2.500	5.600	8.500	11.08 0	2.500	2.500	2.500	2.500
경질 탄산칼슘(BET: 23~29m ² /g)		52.92 5	49.82 5	46.92 5	44.34 5	52.92 5	52.92 5	52.92 5	52.92 5
프로필렌 글리콜		0.156	0.156	0.156	0.156	0.156	0.156	0.156	0.156
비스(에틸 아세토아세테이트-O1'-O3)비스(2-메틸프로판-1-올라토)티타늄		1.500	1.500	1.500	1.500	1.500	1.500	1.500	1.500
비닐트리메톡시실란		2.800	2.800	2.800	2.800	2.800	2.800	2.800	2.800
실란 함유 화합물	(3-글리시딜옥시프로필)트리메톡시 실란	0.426	0.426	0.426	0.426	0.500	0.409	0.375	0.383
	3-아미노프로필트리에톡시실란	0.050	0.050	0.050	0.050	0.025	0.116	0.093	0.100
	트리메톡시(메틸)실란	0.074	0.074	0.074	0.074	0.025	0.025	0.082	0.067
합계		100.0 0	100.0 0	100.0 0	100.0 0	100.0 0	100.0 0	100.0 0	100.0 0

[104]

[105] [비교예 1 내지 11]

[106] 하기 표 2에 기재된 조성 및 함량을 적용한 것을 제외하고는, 상기 실시예 1과 동일한 과정을 거쳐 유기폴리실록산 조성물을 제조하였다.

[107] [표2]

성분	함량(중량%)										
	비 교 예 1	비 교 예 2	비 교 예 3	비 교 예 4	비 교 예 5	비 교 예 6	비 교 예 7	비 교 예 8	비 교 예 9	비 교 예 10	비 교 예 11
25에서 5000 cP 점도를 갖는 디메틸하이드록시 실릴 종결된 폴리디메틸실록산	45.1 63	39.5 03	44.8 9	37.3 72	38.2 43	38.9 98	38.9 59	37.3 72	37.3 72	37.3 72	37. 372
25에서 100 cSt인 점도를 갖는 폴리디메틸실록산	1.73 6	1.59 7	1.81 5	2.19 7	1.73 6	1.59 7	1.59 6	2.19 7	2.19 7	2.19 7	2.1 97
중질 탄산칼슘(BET: 0.97m ² /g)	-	-	48.7 78	15.0 50	2.50 0	2.50 0	2.50 0	2.50 0	2.50 0	2.50 0	2.5 00
경질 탄산칼슘(BET: 23~29m ² /g)	48.7 8	54.9 25	-	40.3 75	52.9 25	52.9 25	52.9 25	52.9 25	52.9 25	52.9 25	52. 925
프로필렌 글리콜	0.17	0.15 6	0.17 7	0.15 6	0.17 0	0.15 6	0.15 6	0.15 6	0.15 6	0.15 6	0.1 56
비스(에틸 아세토아세테이트-O 1'-O3)비스(2-메틸프 로판-1-올라토)티타 늄	1.15	1.05 8	1.20 3	1.50 0	1.15 0	1.05 8	1.05 8	1.50 0	1.50 0	1.50 0	1.5 00
비닐트리메톡시실란	2.87 6	2.64 6	3.00 6	2.80 0	2.87 6	2.64 6	2.65 6	2.80 0	2.80 0	2.80 0	2.8 00

실란 함유 화합물	(3-글리시딜 옥시프로필) 트리메톡시 실란	-	-	-	0.42 6	0.40 0	-	-	0.18 8	0.35 0	0.51 6	0.4 10
	3-아미노프 로필트리에 톡시실란	-	-	-	0.07 4	-	0.07 0	-	0.28 0	0.18 6	0.01 5	0.0 10
	트리메톡시(메틸)실란	-	-	-	0.05 0	-	0.05 0	-	0.08 2	0.01 4	0.01 9	0.1 30
	N-(3-(트리 메톡시실릴) 프로필)에틸 렌디아민	0.12 5	0.11 5	0.13 1	-	-	-	0.15 0	-	-	-	-
합계		100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100. 00	100 .00

[108]

[109] [실험예 1: 조성물의 물성 측정]

[110] 실시예 및 비교예의 유기폴리실록산 조성물의 물성을 하기과 같은 방법으로 평가하였으며, 그 결과를 하기 표 3 및 4에 나타내었다.

[111] 1. 외관: 실시예 및 비교예의 유기폴리실록산 조성물을 마분지 또는 은폐지에 20 내지 30 g 토출하고 스펜더로 균일하게 도포시킨 후 조성물의 외관을 육안으로 평가하였다.

[112] 2. 색상: 상기 외관 평가에서 마분지 또는 은폐지에 도포된 조성물의 색상을 육안으로 평가하였다.

[113] 3. 비중: ASTM D 792에 의거하여 평가하였다.

[114] 4. 슬럼프: ASTM D 2202에 의거하여 평가하였다.

[115] 5. 지축건조: 실시예 및 비교예의 유기폴리실록산 조성물을 2mm 시트상으로 도포하고, 상대습도의 공기 중에 노출시킨 후, 지축건조 시간을 측정하였다.

[116] 6. 부착성: ASTM C 1193에 의거하여 평가하였다.

[117] 7. 경도: ASTM D 2240에 의거하여 평가하였다.

[118] 8. 인장강도: ASTM D 412에 의거하여 평가하였다.

[119] 9. 신율: ASTM D 412에 의거하여 평가하였다.

[120] 10. 전단접착 강도: ASTM D 1002에 의거하여 평가하였다.

[121] 11. 내수성 aging 후 접착강도 변화율: ASTM D 1002에 의거하여 평가하였다.

[122] [표3]

항목	실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	실시예 7	실시예 8
외관	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호
색상	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호
비중	1.48	1.48	1.49	1.49	1.48	1.48	1.48	1.48
점도(cP)	220,000	200,000	184,000	175,000	230,000	225,000	220,000	220,000
슬럼프	NONE	NONE	NONE	NONE	NONE	NONE	NONE	NONE
지축건조(분)	8	8	10	8	10	8	10	8
부착성	100%CF	100%CF	100%CF	100%CF	100%CF	100%CF	100%CF	100%CF
경도	53	52	50	50	55	53	55	50
인장강도(MPa)	2.5	2.2	1.8	1.8	2.4	2.3	2.4	2.5
신율(%)	250	240	230	240	250	240	250	240
전단접착강도(MPa)	2.5	2.5	2.3	2.3	2.1	2.3	1.8	2.6
내수성 aging 후 접착강도 변화율(%)	-12	-15	-15	-12	-20	-18	-15	-10

[123]

[124] [표4]

항목	비교 예 1	비교 예 2	비교 예 3	비교 예 4	비교 예 5	비교 예 6	비교 예 7	비교 예 8	비교 예 9	비교 예 10	비교 예 11
외관	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호
색상	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호	양호
비중	1.42	1.48	1.43	1.48	1.48	1.48	1.48	1.48	1.48	1.48	1.48
점도(cP)	153,000	315,000	231,000	220,000	210,000	210,000	220,000	220,000	200,000	210,000	180,000
슬럼프	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E	NON E
지축건조(분)	12	7	14	8	10	10	10	10	8	8	10
부착성	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF	100% CF
경도	52	60	50	53	52	55	52	53	50	55	53
인장강도(MPa)	2.9	3	2.2	1.9	2.2	2.2	2.2	2.0	2.3	2.4	2.5
신율(%)	390	260	290	240	250	250	250	250	250	240	250
전단접착강도(MPa)	1.7	1.8	1.4	1.8	1.6	1.5	1.8	2.5	2.6	1.4	1.5
내수성 aging 후 접착강도 변화율(%)	-75	-79	-81	-15	-27	-64	-86	-85	-54	-10	-25

[125] 상기 표 3 및 표 4를 참조하면, 본 발명에 따른 유기폴리실록산 조성물은 전단접착강도 및 신율과 더불어 내수성이 우수한 것을 확인할 수 있다.

청구범위

- [청구항 1] 규소-결합된 하이드록실기 또는 규소-결합된 가수분해성기를 2개 이상 함유하는 유기폴리실록산 중합체;
 BET법 비표면적이 15 내지 35 m²/g인 경질 탄산칼슘;
 BET법 비표면적이 0.5 내지 5 m²/g인 중질 탄산칼슘;
 경화촉진 촉매; 및
 실란계 경화제를 포함하고,
 상기 경질 탄산칼슘 및 상기 중질 탄산칼슘의 혼합 중량비가 1:0.04 내지 1:0.25이며,
 상기 실란계 경화제는 하기 화학식 4로 표시되는 화합물인 것인 유기폴리실록산 조성물.
- [화학식 4]
- $$G_x-Si-R_{4-x}$$
- 상기 화학식 4에서,
 G는 알콕시, 아세톡시, 옥심 및 하이드록시기로 이루어진 군에서 선택되고,
 R은 C₁ 내지 C₁₀의 알케닐기, C₁ 내지 C₁₀의 알킬닐기 및 C₆ 내지 C₁₀의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되며,
 x는 2, 3 또는 4이다.
- [청구항 2] 청구항 1에 있어서,
 상기 경질 탄산칼슘은 평균 입경이 0.02 내지 0.1 μm이고, 상기 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 40 내지 70 중량%로 포함되는 것인 유기폴리실록산 조성물.
- [청구항 3] 청구항 1에 있어서,
 상기 중질 탄산칼슘은 평균 입경이 4 내지 5 μm이고, 상기 유기폴리실록산 조성물 총 중량에 대해 1 내지 15 중량%로 포함되는 것인 유기폴리실록산 조성물.
- [청구항 4] 청구항 1에 있어서,
 에폭시알킬알콕시실란 화합물, 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물 및 알킬알콕시실란 화합물의 혼합 화합물을 포함하는 실란 함유 화합물을 더 포함하는 것인 유기폴리실록산 조성물.
- [청구항 5] 청구항 4에 있어서,
 상기 에폭시알킬알콕시실란 화합물과 상기 아미노기로 치환된 알콕시실란 화합물과, 상기 알킬알콕시실란 화합물의 혼합 비율이 1:0.05 내지 0.4:0.1 내지 0.5의 중량비인 것인 유기폴리실록산 조성물.
- [청구항 6] 청구항 1에 있어서,
 글리콜계 화합물을 더 포함하는 것인 유기폴리실록산 조성물.

[청구항 7] 청구항 1에 있어서,
상기 유기폴리실록산 중합체의 점도는 25 °C에서 1,000 내지 100,000 cP이고, 25 °C에서 90 내지 110 cSt인 유기폴리실록산인 실리콘계 첨가제를 더 포함하는 것인 유기폴리실록산 조성물.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2017/012759**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****C08L 83/04(2006.01)i, C08K 3/26(2006.01)i***

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L 83/04; C08L 83/07; C08L 83/12; C08K 3/26; C08L 91/00; F16L 11/00; C09D 183/06; C08G 77/08

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 above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: silicon, siloxane, siloxane, calcium carbonate, catalyst, hardening catalyst, catalyst, heavy, light, specific surface area, encapsulation, sealing, sealing, sealing, sealing material, sealing material, sealant, sealant

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-152020 A (DOW CORNING TORAY SILICON CO., LTD.) 05 June 2001 See claims 1, 7; and paragraphs [0005]-[0013], examples 1, 2.	1-3,7
Y		4-6
Y	KR 10-2009-0074039 A (DOW CORNING CORPORATION) 03 July 2009 See paragraphs [0088]-[0089].	4-6
Y	WO 2015-100198 A1 (DOW CORNING CORPORATION) 02 July 2015 See paragraphs [0040]-[0042].	4-6
A	PRODUCTION INFORMATION: Hakuenka CC-R 12 January 2012 See page 1.	1-7
A	US 5803131 A (IWASA, T. et al.) 08 September 1998 See table 1.	1-7
A	KR 10-2006-0041688 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 12 May 2006 See claims 1-3.	1-7



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

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

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

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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

09 FEBRUARY 2018 (09.02.2018)

Date of mailing of the international search report

12 FEBRUARY 2018 (12.02.2018)

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. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2017/012759

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 2001-152020 A	05/06/2001	CN 1255478 C	10/05/2006
		CN 1304952 A	25/07/2001
		EP 1104787 A2	06/06/2001
		EP 1104787 A3	19/12/2001
		EP 1104787 B1	12/05/2004
		JP 5101762 B2	19/12/2012
		KR 10-0675021 B1	29/01/2007
		KR 10-2001-0051993 A	25/06/2001
		TW 1249559 B	21/02/2006
KR 10-2009-0074039 A	03/07/2009	CN 101631827 A	20/01/2010
		EP 2078065 A2	15/07/2009
		JP 2010-506034 A	25/02/2010
		US 2010-0184883 A1	22/07/2010
		WO 2008-045417 A2	17/04/2008
		WO 2008-045417 A3	24/09/2009
WO 2015-100198 A1	02/07/2015	CN 105849213 A	10/08/2016
		EP 3087150 A1	02/11/2016
		JP 2017-502147 A	19/01/2017
		KR 10-2016-0101993 A	26/08/2016
		US 2016-0340548 A1	24/11/2016
US 5803131 A	08/09/1998	JP 08-091063 A	09/04/1996
		JP 08-092752 A	09/04/1996
		JP 08-269723 A	15/10/1996
		JP 3031177 B2	10/04/2000
KR 10-2006-0041688 A	12/05/2006	CN 100368478 C	13/02/2008
		CN 1651517 A	10/08/2005
		JP 2005-220215 A	18/08/2005
		JP 4438937 B2	24/03/2010
		KR 10-1127301 B1	30/03/2012
		TW 200535193 A	01/11/2005
		TW 1367919 B	11/07/2012

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C08L 83/04(2006.01)i, C08K 3/26(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C08L 83/04; C08L 83/07; C08L 83/12; C08K 3/26; C08L 91/00; F16L 11/00; C09D 183/06; C08G 77/08

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: 실리콘, 실록산, 실록세인, 탄산칼슘, 촉매, 경화촉매, 촉진제, 중질, 경질, 비표면적, 봉지, 실링, 밀봉, 밀폐, 시일제, 시일재, 쉘라트, 실라트

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 2001-152020 A (DOW CORNING TORAY SILICON CO., LTD.) 2001.06.05 청구항 1, 7; 및 단락 [0005]-[0013], 실시예 1, 2 참조.	1-3, 7
Y		4-6
Y	KR 10-2009-0074039 A (다우 코닝 코포레이션) 2009.07.03 단락 [0088]-[0089] 참조.	4-6
Y	WO 2015-100198 A1 (DOW CORNING CORPORATION) 2015.07.02 단락 [0040]-[0042] 참조.	4-6
A	PRODUCTION INFORMATION: Hakuenka CC-R 2012.01.12 페이지 1 참조.	1-7
A	US 5803131 A (IWASA, T. 등) 1998.09.08 표 1 참조.	1-7
A	KR 10-2006-0041688 A (신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤) 2006.05.12 청구항 1-3 참조.	1-7

☐ 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

2018년 02월 09일 (09.02.2018)

국제조사보고서 발송일

2018년 02월 12일 (12.02.2018)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



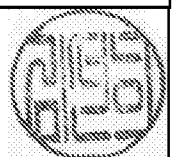
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

김선희

전화번호 +82-42-481-5405



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 2001-152020 A	2001/06/05	CN 1255478 C CN 1304952 A EP 1104787 A2 EP 1104787 A3 EP 1104787 B1 JP 5101762 B2 KR 10-0675021 B1 KR 10-2001-0051993 A TW I249559 B	2006/05/10 2001/07/25 2001/06/06 2001/12/19 2004/05/12 2012/12/19 2007/01/29 2001/06/25 2006/02/21
KR 10-2009-0074039 A	2009/07/03	CN 101631827 A EP 2078065 A2 JP 2010-506034 A US 2010-0184883 A1 WO 2008-045417 A2 WO 2008-045417 A3	2010/01/20 2009/07/15 2010/02/25 2010/07/22 2008/04/17 2009/09/24
WO 2015-100198 A1	2015/07/02	CN 105849213 A EP 3087150 A1 JP 2017-502147 A KR 10-2016-0101993 A US 2016-0340548 A1	2016/08/10 2016/11/02 2017/01/19 2016/08/26 2016/11/24
US 5803131 A	1998/09/08	JP 08-091063 A JP 08-092752 A JP 08-269723 A JP 3031177 B2	1996/04/09 1996/04/09 1996/10/15 2000/04/10
KR 10-2006-0041688 A	2006/05/12	CN 100368478 C CN 1651517 A JP 2005-220215 A JP 4438937 B2 KR 10-1127301 B1 TW 200535193 A TW I367919 B	2008/02/13 2005/08/10 2005/08/18 2010/03/24 2012/03/30 2005/11/01 2012/07/11