



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2013-0048185
(43) 공개일자 2013년05월09일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
 C07F 7/08 (2006.01) C07D 405/14 (2006.01)
 C07D 251/32 (2006.01) C08G 59/26 (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2012-0122947
 (22) 출원일자 2012년11월01일
 심사청구일자 2012년11월01일
 (30) 우선권주장 1020110113007 2011년11월01일 대한민국(KR)

(71) 출원인
 한국생산기술연구원
 충청남도 천안시 서북구 입장면 양대기로길 89
 (72) 발명자
 전현애
 경기도 성남시 분당구 서현동 시범단지우성아파트 210-1306
 탁상용
 부산광역시 중구 보수동3가 5-3
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
 특허법인씨엔에스

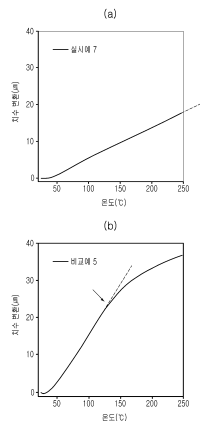
전체 청구항 수 : 총 68 항

(54) 발명의 명칭 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물, 이의 제조 방법 및 이를 포함하는 조성물과 경화물 및 이의 용도

(57) 요약

본 발명은 복합체에서 우수한 내열특성, 구체적으로, 낮은 열팽창계수(CTE, Coefficient of Thermal Expansion)와 높은 유리전이 온도 또는 Tg 리스 및/또는 경화물에서, 난연성을 나타내며 별도의 실란커플링제를 필요로 하지 않는 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물, 이의 제조방법, 이를 포함하는 조성물과 경화물 및 이의 용도에 관한 것이다. 본 발명에 의하면 코어에 알콕시실릴기 및 에폭시기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물; 출발물질의 에폭시화 및 알콕시실릴화로 제조되는 상기 에폭시 화합물의 제조방법; 상기 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물; 및 이의 경화물 및 용도가 제공된다. 본 발명에 의한 새로운 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 조성물의 복합체는 에폭시 화합물 중 알콕시실릴기와 충전제의 화학적 결합뿐만 아니라 알콕시실릴기를 갖는 에폭시 화합물의 알콕시실릴기간의 화학결합에 의해 에폭시 복합체 형성시, 화학결합 효율이 향상되며, 따라서, 우수한 내열특성, 즉, 낮은 CTE와 높은 유리전이온도 혹은 Tg 리스를 나타낸다. 또한, 본 발명에 의한 에폭시 화합물을 포함하는 조성물의 경화물은 우수한 난연성을 나타낸다.

대표도 - 도4



(72) 발명자

박수진

경기도 안산시 상록구 일동 652-5번지 202호

김윤주

서울특별시 강남구 역삼2동 역삼푸르지오아파트
108-302

박성환

경기도 군포시 수리동 계룡아파트 841-1302

박숙연

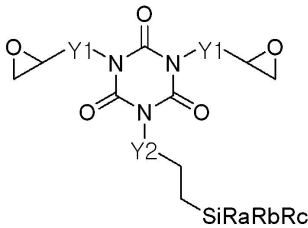
경기도 군포시 오금동 삼익소월아파트 378-702

특허청구의 범위

청구항 1

하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.

[화학식 1]



(상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일(alkanediyl), C6-C10 아릴디일(aryldiyl) 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 그룹 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

청구항 2

제 1 항에 있어서, 상기 Y1은 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.

청구항 3

제 1항에 있어서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.

청구항 4

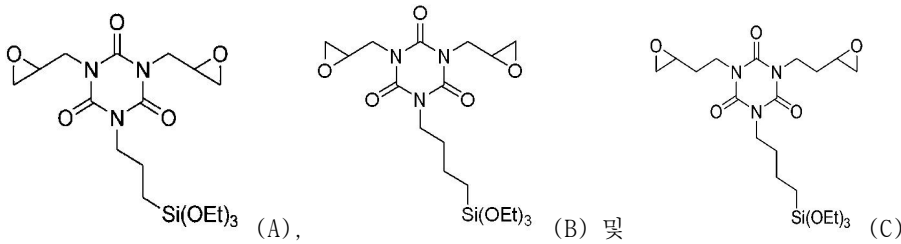
제 1항에 있어서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.

청구항 5

제 1항에 있어서, 상기 R_a 내지 R_c는 에톡시기인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.

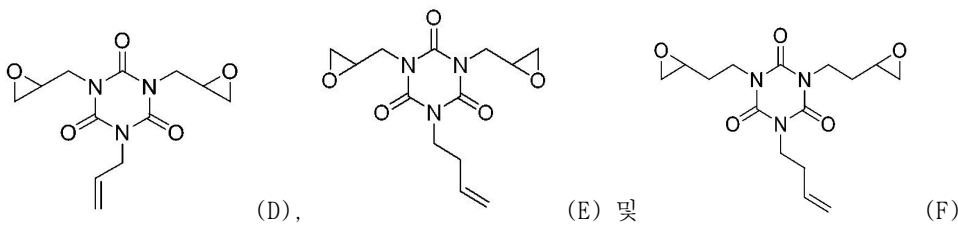
청구항 6

제 1항에 있어서, 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 하기 화학식 (A) 내지 (C)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물.



청구항 7

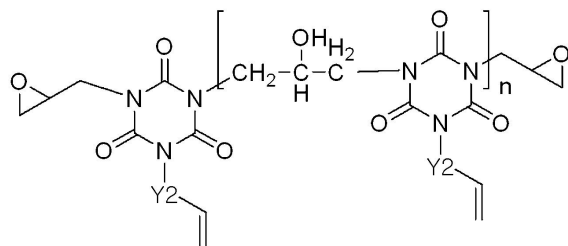
하기 화학식 (D) 내지 (F)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 화합물.



청구항 8

하기 화학식 2의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 폴리머.

[화학식 2]



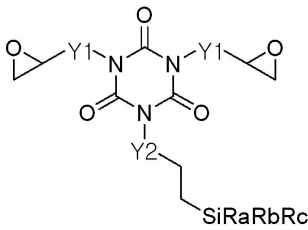
(상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, n은 0 내지 100의 정수이다.)

청구항 9

염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서, 하기 화학식 2-1의 화합물의 알케닐화 및 에폭시화로 하기 화학식 3의 중간체를 형성하는 제 1 단계; 및

상기 화학식 3의 중간체와 하기 화학식 R2의 알콕시실란을 금속촉매 및 임의의 용매존재하에서 반응시키는 제 2 단계를 포함하는 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

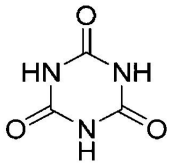
[화학식 1]



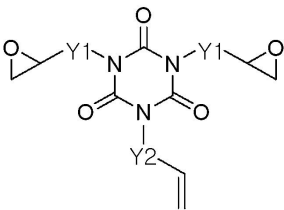
(상기 화학식 1에서, Y1은 -CH₂-이고, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아릴 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아릴킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[화학식 2-1]



[화학식 3]



(상기 화학식 3에서 Y1은 -CH₂-이며, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[화학식 R2]



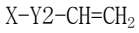
(상기 화학식 R2에서 R_a내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아릴킬 그룹이며, 상기 알콕시 및 알킬 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아릴킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

청구항 10

제 9항에 있어서, 상기 제 1 단계는 상기 화학식 2-1의 화합물과 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물을 반응시키는 알케닐화 다음에 원위치에서 에피클로로히드린과 연속적으로 반응시키는 에폭시화로 행하여지는, 알콕시실릴기

를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

[화학식 R1]

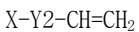


(상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, $-O-SO_2-CH_3$, $-O-SO_2-CF_3$, 또는 $-O-SO_2-C_6H_4-CH_3$ 이다.)

청구항 11

제 9항에 있어서, 상기 제 1 단계는 상기 화학식 2-1의 화합물과 에피클로로히드린과 반응시키는 에폭시화 다음에 원위치에서 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물과 연속적으로 반응시키는 알케닐화로 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

[화학식 R1]



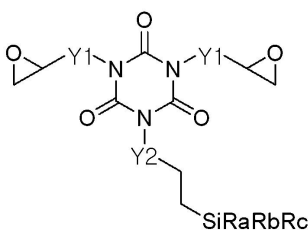
(상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, $-O-SO_2-CH_3$, $-O-SO_2-CF_3$, 또는 $-O-SO_2-C_6H_4-CH_3$ 이다.)

청구항 12

하기 화학식 2-2의 화합물과 과산화물을 임의의 염기 및 임의의 용매 존재하에서 반응시켜서 하기 화학식 3의 중간체를 형성하는 제 1 단계; 및

상기 화학식 3의 중간체와 하기 화학식 R2의 알콕시실란을 금속촉매 및 임의의 용매 존재하에서 반응시키는 제 2 단계를 포함하는, 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

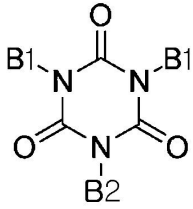
[화학식 1]



(상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

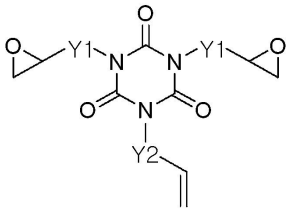
상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[화학식 2-2]



(상기 화학식 2-2에서 B1은 $-Y1-CH=CH_2$ 이고 B2는 $-Y2-CH=CH_2$ 이며, 상기 Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있고, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[화학식 3]



(상기 화학식 3에서, 상기 Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있고, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[화학식 R2]

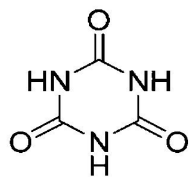
$HSiR_aR_bR_c$

(상기 화학식 R2에서 R_a 내지 R_c 중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알콕시 및 알킬 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

청구항 13

제 12항에 있어서, 상기 화학식 2-2의 화합물은 하기 화학식 2-1의 화합물과 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물을 염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서 반응시켜서 얻어지는 알콕실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

[화학식 2-1]



[화학식 R1]

$X-Y2-CH=CH_2$

(상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는

그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, $-O-SO_2-CH_3$, $-O-SO_2-CF_3$, 또는 $-O-SO_2-C_6H_4-CH_3$ 이다.)

청구항 14

제 10항에 있어서, 상기 제 1단계는 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 상기 화학식 R1의 화합물의 알케닐기가 0.3 당량 내지 5당량이 되도록 첨가하여 반응시키고 그 후에, 연속적으로 원-위치에서 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 에피클로로히드린이 1 당량 내지 10당량이 되도록 첨가하여 반응시키는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 15

제 11항에 있어서, 상기 제 1단계는 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 에피클로로히드린이 0.6 당량 내지 10당량이 되도록 첨가하여 반응시키고 그 후에, 연속적으로 원-위치에서 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 알케닐기가 0.3 당량 내지 5당량이 되도록 반응시키는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 16

제 9항에 있어서, 상기 알케닐화는 상온 내지 150℃에서 1 내지 24시간 동안 행하며, 상기 에폭시화는 상온 내지 150℃에서 1 내지 24시간 동안 행하는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 17

제 9항에 있어서, 상기 제 1단계에서 염기는 NaH, KOH, NaOH, K_2CO_3 및 Na_2CO_3 로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 18

제 9항에 있어서, 상기 제 1단계에서 촉매는 테트라 메틸 암모늄 클로라이드, 테트라메틸 암모늄 브로마이드, 테트라 부틸 암모늄 아이오다이드, 트리메틸 벤질 암모늄 클로라이드, 및 트리에틸 벤질 암모늄클로라이드로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 19

제 9항에 있어서, 상기 제 1단계에서 용매는 1,4-디옥산, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메탄올 및 에탄올로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 20

제 12항에 있어서, 제 1단계는 상기 화학식 2-2의 화합물의 알케닐 그룹 1 당량에 대하여 상기 과산화물의 퍼옥사이드 그룹이 1 내지 5 당량이 되도록 반응되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 21

제 12항에 있어서, 상기 제 1단계에서 과산화물은 m-CPBA(meta-chloroperoxybenzoic acid), H₂O₂, DMDO(dimethyldioxirane) 및 옥손(oxone) 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 22

제 12항에 있어서, 상기 제 1단계는 상온 내지 100℃로 1 내지 120시간 동안 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 23

제 12항에 있어서, 상기 제 1단계에서 상기 임의의 염기는 KOH, NaOH, K₂CO₃, KHCO₃, NaH, 트리에틸아민, 및 디이소프로필에틸 아민으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 24

제 12항에 있어서, 상기 제 1단계에서 상기 용매는 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메틸렌 클로라이드(MC) 및 클로로포름으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 25

제 9항 또는 제 12항에 있어서, 상기 제 2단계는 상기 화학식 3의 중간체의 알케닐 치환기 1당량에 대하여 상기 화학식 R2의 알콕시실란이 1 당량 내지 3당량이 되도록 반응되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 26

제 9항 또는 제 12항에 있어서, 상기 제 2단계는 상온 내지 120℃에서 1시간 내지 72시간 동안 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 27

제 9항 또는 제 12항에 있어서, 상기 제 2단계에서 금속촉매는 PtO₂ 또는 H₂PtCl₆(Chloroplatinic acid)인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

청구항 28

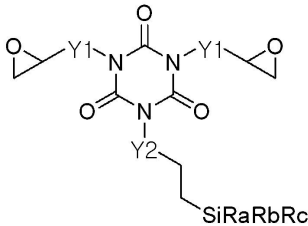
제 9항 또는 제 12항에 있어서, 상기 제 2단계에서 용매는 톨루엔, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 및 메틸렌 클로라이드(MC)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법.

조방법.

청구항 29

하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물.

[화학식 1]



(상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

청구항 30

제 29항에 있어서, 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 에폭시 화합물을 추가로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 31

제 30항에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀, 비페닐, 나프탈렌, 벤젠, 티오디페놀, 플루오렌, 안트라센, 이소시아누레이트, 트리페닐메탄, 1,1,2,2-테트라페닐에탄, 테트라페닐메탄, 4,4'-디아미노디페닐메탄, 아미노페놀 시클로 지방족, 또는 노볼락 유닛을 갖는 에폭시 조성물.

청구항 32

제 31항에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비페닐, 나프탈렌, 또는 플루오렌을 갖는 에폭시 조성물.

청구항 33

제 29항 내지 제 32항 중 어느 한 항에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아네이트 에폭시 화합물 10 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되

는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 90wt% 로 포함하는 에폭시 조성물.

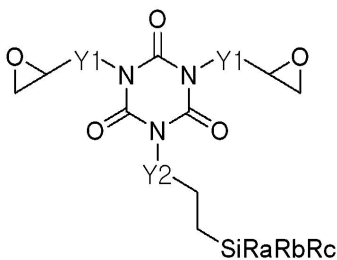
청구항 34

제 33항에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아네이트 에폭시 화합물 30 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 70wt% 로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 35

하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 경화제를 포함하는 에폭시 조성물.

[화학식 1]



(상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

청구항 36

제 35항에 있어서, 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물을 추가로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 37

제 36항에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀, 비페닐, 나프탈렌, 벤젠, 티오디페놀, 플루오렌(fluorene), 안트라센, 이소시아누레이트, 트리페닐메탄, 1,1,2,2-테트라페닐에탄, 테트라페닐메탄, 4,4'디아미노디페닐메탄, 아미노페놀 시클로 지방족, 또는 노볼락 유닛을 갖는 에폭시 조성물.

청구항 38

제 37항에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비페닐, 나프탈렌, 또는 플루오린(fluorine)

을 갖는 에폭시 조성물.

청구항 39

제 35항 내지 제 38항 중 어느 한 항에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 10 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 90wt% 로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 40

제 39항에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 30 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 70wt% 로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 41

제 29항 내지 제 40항 중 어느 한 항에 있어서, 경화촉진제를 추가로 포함하는 에폭시 조성물.

청구항 42

제 29항 내지 제 41항 중 어느 한 항에 있어서, 무기입자 또는 섬유를 추가로 포함하는, 에폭시 조성물.

청구항 43

제 42항에 있어서, 상기 에폭시 조성물이 섬유를 포함하는 경우에, 무기입자를 또한 추가로 포함하는, 에폭시 조성물.

청구항 44

제 42항 또는 제 43항에 있어서, 상기 무기입자는 실리카, 지르코니아, 티타니아, 알루미늄, 질화규소 및 질화알루미늄으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 금속산화물, 및 T-10형 실세스퀴녹산, 래더(ladder)형 실세스퀴녹산, 및 케이지형 실세스퀴녹산로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 에폭시 조성물.

청구항 45

제 42항에 있어서, 상기 에폭시 조성물에서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 5wt% 내지 95wt%인 에폭시 조성물.

청구항 46

제 45항에 있어서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 30wt% 내지 95wt%인 에폭시 조성물.

청구항 47

제 46항에 있어서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 5wt% 내지 60wt%인 에폭시 조성물.

청구항 48

제 43항에 있어서, 상기 무기입자는 총 레진 함량의 1wt% 내지 70wt%인 에폭시 조성물.

청구항 49

제 42항에 있어서, 상기 섬유는 E 유리섬유, T 유리섬유, S 유리섬유, NE 유리섬유, E 유리섬유, D 유리섬유, 및 석영 유리섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 유리섬유 및 액정 폴리에스테르 섬유, 폴리에틸렌테레프탈레이트 섬유, 전방향축 섬유, 폴리옥시벤자졸 섬유, 나일론 섬유, 폴리에틸렌 나프탈레이트 섬유, 폴리프로필렌 섬유, 폴리에테르 술폰 섬유, 폴리비닐리덴플로라이드 섬유, 폴리에틸렌 술파이드 섬유, 및 폴리에테르에테르케톤 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 유기 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 에폭시 조성물.

청구항 50

제 49항에 있어서, 상기 섬유는 E 유리섬유인 에폭시 조성물.

청구항 51

제 49항에 있어서, 상기 섬유는 T 유리섬유인 에폭시 조성물.

청구항 52

제 42항, 제 49항, 제 50항 또는 제 51항에 있어서, 상기 에폭시 조성물의 총 중량에 대하여 상기 섬유는 10 wt% 내지 90wt%로 포함되는 에폭시 조성물.

청구항 53

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 전자재료.

청구항 54

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 프리프레그.

청구항 55

제 54항의 프리프레그에 금속층이 배치된 적층판.

청구항 56

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 기관.

청구항 57

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 필름.

청구항 58

제 54항의 프리프레그를 포함하는 인쇄배선판.

청구항 59

제 58항의 인쇄배선판을 포함하는 반도체장치.

청구항 60

제 29항 내지 제 52항 중 어느 한 항의 에폭시 조성물을 포함하는 반도체 패키징 재료.

청구항 61

제 60항의 반도체 패키징 재료를 포함하는 반도체 장치.

청구항 62

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 접착제.

청구항 63

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 도료.

청구항 64

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물을 포함하는 복합재료.

청구항 65

제 29항 내지 제 52항 중 어느 일 항의 에폭시 조성물의 경화물.

청구항 66

열팽창계수가 15ppm/°C이하인 제 35항 내지 제 52항 중 어느 한 항에 의한 에폭시 조성물의 경화물.

청구항 67

유리전이온도가 100℃ 보다 높거나 유리전이온도를 나타내지 않는 제 35항 내지 제 52항 중 어느 한 항에 의한 에폭시 조성물의 경화물.

청구항 68

열팽창계수가 50ppm/℃ 내지 150ppm/℃인 제 29항 내지 제 34항 중 어느 한 항에 의한 에폭시 조성물의 경화물.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 복합체에서 우수한 내열특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내는 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물(이하, '알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물'이라 함), 이의 제조방법, 이를 포함하는 조성물과 경화물 및 이의 용도에 관한 것이다. 보다 상세하게, 본 발명은 복합체에서 우수한 내열특성, 구체적으로, 낮은 열팽창계수(CTE, Coefficient of Thermal Expansion)와 높은 유리전이온도 상승효과(이는 유리 전이 온도를 나타내지 않는 Tg 리스를 포함함) 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내며 복합화시 별도의 실란커플링제를 필요로 하지 않는 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물, 이의 제조방법, 이를 포함하는 조성물과 경화물 및 이의 용도에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 고분자재료, 구체적으로 에폭시화합물 자체 경화물의 열팽창계수는 대략 50~80 ppm/℃로 무기입자인 세라믹재료 및 금속재료의 열팽창계수(예를 들어, 실리콘의 열팽창계수는 3~5 ppm/℃이며, 구리의 열팽창계수는 17ppm/℃임)에 비하여 열팽창계수 값이 수배~수십배 정도로 매우 크다. 따라서, 예를 들어, 반도체, 디스플레이 분야 등에서 고분자 재료가 무기재료 또는 금속재료와 함께 사용되는 경우에, 고분자 재료와 무기재료 또는 금속재료의 서로 다른 열팽창계수로 인하여 고분자 재료의 물성 및 가공성이 현저하게 제한된다. 또한, 예를 들어 실리콘 웨이퍼와 고분자기판이 인접하여 사용되는 반도체 패키징 등의 경우나, 가스 배리어 특성을 부여하기 위해 무기 차단막을 고분자 필름 위에 코팅하는 경우에, 공정 및/또는 사용 온도 변화시 구성성분간의 현저한 열팽창계수의 차이(CTE-mismatch)로 인하여 무기층의 크랙 생성, 기판의 휨 발생, 코팅층의 박리(peeling-off), 기판 깨짐 등 제품불량이 발생한다.

[0003] 이와 같은 고분자 재료의 큰 CTE 및 이로 인한 고분자 재료의 치수변화(dimensional change)로 인하여 차세대 반도체 기판, PCB(printed circuit board), 패키징(packaging), OTFT(Organic Thin Film Transistor), 가요성 디스플레이 기판(flexible display substrate)등의 기술개발이 제한된다. 구체적으로, 현재 반도체 및 PCB 분야에서는 금속/세라믹 재료에 비해 매우 높은 CTE를 갖는 고분자 재료로 인하여, 고집적화, 고미세화, 플렉서블화, 고성능화 등이 요구되는 차세대 부품의 설계와 가공성 및 신뢰성 확보에 어려움을 겪고 있다. 다시 말하자면, 부품 공정온도에서의 고분자 재료의 높은 열팽창특성으로 인하여 부품 제조시, 불량이 발생할 뿐만 아니라 공정이 제한되고 부품의 설계 그리고 가공성 및 신뢰성 확보가 문제시된다. 따라서, 전자부품의 가공성 및 신뢰성 확보를 위해 고분자 재료의 개선된 열팽창 특성, 즉 치수안정성이 요구된다.

[0004] 현재까지 고분자 재료, 예를 들어 에폭시 화합물의 열팽창특성을 개선(즉, 작은 열팽창계수)하기 위해서는 일반적으로 (1) 에폭시 화합물을 무기입자(무기필러) 및/또는 섬유와 복합화하거나 (2) 새로운 합성법으로 CTE가 감소된 새로운 에폭시 화합물을 설계하는 방법이 사용되어 왔다.

[0005] 열팽창특성 개선을 위해 에폭시 화합물과 충전제로서 무기입자를 복합화하는 경우에는 수십 nm에서 수십 μm크기의 실리카 필러를 다량 사용해야만 CTE 감소 효과를 볼 수 있다. 그러나, 다량의 무기입자 충전으로 인하여 가

공성 및 부품의 물성이 저하되는 문제가 수반된다. 즉, 다량의 무기입자로 인한 유동성 감소 및 협간 충전시 보이드 형성 등이 문제시된다. 또한, 무기입자의 첨가로 인하여 재료의 점도가 기하급수적으로 증가된다. 나아가, 반도체 구조의 미세화로 인하여 무기입자의 크기가 감소되는 경향이나, 1 μ m이하의 필러를 사용하면 유동성 저하(점도증가) 문제가 훨씬 심각해진다. 그리고, 평균입경이 큰 무기입자를 사용하는 경우에는 수지와 무기입자를 포함하는 조성물의 적용부위에 미충진되는 빈도가 높아진다. 한편, 유기수지와 충전제로서 섬유를 포함하는 조성물을 사용하는 경우에도 CTE는 크게 감소되지만, 실리콘 칩 등에 비해 여전히 높은 CTE를 보인다.

[0006] 상기한 바와 같이, 현재의 에폭시 화합물의 복합화 기술의 한계로 인하여 차세대 반도체 기판 및 PCB 등의 고집적된 고성능의 전자부품의 제조가 제한된다. 따라서 종래 열경화성 고분자 복합체의 높은 CTE와 이로 인한 내열 특성 및 가공성 부족 등과 같은 문제를 개선하기 위한 개선된 열팽창 특성, 즉, 낮은 CTE 및 높은 유리전이온도 특성을 갖는 에폭시 복합체의 개발이 요구된다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명의 일 실시형태에 의하면, 복합체에서 향상된 내열특성, 구체적으로는 낮은 CTE와 높은 유리전이 온도 특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내는 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

[0008] 본 발명의 다른 실시형태에 의하면, 복합체에서 향상된 내열특성, 구체적으로는 낮은 CTE와 높은 유리전이 온도 특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내는 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0009] 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 복합체에서 향상된 내열특성, 구체적으로는 낮은 CTE와 높은 유리전이 온도 특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내는 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0010] 나아가, 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 복합체에서 향상된 내열특성, 구체적으로는 낮은 CTE와 높은 유리전이 온도 특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타내는 본 발명의 일 실시형태에 의한 에폭시 조성물의 경화물이 제공된다.

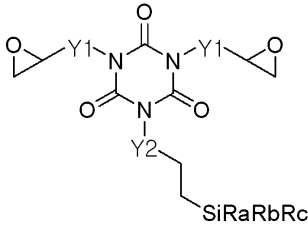
[0011] 또한, 본 발명의 다른 실시형태에 의하면, 본 발명의 일 실시형태에 의한 에폭시 조성물의 용도가 제공된다.

과제의 해결 수단

[0012] 본 발명의 제 1건지에 의하면,

[0013] 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

[0014] [화학식 1]



[0015]

[0016] (상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일(alkanediyl), C6-C10 아릴디일(aryldiyl) 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

[0017] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아릴 그룹이며, 상기 알킬 그룹 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아릴 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0018] 본 발명의 제 2건지에 의하면,

[0019] 제 1 건지에 있어서, 상기 Y1은 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

[0020] 본 발명의 제 3건지에 의하면,

[0021] 제 1건지에 있어서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

[0022] 본 발명의 제 4건지에 의하면,

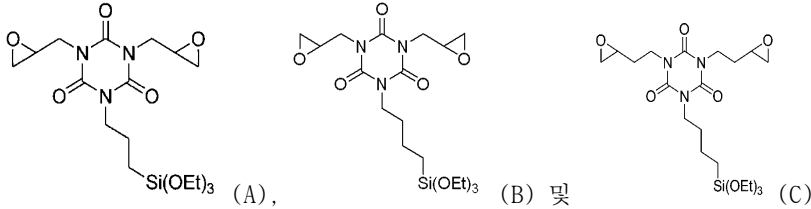
[0023] 제 1건지에 있어서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

[0024] 본 발명의 제 5건지에 의하면,

[0025] 제 1건지에 있어서, 상기 R_a 내지 R_c는 에폭시기인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

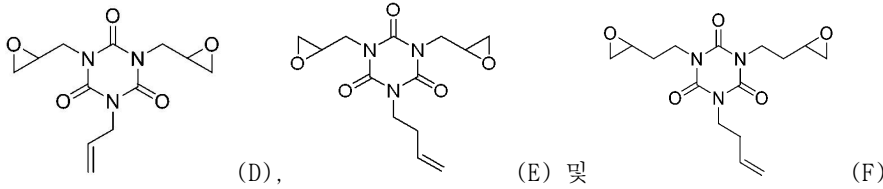
[0026] 본 발명의 제 6건지에 의하면,

[0027] 제 1건지에 있어서, 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 하기 화학식 (A) 내지 (C)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.



[0029] 본 발명의 제 7건지에 의하면,

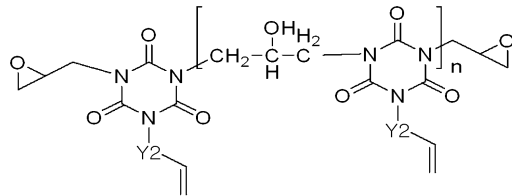
[0030] 하기 화학식 (D) 내지 (F)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 화합물이 제공된다.



[0032] 본 발명의 제 8건지에 의하면,

[0033] 하기 화학식 2의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 폴리머가 제공된다.

[0034] [화학식 2]



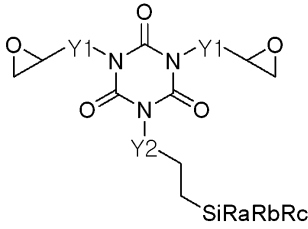
[0036] (상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, n은 0 내지 100의 정수이다.)

[0037] 본 발명의 제 9건지에 의하면,

[0038] 염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서, 하기 화학식 2-1의 화합물의 알케닐화 및 에폭시화로 하기 화학식 3의 중간체를 형성하는 제 1 단계; 및

[0039] 상기 화학식 3의 중간체와 하기 화학식 R2의 알콕시실란을 금속촉매 및 임의의 용매존재하에서 반응시키는 제 2 단계를 포함하는 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0040] [화학식 1]

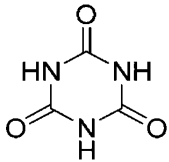


[0041]

[0042] (상기 화학식 1에서, Y1은 -CH₂-이고, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

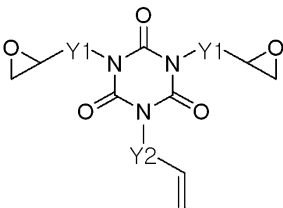
[0043] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아릴 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아릴킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0044] [화학식 2-1]



[0045]

[0046] [화학식 3]



[0047]

[0048] (상기 화학식 3에서 Y1은 -CH₂-이며, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0049] [화학식 R2]

[0050] HSiR_aR_bR_c

[0051] (상기 화학식 R2에서 R_a내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아릴킬 그룹이며, 상기 알콕시 및 알킬 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아릴킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0052] 본 발명의 제 10건지에 의하면,

[0053] 제 9건지에 있어서, 상기 제 1 단계는 상기 화학식 2-1의 화합물과 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물을 반응시키는 알케닐화 다음에 원위치에서 에피클로로히드린과 연속적으로 반응시키는 에폭시화로 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0054] [화학식 R1]

[0055] $X-Y2-CH=CH_2$

[0056] (상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, $-O-SO_2-CH_3$, $-O-SO_2-CF_3$, 또는 $-O-SO_2-C_6H_4-CH_3$ 이다.)

[0057] 본 발명의 제 11건지에 의하면,

[0058] 제 9건지에 있어서, 상기 제 1 단계는 상기 화학식 2-1의 화합물과 에피클로로히드린과 반응시키는 에폭시화 다음에 원위치에서 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물과 연속적으로 반응시키는 알케닐화로 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0059] [화학식 R1]

[0060] $X-Y2-CH=CH_2$

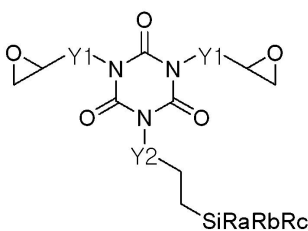
[0061] (상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, $-O-SO_2-CH_3$, $-O-SO_2-CF_3$, 또는 $-O-SO_2-C_6H_4-CH_3$ 이다.)

[0062] 본 발명의 제 12건지에 의하면,

[0063] 하기 화학식 2-2의 화합물과 과산화물을 임의의 염기 및 임의의 용매 존재하에서 반응시켜서 하기 화학식 3의 중간체를 형성하는 제 1 단계; 및

[0064] 상기 화학식 3의 중간체와 하기 화학식 R2의 알콕시실란을 금속촉매 및 임의의 용매 존재하에서 반응시키는 제 2 단계를 포함하는, 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0065] [화학식 1]



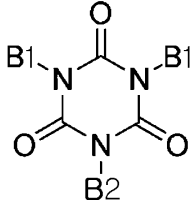
[0066]

[0067] (상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구

성되는 그룹으로부터 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

[0068] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

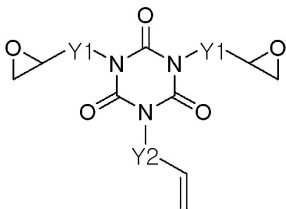
[0069] [화학식 2-2]



[0070]

[0071] (상기 화학식 2-2에서 B1은 -Y1-CH=CH₂이고 B2는 -Y2-CH=CH₂이며, 상기 Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있고, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0072] [화학식 3]



[0073]

[0074] (상기 화학식 3에서, 상기 Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있고, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0075] [화학식 R2]

[0076] HSiR_aR_bR_c

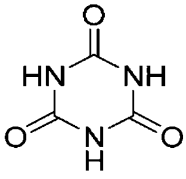
[0077] (상기 화학식 R2에서 R_a내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알콕시 및 알킬 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0078] 본 발명의 제 13견지에 의하면,

[0079] 제 12견지에 있어서, 상기 화학식 2-2의 화합물은 하기 화학식 2-1의 화합물과 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물

을 염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서 반응시켜서 얻어지는 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0080] [화학식 2-1]



[0081]

[0082] [화학식 R1]

[0083] X-Y2-CH=CH₂

[0084] (상기 화학식 R1에서, Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며, 상기 X는 Cl, Br, I, -O-SO₂-CH₃, -O-SO₂-CF₃, 또는 -O-SO₂-C₆H₄-CH₃이다.)

[0085] 본 발명의 제 14건지에 의하면,

[0086] 제 10건지에 있어서, 상기 제 1단계는 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 상기 화학식 R1의 화합물의 알케닐기가 0.3 당량 내지 5당량이 되도록 첨가하여 반응시키고 그 후에, 연속적으로 원-위치에서 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 에피클로로히드린이 1 당량 내지 10당량이 되도록 첨가하여 반응시키는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0087] 본 발명의 제 15건지에 의하면,

[0088] 제 11건지에 있어서, 상기 제 1단계는 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 에피클로로히드린이 0.6 당량 내지 10당량이 되도록 첨가하여 반응시키고 그 후에, 연속적으로 원-위치에서 상기 화학식 2-1의 화합물의 아민 1 당량에 대하여 알케닐기가 0.3 당량 내지 5당량이 되도록 반응시키는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0089] 본 발명의 제 16건지에 의하면,

[0090] 제 9건지에 있어서, 상기 알케닐화는 상온 내지 150℃에서 1 내지 24시간 동안 행하며, 상기 에폭시화는 상온 내지 150℃에서 1 내지 24시간 동안 행하는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0091] 본 발명의 제 17건지에 의하면,

[0092] 제 9건지에 있어서, 상기 제 1단계에서 염기는 NaH, KOH, NaOH, K₂CO₃ 및 Na₂CO₃로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0093] 본 발명의 제 18건지에 의하면,

[0094] 제 9건지에 있어서, 상기 제 1단계에서 촉매는 테트라 메틸 암모늄 클로라이드, 테트라메틸 암모늄 브로마이드,

테트라 부틸 암모늄 아이오다이드, 트리메틸 벤질 암모늄 클로라이드, 및 트리에틸 벤질 암모늄클로라이드로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0095] 본 발명의 제 19견지에 의하면,

[0096] 제 9견지에 있어서, 상기 제 1단계에서 용매는 1,4-디옥산, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메탄올 및 에탄올로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0097] 본 발명의 제 20견지에 의하면,

[0098] 제 12견지에 있어서, 제 1단계는 상기 화학식 2-2의 화합물의 알케닐 그룹 1 당량에 대하여 상기 과산화물의 퍼옥사이드 그룹이 1 내지 5 당량이 되도록 반응되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0099] 본 발명의 제 21견지에 의하면,

[0100] 제 12견지에 있어서, 상기 제 1단계에서 과산화물은 m-CPBA(meta-chloroperoxybenzoic acid), H₂O₂, DMDO(dimethyldioxirane) 및 옥손(oxone) 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0101] 본 발명의 제 22견지에 의하면,

[0102] 제 12견지에 있어서, 상기 제 1단계는 상온 내지 100℃로 1 내지 120시간 동안 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0103] 본 발명의 제 23견지에 의하면,

[0104] 제 12견지에 있어서, 상기 제 1단계에서 상기 임의의 염기는 KOH, NaOH, K₂CO₃, KHCO₃, NaH, 트리에틸아민, 및 디이소프로필에틸 아민으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0105] 본 발명의 제 24견지에 의하면,

[0106] 제 12견지에 있어서, 상기 제 1단계에서 상기 용매는 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메틸렌 클로라이드(MC) 및 클로로포름으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0107] 본 발명의 제 25견지에 의하면,

[0108] 제 9견지 또는 제 12견지에 있어서, 상기 제 2단계는 상기 화학식 3의 중간체의 알케닐 치환기 1당량에 대하여 상기 화학식 R2의 알콕시실란이 1 당량 내지 3당량이 되도록 반응되는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0109] 본 발명의 제 26견지에 의하면,

[0110] 제 9건지 또는 제 12건지에 있어서, 상기 제 2단계는 상온 내지 120℃에서 1시간 내지 72시간 동안 행하여지는, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0111] 본 발명의 제 27건지에 의하면,

[0112] 제 9건지 또는 제 12건지에 있어서, 상기 제 2단계에서 금속촉매는 PtO₂ 또는 H₂PtCl₆(Chloroplatinic acid)인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

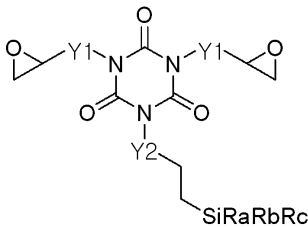
[0113] 본 발명의 제 28건지에 의하면,

[0114] 제 9건지 또는 제 12건지에 있어서, 상기 제 2단계에서 용매는 톨루엔, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 및 메틸렌 클로라이드(MC)로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다.

[0115] 본 발명의 제 29건지에 의하면,

[0116] 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0117] [화학식 1]



[0118]

[0119] (상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

[0120] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.)

[0121] 본 발명의 제 30건지에 의하면,

[0122] 제 29건지에 있어서, 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 에폭시 화합물을 추가로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0123] 본 발명의 제 31건지에 의하면,

[0124] 제 30건지에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀, 비페닐, 나프탈렌,

벤젠, 티오디페놀, 플루오렌, 안트라센, 이소시아누레이트, 트리페닐메탄, 1,1,2,2-테트라페닐에탄, 테트라페닐메탄, 4,4'디아미노디페닐메탄, 아미노페놀 시클로 지방족, 또는 노볼락 유닛을 갖는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0125] 본 발명의 제 32건지에 의하면,

[0126] 제 31건지에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비페닐, 나프탈렌, 또는 플루오렌을 갖는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0127] 본 발명의 제 33건지에 의하면,

[0128] 제 29건지 내지 제 32건지 중 어느 한 건지에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아네이트 에폭시 화합물 10 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 90wt% 로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

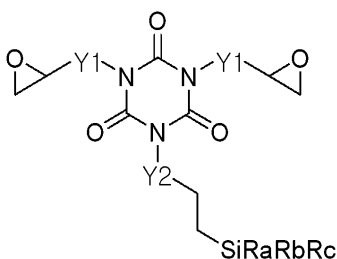
[0129] 본 발명의 제 34건지에 의하면,

[0130] 제 33건지에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아네이트 에폭시 화합물 30 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 70wt% 로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0131] 본 발명의 제 35건지에 의하면,

[0132] 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 경화제를 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.

[0133] [화학식 1]



[0134]

[0135] (상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있으며,

[0136] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬, C6-C10 아릴, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알킬 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있

다.)

- [0137] 본 발명의 제 36건지에 의하면,
- [0138] 제 35건지에 있어서, 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물을 추가로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0139] 본 발명의 제 37건지에 의하면,
- [0140] 제 36건지에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀, 비페닐, 나프탈렌, 벤젠, 티오디페놀, 플루오렌(fluorene), 안트라센, 이소시아누레이트, 트리페닐메탄, 1,1,2,2-테트라페닐에탄, 테트라페닐메탄, 4,4'디아미노디페닐메탄, 아미노페놀 시클로 지방족, 또는 노볼락 유닛을 갖는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0141] 본 발명의 제 38건지에 의하면,
- [0142] 제 37건지에 있어서, 상기 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비페닐, 나프탈렌, 또는 플루오린(fluorine)을 갖는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0143] 본 발명의 제 39건지에 의하면,
- [0144] 제 35건지 내지 제 38건지 중 어느 한 건지에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 10 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 90wt% 로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0145] 본 발명의 제 40건지에 의하면,
- [0146] 제 39건지에 있어서, 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 상기 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 30 내지 100wt% 및 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 최소 일종의 에폭시 화합물 0wt% 내지 70wt% 로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0147] 본 발명의 제 41건지에 의하면,
- [0148] 제 29건지 내지 제 40건지 중 어느 일 건지에 있어서, 경화촉진제를 추가로 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0149] 본 발명의 제 42건지에 의하면,
- [0150] 제 29건지 내지 제 41건지 중 어느 일 건지에 있어서, 무기입자 또는 섬유를 추가로 포함하는, 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0151] 본 발명의 제 43건지에 의하면,

- [0152] 제 42건지에 있어서, 상기 에폭시 조성물이 섬유를 포함하는 경우에, 무기입자를 또한 추가로 포함하는, 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0153] 본 발명의 제 44건지에 의하면,
- [0154] 제 42건지 또는 제 43건지에 있어서, 상기 무기입자는 실리카, 지르코니아, 티타니아, 알루미늄, 질화규소 및 질화알루미늄으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 금속산화물, 및 T-10형 실세스퀴녹산, 래더(ladder)형 실세스퀴녹산, 및 케이지형 실세스퀴녹산로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0155] 본 발명의 제 45건지에 의하면,
- [0156] 제 42건지에 있어서, 상기 에폭시 조성물에서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 5wt% 내지 95wt%인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0157] 본 발명의 제 46건지에 의하면,
- [0158] 제 45건지에 있어서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 30wt% 내지 95wt%인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0159] 본 발명의 제 47건지에 의하면,
- [0160] 제 46건지에 있어서, 상기 무기입자는 에폭시 조성물의 총 중량을 기준으로 5wt% 내지 60wt%인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0161] 본 발명의 제 48건지에 의하면,
- [0162] 제 43건지에 있어서, 상기 무기입자는 총 레진 함량의 1wt% 내지 70wt%인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0163] 본 발명의 제 49건지에 의하면,
- [0164] 제 42건지에 있어서, 상기 섬유는 E 유리섬유, T 유리섬유, S 유리섬유, NE 유리섬유, E 유리섬유, D 유리섬유, 및 석영 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 유리섬유 및 액정 폴리에스테르 섬유, 폴리에틸렌테레프탈레이트 섬유, 전방향족 섬유, 폴리옥시벤자졸 섬유, 나일론 섬유, 폴리에틸렌 나프탈레이트 섬유, 폴리프로필렌 섬유, 폴리에테르 숄폰 섬유, 폴리비닐리덴플로라이드 섬유, 폴리에틸렌 숄파이드 섬유, 및 폴리에테르에테르케톤 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 유기 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0165] 본 발명의 제 50건지에 의하면,
- [0166] 제 49건지에 있어서, 상기 섬유는 E 유리섬유인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0167] 본 발명의 제 51건지에 의하면,
- [0168] 제 49건지에 있어서, 상기 섬유는 T 유리섬유인 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0169] 본 발명의 제 52건지에 의하면,

- [0170] 제 42건지, 제 49건지, 제 50건지 또는 제 51건지에 있어서, 상기 에폭시 조성물의 총 중량에 대하여 상기 섬유는 10 wt% 내지 90wt%로 포함되는 에폭시 조성물이 제공된다.
- [0171] 본 발명의 제 53건지에 의하면,
- [0172] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 전자재료가 제공된다.
- [0173] 본 발명의 제 54건지에 의하면,
- [0174] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 프리프레그가 제공된다.
- [0175] 본 발명의 제 55건지에 의하면,
- [0176] 제 54건지의 프리프레그에 금속층이 배치된 적층판이 제공된다.
- [0177] 본 발명의 제 56건지에 의하면,
- [0178] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 기판이 제공된다.
- [0179] 본 발명의 제 57건지에 의하면,
- [0180] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 필름이 제공된다.
- [0181] 본 발명의 제 58건지에 의하면,
- [0182] 제 54건지의 프리프레그를 포함하는 인쇄배선판이 제공된다.
- [0183] 본 발명의 제 59건지에 의하면,
- [0184] 제 58건지의 인쇄배선판을 포함하는 반도체 장치가 제공된다.
- [0185] 본 발명의 제 60건지에 의하면,
- [0186] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 반도체 패키징 재료가 제공된다.
- [0187] 본 발명의 제 61건지에 의하면,
- [0188] 제 60건지의 반도체 패키징 재료를 포함하는 반도체 장치가 제공된다.
- [0189] 본 발명의 제 62건지에 의하면,
- [0190] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 접착제가 제공된다.
- [0191] 본 발명의 제 63건지에 의하면,
- [0192] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 도료가 제공된다.

- [0193] 본 발명의 제 64건지에 의하면,
- [0194] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물을 포함하는 복합재료가 제공된다.
- [0195] 본 발명의 제 65건지에 의하면,
- [0196] 제 29건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지의 에폭시 조성물의 경화물이 제공된다.
- [0197] 본 발명의 제 66건지에 의하면,
- [0198] 열팽창계수가 15ppm/°C이하인 제 35건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지에 의한 에폭시 조성물의 경화물이 제공된다.
- [0199] 본 발명의 제 67건지에 의하면,
- [0200] 유리전이온도가 100°C 보다 높거나 유리전이온도를 나타내지 않는 제 35건지 내지 제 52건지 중 어느 일 건지에 의한 에폭시 조성물의 경화물이 제공된다.
- [0201] 본 발명의 제 68건지에 의하면,
- [0202] 열팽창계수가 50ppm/°C 내지 150ppm/°C인 제 29건지 내지 제 34건지 중 어느 일 건지에 의한 에폭시 조성물의 경화물이 제공된다.

발명의 효과

- [0203] 본 발명에 의한 새로운 알콕시실릴기를 갖는 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물은 복합체에서, 에폭시 화합물 중 알콕시실릴기와 충전제의 화학적 결합에 의해, 에폭시 화합물과 충전제 사이의 화학결합 효율이 향상되며, 이러한 화학결합 효율의 향상으로 인하여, 향상된 내열특성, 즉, 에폭시 복합체의 CTE가 감소되고 유리전이 온도 상승 또는 유리전이온도를 나타내지 않는(이하, 'Tg 리스'라 함) 효과를 나타낸다. 또한, 본 발명에 의한 알콕시실릴기를 갖는 에폭시 화합물을 포함하는 경화물은 알콕시실릴기의 도입에 의해, 우수한 난연성을 나타낸다.
- [0204] 나아가, 본 발명에 의한 에폭시 조성물을 기판의 금속필름에 적용하는 경우에, 금속필름 표면의 작용기와 알콕시실릴기의 화학결합에 의해 금속필름에 대하여 우수한 접착력을 나타낸다. 더욱이, 본 발명의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 조성물은 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물에 의한 상기 화학결합의 효율 향상으로 인하여, 종래 에폭시 조성물에 일반적으로 배합되던 실란커플링제의 배합을 필요로 하지 않는다. 상기 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물은 경화효율이 우수한 것으로 경화에 의한 복합체 형성시, 낮은 CTE 및 높은 유리전이온도 혹은 Tg 리스의 우수한 열팽창특성을 나타낸다.

도면의 간단한 설명

- [0205] 도 1은 실시예 1 및 비교예 1의 온도 변화에 따른 치수변화를 나타내는 그래프이다.
- 도 2는 실시예 3 및 비교예 3의 온도 변화에 따른 치수변화를 나타내는 그래프이다.
- 도 3은 실시예 14의 온도 변화에 따른 치수변화를 나타내는 그래프이다.
- 도 4(a)는 실시예 7의 온도 변화에 따른 치수변화를 그리고 도 4(b)는 비교예 5의 온도 변화에 따른 치수변화를 나타내는 그래프이다.

도 5(a)는 실시예 2의 온도 변화에 따른 치수변화를 그리고 도 5(b)는 실시예 6의 온도 변화에 따른 치수변화를 나타내는 그래프이다.

도 6(a)는 실시예 2 및 비교예 1의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내는 그래프이며, 도 6(b)는 실시예 6 및 비교예 3의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내는 그래프이다.

도 7(a)는 실시예 2 및 실시예 6의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내는 그래프이며, 도 7(b)는 비교예 1 및 비교예 3의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내는 그래프이다.

도 8은 실시예 6과 비교예 4의 복합체 필름의 연소 후 자연 소화 상태를 나타내는 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0206] 본 발명은 에폭시 조성물의 경화에 의한 복합체에서 개선된 내열특성, 구체적으로는 낮은 CTE 및 높은 Tg 혹은 Tg 리스 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 갖는 새로운 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물, 이의 제조방법, 이를 포함하는 에폭시 조성물과 경화물 및 이의 용도를 제공하는 것이다. 본 발명에서 병크라렛 에폭시 화합물 및 충전제인 무기재료(섬유 및/또는 무기입자)를 포함하는 조성물의 경화물을 말한다. 본 발명에서 "경화물"이란 에폭시 화합물을 포함하는 조성물의 경화물을 말하는 것으로, 에폭시 화합물; 경화제; 그리고 임의의 무기재료(충전제), 임의의 경화촉매 및 기타 첨가제로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종을 포함하는, 어떠한 에폭시 화합물을 포함하는 조성물의 경화물을 말한다. 또한, 상기 경화물은 반경화물을 포함하는 의미로 사용된다.

[0207] 본 발명에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물은 경화에 의한 복합체 형성시, 에폭시기는 경화제와 반응하여 경화반응이 진행되고, 알콕시실릴기는 무기재료인 충전제 표면과 계면 결합을 형성한다. 따라서, 매우 우수한 에폭시 복합체 시스템의 화학결합 형성 효율을 나타내므로, 낮은 CTE 및 높은 유리전이온도 상승효과 또는 Tg-리스(loss)를 나타낸다. 따라서, 치수안정성이 향상된다. 뿐만 아니라, 별도의 실란커플링제를 필요로 하지 않는다. 또한, 본 발명에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 경화물은 우수한 난연성을 나타낸다.

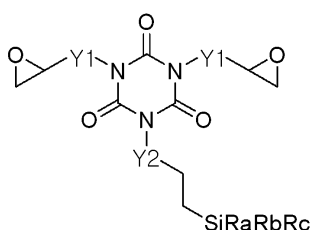
[0208] 나아가, 본 발명에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 에폭시 조성물은 우수한 경화특성을 나타낸다.

[0209] 또한, 본 발명에 의한 에폭시 조성물은 화학적으로 처리된 금속필름, 예를 들어 동박 등에 적용시, 금속표면 처리에 의한 금속표면의 -OH기 등과 화학결합에 의해 금속필름과 우수한 접착력을 나타낸다.

1. 화합물

[0211] 본 발명의 일 실시형태에 의하면, 하기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.

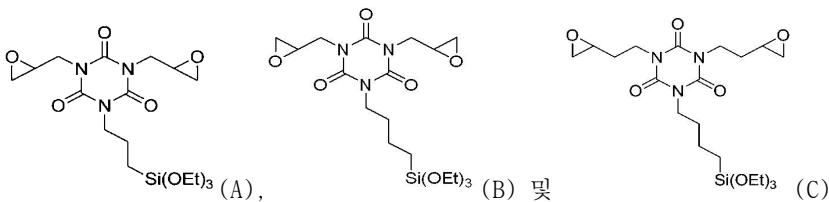
[0212] [화학식 1]



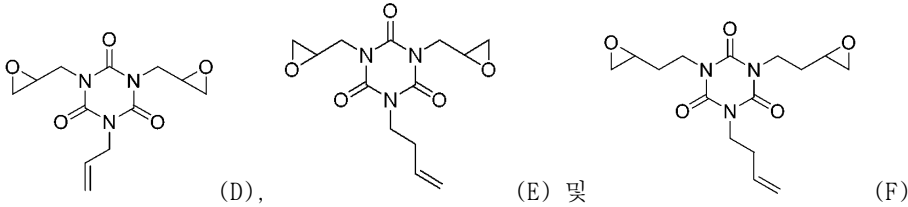
[0213]

- [0214] 상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일(alkanediyl), 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일(aryldiyl) 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일(arylated alkanediyl) 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있다. 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0215] 상기 화학식 1에서, 상기 Y1은 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹, 아릴디일 그룹 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0216] 상기 화학식 1에서, 상기 Y2는 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹, 아릴디일 그룹 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0217] 본 발명의 다른 실시형태에 의하면, 상기 Y1은 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10의 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹, 아릴디일 그룹 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있는, 상기 화학식 1의 알콕시 실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.
- [0218] 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹, 아릴디일 그룹 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있는, 상기 화학식 1의 알콕시 실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.
- [0219] 나아가, 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있는, 상기 화학식 1의 알콕시실릴기계 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 제공된다.
- [0220] 상기 R_a 내지 R_c중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이며, 나머지는 C1-C10 알킬 그룹, C6-C10 아릴 그룹, 또는 C7-C10 아릴킬(아릴화된 알킬) 그룹이며, 상기 알킬 그룹 및 알콕시 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알킬, 알콕시, 아릴기 및 아릴알킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다. 예를 들어, 상기 R_a 내지 R_c는 에톡시기이다.

- [0221] 상기한 Y1, Y2 및 Ra 내지 Rc의 어떠한 정의는 후술하는 알콕시실릴기계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법 및 이를 포함하는 조성물에 동일하게 적용될 수 있다.
- [0222] 본 명세서에서, “알콕시”는 -OR (R은 알킬)인 1가 그룹으로서, 이는 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0223] 본 명세서에서, “알킬”은 1가(monovalent) 탄화수소 그룹을 말하여, 이는 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0224] 본 명세서에서, “알칸디일(alkanediyl)”은 2가(divalent) 탄화수소 그룹을 말하여, 이는 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0225] 본 명세서에서, “아릴”은 1가(monovalent) 방향족 탄화수소 그룹을 말하여, 이는 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0226] 본 명세서에서, “아릴디일”은 2가(divalent) 방향족 탄화수소 그룹을 말하여, 이는 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0227] 본 명세서에서, “아릴킬” 즉, 아릴화된 알킬은 알킬그룹의 수소원자 중 하나가 아릴기로 치환된 1가(monovalent) 그룹을 말하며, 이는 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0228] 본 명세서에서, “아릴화된 알칸디일 (arylated alkanediyl)”은 알킬그룹의 수소원자 중 하나가 아릴기로 치환된 2가(monovalent) 그룹을 말하며, 이는 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.
- [0229] 상기 본 발명의 일 구현에 의한, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 구체적으로 예를 들어, 하기 화학식(A) 내지 (C)일 수 있다.

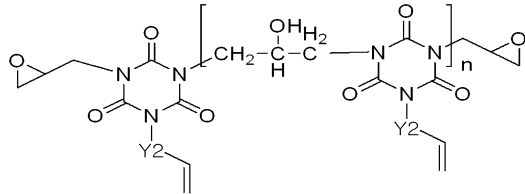


- [0231] 본 발명의 일 실시형태에 의하면, 또한, 하기 화학식(D) 내지 (F)의 중간생성물이 제공된다.



[0233] 나아가, 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 하기 화학식 2의 에폭시 폴리머가 제공된다.

[0234] [화학식 2]



[0235]

[0236] 상기 화학식 2에서, Y2는 상기 어떠한 실시형태의 화학식 1에서 정의한 바와 같으며, n은 0 내지 100의 정수, 바람직하게는 0 내지 10의 정수이다. 상기 화학식 2의 에폭시 폴리머는 후술하는 방법 1에 의한 본 발명의 일 실시형태에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조과정에서, 출발물질인 하기 화학식 2-1의 질소원자와 중간체인 화학식 3의 에폭시기의 반응으로 형성될 수 있다. 본 명세서에서, "에폭시 폴리머"는 올리고머 및 폴리머를 포함하는 의미로 사용된다.

[0237] 2. 에폭시 화합물의 제조방법

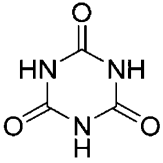
[0238] 본 발명의 다른 실시형태에 의하면, 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 제조방법이 제공된다. 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 다음의 2가지 방법으로 제조될 수 있으며, 각각의 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0239] (방법 1)

[0240] 본 발명의 일 실시형태에 의하면, 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물(Y1=-CH₂-)은 출발물질의 에폭시화 및 알케닐화(제 1단계) 그리고 알콕시실릴화(제 2단계)를 포함하는 방법으로 제조된다. 이하, 상기 방법을 방법 1이라 하며, 이에 대하여 기술한다.

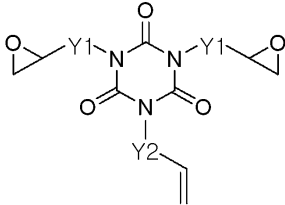
[0241] 상기 제 1단계에서는 하기 화학식 2-1의 이소시아누르산 (isocyanuric acid) (1,3,5-트리아지난-2,4,6-트리온 (1,3,5-triazinane-2,4,6-trione))과 에피클로로히드린 및 하기 화학식 R1의 알케닐 화합물의 반응으로 하기 화학식 3의 디글리시딜 이소시아누레이트중간체가 얻어진다(Y1= -CH₂-). 구체적으로 제 1단계에서는 하기 화학식 2-1 출발물질의 아민의 알케닐화 및 이어서 원-위치(in-situ)에서 에폭시화가 진행되어 화학식 3의 중간체가 형성되거나 (방식 1) 또는 하기 화학식 2-1 출발물질의 아민의 에폭시화 및 이어서 원-위치(in-situ)에서 알케닐화가 연속으로 행하여져서 (방식 2) 화학식 3의 중간체가 형성된다. 제 2단계에서는 하기 화학식 3의 중간체와 알콕시실란의 반응으로 Y1이 -CH₂-인 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 형성된다.

[0242] [화학식 2-1]



[0243]

[0244] [화학식 3]



[0245]

[0246] [화학식 R1]

[0247] X-Y2-CH=CH₂

[0248] 상기 화학식 3에서 Y1은 -CH₂-이며, 화학식 3 및 R1에서 Y2는 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되며, 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.

[0249] 상기 화학식 R1에서 X는 Cl, Br, I, -O-SO₂-CH₃, -O-SO₂-CF₃, 또는 -O-SO₂-C₆H₄-CH₃이다.

[0250] 상기 화학식 2-1의 이소시아누르산의 아민 그룹과 에피클로로히드린 및 상기 알케닐 화합물이 화학양론에 따라 당량비로 반응하므로, 이를 고려하여 화학식 2-1 화합물의 아민 1 당량에 대하여 상기 화학식 R1의 알케닐 화합물의 알케닐기가 0.3 당량내지 5당량이 되도록 첨가하여 반응시키고, 그 후에 연속하여 원-위치에서 상기 화학식 2-1의 이소시아누르산의 아민 1당량에 대하여 에피클로로히드린이 1 당량 내지 10당량이 되도록 에피클로로히드린을 첨가하여 반응시킨다 (이하, '방식 1'이라 한다.)

[0251] 상기한 바와 같이 제 1 단계 반응은 화학식 2-1의 이소시아누르산 출발물질을 에피클로로히드린과 먼저 반응시키고 그 후에 원위치에서 연속하여 알케닐 화합물을 첨가하여 알케닐화 화합물과 반응을 진행할 수도 있다(이하, '방식 2'라 한다). 그러나 방식 1이 방식 2에 비해서 알케닐기 및/또는 에폭시기 농도 제어 및 분자량 제어에 좀더 용이하다는 장점이 있다. 방식 2로 제 1 단계 반응을 진행하는 경우에, 출발물질과 알킬렌 화합물 각각의 당량비 및 반응 조건은 방식 1과 동일하지만, 에피클로히드린과의 반응은 아민 1당량에 대하여 0.6당량 내지 10당량을 사용한다는 것을 제외하고 모든 반응조건은 동일하게 적용될 수 있다. 즉, 화학식 2-1 화합물의 아민 1 당량에 대하여 에피클로로히드린이 0.6 당량 내지 10당량이 되도록 반응시키고, 그 후에 연속하여 원-위치에서, 상기 화학식 2-1 화합물의 아민 1 당량에 대하여 상기 화학식 R1의 알케닐 화합물의 알케닐기가 0.3 당량 내지 5당량이 되도록 첨가하여 반응시킨다.

- [0252] 상기 반응에서 반응물질의 당량비는 도입하고자 하는 작용기(예를 들어, 알케닐기 및/또는 에폭시기)의 수에 따라, 상기 당량비 범위내에서 이 기술분야의 기술자가 용이하게 조절할 수 있으며, 이는 후술하는 다른 방법 및 각 방법에서의 각각의 반응단계에서도 마찬가지이다.
- [0253] 상기 제 1단계에서, 에폭시화 반응은 상온(예를 들어 15°C 내지 25°C) 내지 150°C에서 1 내지 24시간 동안 반응시키고 알케닐화 반응은 상기 화학식 R1의 알케닐 화합물을첨가하고 상온(예를 들어 15°C 내지 25°C) 내지 150°C로 1 내지 24시간 동안 반응을 행한다.
- [0254] 제 1단계 중 에폭시화 반응의 반응온도 및 반응시간은 염기의 종류에 따라 달라지지만, 예를 들어, 상온(예를 들어, 15°C 내지 25°C) 내지 150°C에서 1 내지 24시간 반응시킬 수 있다. 알케닐화 반응의 반응온도 및 반응시간은 알케닐 화합물의 종류에 따라 달라지지만, 예를 들어, 상온(예를 들어, 15°C 내지 25°C) 내지 150°C에서 1 내지 24시간 반응시킴으로써 화학식 3의 중간체인 에폭시 화합물이 얻어진다.
- [0255] 상기 제 1단계 반응, 구체적으로 1단계 반응 중 알케닐화 및 에폭시화 반응은 각각 염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서 행하여진다. 구체적으로, 염기는 알케닐화 반응과 에폭시화 반응에 각각 별도로 첨가된다. 임의의 촉매는 알케닐화 반응 및 에폭시화 반응의 순서에 상관없이 처음 반응에 첨가될 수 있다. 임의의 용매는 필요에 따라, 알케닐화 반응과 에폭시화 반응에 필요에 따라, 반응 순서와 상관없이 처음 반응에 첨가되거나 혹은 두 반응 모두에 적합하게 사용될 수 있다.
- [0256] 상기 제 1 단계의 알케닐화 및 에폭시화 반응에서 염기로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, NaH, KOH, 또는 NaOH와 같은 강염기가 사용될 수 있으며 또한 K_2CO_3 , Na_2CO_3 와 같은 약염기가 사용될 수 있다. 이들 염기는 단독으로 혹은 2가지 이상의 함께 사용될 수 있으며, 알케닐화 및 에폭시화 반응은 각각에서 염기는 화학식 2-1의 화합물의 방향족 아민 1당량에 대하여 0.3 당량 내지 5 당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 좋다. 상기 염기는 화학식 2-1의 화합물에서 질소의 양성자를 탈양성자화(de-protonation)하기 위해 첨가된다. 상기 염기는 알케닐화 및 에폭시화 반응에서 각각 별도로 첨가된다.
- [0257] 상기 제 1 단계 반응에서 촉매는 필요에 따라 임의로 사용할 수 있으며, 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 테트라 메틸 암모늄 클로라이드, 테트라메틸 암모늄 브로마이드, 테트라 부틸 암모늄 아이오다이드, 트리 메틸 벤질 암모늄 클로라이드, 트리에틸 벤질 암모늄클로라이드와 같은 상전이 촉매가 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 이들 촉매는 화학식 2-1의 화합물의 방향족 아민 1당량에 대하여 0.01 당량 내지 0.05 당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 좋다.
- [0258] 제 1 반응단계에서는 용매는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있다. 예를 들어, 제 1 반응단계에서 별도의 용매 없이도 반응온도에서 반응물의 점도가 반응이 진행되기에 적합하면 용매를 사용하지 않을 수 있다. 즉, 반응물의 혼합 및 교반이 용매 없이 원활하게 진행될 수 있을 정도로 반응물의 점도가 낮아지면 별도의 용매를 필요로 하지 않으며, 이는 당업자가 용이하게 판단할 수 있다. 용매를 사용할 경우, 가능한 용매로는 반응물을 잘 용해할 수 있으며, 반응에 어떠한 악영향을 미치지 않고 반응 후에 쉽게 제거될 수 있는 한 어떠한 유기용매가 사용될 수 있으며, 이로써 특히 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 1,4-디옥산, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메탄올, 에탄올 등이 사용될 수 있다. 이들 용매는 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 용매의 사용량은 특히 한정하는 것은 아니며, 반응물이 충분히 용해되고 반응에 바람직하지 않은 영향을 미치지 않는 범위에서 적합한 양으로 사용될 수 있으며, 이 기술분야의 기술자는 이를 고려하여 적합하게 선택할 수 있다.
- [0259] 상기한 바와 같이, 상기 제 1단계의 반응 도중에, 출발물질인 하기 화학식 2-1의 질소원자와 중간체인 화학식 3

의 에폭시기의 반응으로 상기 화학식 2의 폴리머 형태가 형성될 수 있다.

[0260] 그 후, 제 2단계에서는 상기 제 1단계에서 얻어진 상기 화학식 3의 중간체와 알콕시실란의 반응으로 화학식 3의 알케닐 그룹이 알콕시실릴화되어 본 발명의 일 구현에 의한 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물이 얻어진다.

[0261] 제 2 단계에서는, 상기 화학식 3의 중간체와 하기 화학식 R2의 알콕시실란이 상기 화학식 3의 중간체의 알케닐 그룹 1 당량에 대하여 하기 화학식 R2의 알콕시실란이 1당량 내지 3당량이 되도록 반응된다. 또한, 상기 제 2단계는 금속촉매 및 임의의 용매 존재하에서 행하여진다. 나아가, 상기 제 2단계 반응은 상온(예를 들어, 15°C 내지 25°C) 내지 120°C에서 1시간 내지 72시간 동안 반응시켜 행할 수 있다.

[0262] [화학식 R2]

[0263] $\text{HSiR}_a\text{R}_b\text{R}_c$

[0264] 상기 화학식 R2에서 R_a 내지 R_c 중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬 그룹, C6-C10 아릴 그룹, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알콕시기 및 알킬기는 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알콕시, 알킬, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다. 바람직하게, 상기 R_a 내지 R_c 는 에톡시기이다.

[0265] 제 2단계 반응에서, 화학식 3의 중간체와 알콕시실란은 중간체의 알케닐 그룹과 알콕시실란이 화학양론에 따라 당량비로 반응하므로, 이를 고려하여 상기 화학식 3의 화합물의 알케닐 치환기 1 당량에 대하여 상기 화학식 R2의 알콕시실란이 1 당량 내지 3당량 되도록 화학식 3의 중간체와 알콕시실란을 반응시킨다.

[0266] 제 2 단계 반응의 반응온도 및 반응시간은 반응물에 따라 다르지만, 예를 들어, 상온(예를 들어, 15°C 내지 25°C) 내지 120°C에서 1시간 내지 72시간 동안 반응시키므로써 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시화합물이 얻어진다.

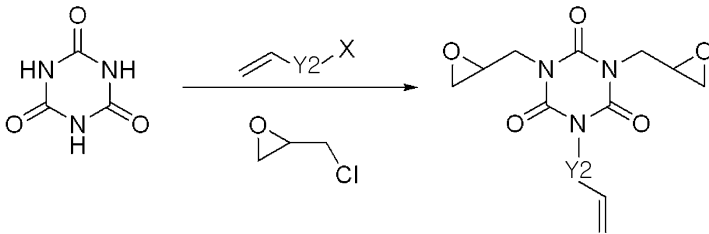
[0267] 상기 제 2 단계 반응에서 금속촉매로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, PtO_2 또는 H_2PtCl_6 (Chloroplatinic acid)가 사용될 수 있다. 백금촉매는 화학식 3의 알케닐 그룹 1 당량에 대하여 0.01 내지 0.05 당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 바람직하다.

[0268] 제 2 단계 반응에서 용매는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있다. 예를 들어, 제 2 반응단계에서 별도의 용매 없이도 반응온도에서 반응물의 점도가 반응이 진행되기에 적합하면 용매를 사용하지 않을 수 있다. 즉, 반응물의 혼합 및 교반이 용매 없이 원활하게 진행될 수 있을 정도로 반응물의 점도가 낮아지면 별도의 용매를 필요로 하지 않으며, 이는 당업자가 용이하게 판단할 수 있다. 용매를 사용할 경우에, 가능한 용매로는 반응물을 잘 용해할 수 있으며, 반응에 어떠한 악영향을 미치지 않고 반응 후에 쉽게 제거될 수 있는 한 어떠한 비양성자성 용매(aprotic solvent)가 사용될 수 있다. 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 톨루엔, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메틸렌 클로라이드(MC) 등이 사용될 수 있다. 이들 용매는 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 용매의 사용량은 특히 한정하는 것은 아니며, 반응물이 충분히 용해되고 반응에 바람직하지 않은 영향을 미치지 않는 범위에서 적합한 양으로 사용될 수 있으며, 이 기술분야의 기술자는 이를 고려하여 적합하게 선택할 수 있다.

[0269] 상기 방법 1의 단계 1 및 2에 의해 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물 (다만, 화학식 1에서 Y1은 -CH₂-임)이 얻어진다. 다만, 상기 방법 1에서는 출발물질인 화학식 2-1이 에피클로로하이드린과 반응하므로, 화학식 1중 Y1은 -CH₂-것이 얻어진다. Y2는 사용되는 R1에 따라, 화학식 1에 정의된 어떠한 Y2 그룹일 수 있다.

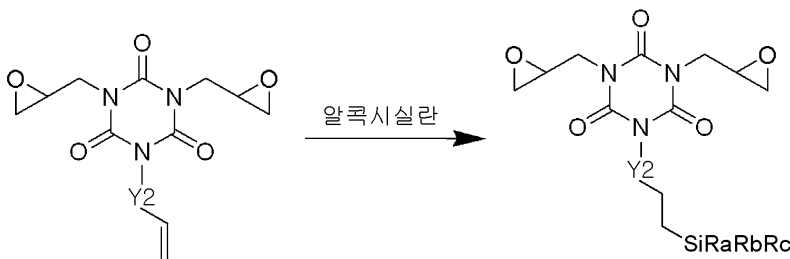
[0270] 방법 1의 반응스킴은 다음과 같다.

[제 1단계]



[0272]

[제 2단계]



[0274]

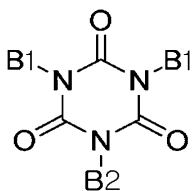
[0275] (상기 식 중, Y2 및 Ra, Rb 및 Rc는 상기 정의한 바와 같다.)

[0276] (방법 2)

[0277] 본 발명의 다른 실시형태에 의하면, 상기 화학식 1의 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 하기 화학식 2-2의 출발물질의 에폭시화(제 1단계) 및 알콕시실릴화(제 2단계)를 포함하는 방법으로 제조된다. 이하, 상기 방법을 '방법 2'라 하며, 이에 대하여 기술한다.

[0278] 구체적으로, 제 1단계에서는 하기 화학식 2-2의 트리 알케닐 이소시아누레이트 출발물질과 과산화물의 반응으로 하기 화학식 3의 중간체가 얻어진다. 즉, 제 1단계에서는 출발물질인 화학식 2-2 화합물의 3개의 알케닐 그룹 중 2개가 과산화물에 의해 에폭시화되어 하기 화학식 3의 중간체가 얻어진다. 상기한 바와 같이, 에폭시화되는 알케닐 그룹의 수는 반응물의 당량비를 조절함으로써 이 기술분야의 기술자가 용이하게 조절할 수 있다.

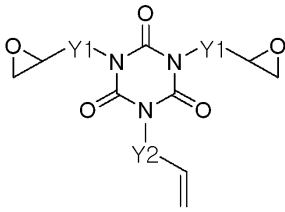
[0279] [화학식 2-2]



[0280]

[0281] 상기 화학식 2-2에서 B1은 $-Y1-CH=CH_2$ 이고 B2는 $-Y2-CH=CH_2$ 이다.

[0282] [화학식 3]



[0283]

[0284] 상기 B1에서의 Y1 및 상기 B2에서의 Y2 그리고 상기 화학식 3에서의 Y1 및 Y2는 상기 본 발명의 어떠한 실시형태에서 제공되는 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물에서 정의된 바와 같다.

[0285] 구체적으로, 상기 Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일(alkanediyl), 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일(aryldiyl) 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일(arylated alkanediyl) 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있다.

[0286] 또한, 상기 Y1은 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 상기 Y2는 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다.

[0287] 일 예로서, 상기 Y1은 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10의 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 또 다른 예로서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 또 다른 예로서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일, 아릴디일 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다.

[0288] 상기 제 1 단계에서, 상기 화학식 2-2의 화합물의 알케닐 그룹과 과산화물이 화학양론에 따라 당량비로 반응하므로 이를 고려하여, 상기 화학식 2-2의 화합물과 과산화물은 화학식 2-2의 화합물의 알케닐 그룹 1당량에 대하여 과산화물의 퍼옥사이드 그룹이 1 당량 내지 5 당량이 되도록 반응된다. 나아가, 상기 제 1단계 반응은 임의의 염기 및 임의의 용매 존재하에서 행할 수 있다. 또한, 상기 제 1단계 반응은 상온(예를 들어 15°C 내지 25°C) 내지 100°C로 1 내지 120시간 동안 반응시켜서 행할 수 있다.

[0289] 제 1 단계 반응의 반응온도 및 반응시간은 화학식 2-2의 구조에 의존하므로 트리 알케닐 이소시아누레이트 화합물의 종류에 따라 달라지지만, 예를 들어, 상온(예를 들어, 15°C 내지 25°C) 내지 100°C로 1 내지 120시간동안

반응시킴으로써 화학식 3의 중간체가 얻어진다.

[0290] 상기 과산화물로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, m-CPBA(meta-chloroperoxybenzoic acid), H₂O₂, DMDO(dimethyldioxirane), 옥손(oxone)이 사용될 수 있다. 이들 과산화물은 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다.

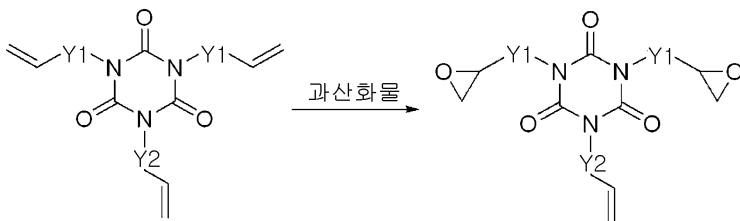
[0291] 상기 제 1 단계 반응에서 염기는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있다. 상기 염기는 반응 후, 사용되는 과산화물의 종류에 따라 잔류할 수 있는 산 성분을 중화시키기 위해 사용된다. 사용가능한 염기의 예로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, KOH, NaOH, K₂CO₃, KHCO₃, NaH, 트리에틸아민, 디이소프로필에틸 아민을 들 수 있다. 이들 염기는 단독으로 혹은 2가지 이상의 함께 사용될 수 있다. 염기가 사용되어야 하는 경우에, 염기는 화학식 2-2의 화합물의 알케닐 그룹 1당량에 대하여 1 당량 내지 5 당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 좋다.

[0292] 제 1 단계 반응에서 용매는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있다. 예를 들어, 제 1 반응단계에서 별도의 용매 없이도 반응온도에서 반응물의 점도가 반응이 진행되기에 적합하면 용매를 사용하지 않을 수 있다. 즉, 반응물의 혼합 및 교반이 용매 없이 원활하게 진행될 수 있을 정도로 반응물의 점도가 낮아지면 별도의 용매를 필요로 하지 않으며, 이는 당업자가 용이하게 판단할 수 있다. 용매를 사용할 경우, 가능한 용매로는 반응물을 잘 용해할 수 있으며, 반응에 어떠한 악영향을 미치지 않고 반응 후에 쉽게 제거될 수 있는 한 어떠한 유기용매가 사용될 수 있으며, 이로써 특히 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), MEK(methyl ethyl ketone), DMF(dimethyl formamide), 메틸렌 클로라이드(MC), DMSO(dimethyl sulfoxide), 클로로포름 등이 사용될 수 있다. 이들 용매는 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 용매의 사용량은 특히 한정하는 것은 아니며, 반응물이 충분히 용해되고 반응에 바람직하지 않은 영향을 미치지 않는 범위에서 적합한 양으로 사용될 수 있으며, 이 기술분야의 기술자는 이를 고려하여 적합하게 선택할 수 있다.

[0293] 상기 방법 2의 제 2 단계는 상기 방법 1의 제 2 단계와 동일하다. 구체적으로, 반응온도, 반응 시간, 반응물의 당량비, 금속촉매 및 임의의 용매의 종류 및 사용량 등을 포함하는 모든 반응조건은 방법 1의 제 2단계와 동일하다.

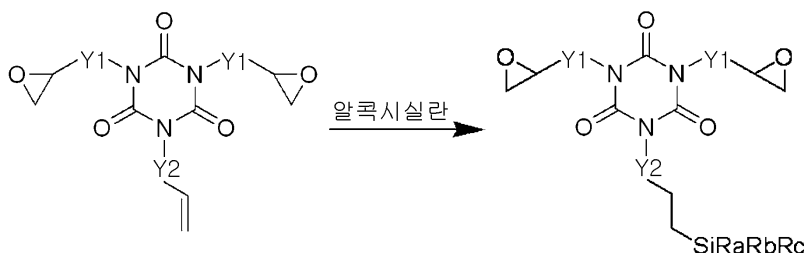
[0294] 상기 반응 2의 반응 스킴은 다음과 같다.

[제 1 단계]



[0296]

[제 2 단계]



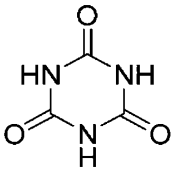
[0298]

[0299] (상기 반응식에서, Y1 및 Y2은 상기 화학식 2-2에서 정의한 바와 같으며, Ra, Rb, 및 Rc는 상기 화학식 1에서 정의한 바와 같다.)

[0300] 한편, 상기 방법 2에서 출발물질로 사용되는 상기 화학식 2-2의 화합물은 시판되는 것을 구입하여 사용할 수도 있으나, 또한, 상기 방법 1의 화학식 2-1의 출발물질을 알케닐화하여 제조할 수 있다.

[0301] 구체적으로, 상기 화학식 2-1의 이소이소시아누르산과 하기 화학식 R1의 알케닐화합물의 반응으로 상기 화학식 2-2의 화합물을 얻을 수 있다.

[0302] [화학식 2-1]



[0303]

[0304] [화학식 R1]

[0305] X-Y2-CH=CH₂

[0306] 상기 화학식 R1에서, Y2는 상기 화학식 2-2 및 화학식 3에서 정의한 바와 같으며, X는 Cl, Br, I, -O-SO₂-CH₃, -O-SO₂-CF₃, 또는 -O-SO₂-C₆H₄-CH₃이다.

[0307] 상기 화학식 2-1의 이소시아누르산의 아민 그룹과상기 화학식 R1의 알케닐 화합물이화학양론에 따라 당량비로 반응하므로, 이를 고려하여 화학식 2-1 화합물의 아민 1 당량에 대하여 상기 화학식 R1의 알케닐 화합물의 알케닐기가 1 당량 내지 5당량이 되도록 첨가하여 반응시킨다.

[0308] 상기 알케닐화 반응은 염기, 임의의 촉매 및 임의의 용매 존재하에서 행하여진다. 알케닐화 반응의 반응온도 및 반응시간은 알케닐기의 종류에 따라 달라지지만, 예를 들어, 상온(예를 들어, 15℃ 내지 25℃) 내지 150℃에서 1 내지 24시간 반응시킴으로써 상기 화학식 2-2의 화합물이 얻어진다.

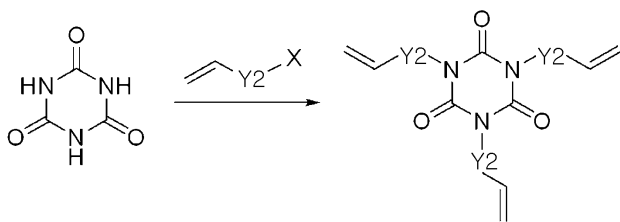
[0309] 상기 염기로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, NaH, KOH, 또는 NaOH와 같은 강염기가 사용될 수 있으며 또한 조건에 따라 K₂CO₃, Na₂CO₃와 같은 약염기가 사용될 수 있다. 이들 염기는 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있으며, 염기는 화학식 2-1의 화합물의 방향족 아민 1당량에 대하여 0.3 당량 내지 5 당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 좋다. 상기 염기는 화학식 2-1의 화합물에서 질소의 양성자를 탈양성자화(de-protonation)하기 위해 첨가된다.

[0310] 상기 제 1 단계 반응에서 촉매는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있으며, 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 테트라 메틸 암모늄 클로라이드, 테트라메틸 암모늄 브로마이드, 테트라 부틸 암모늄 아이오다이드, 트리 메틸 벤질 암모늄 클로라이드, 트리에틸 벤질 암모늄클로라이드와 같은 상전이촉매가 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 이들 촉매는 화학식 2-1의 화합물의 방향족 아민 1당량에 대하여 0.01 당량 내지 0.05

당량으로 사용하는 것이 반응효율 측면에서 좋다.

[0311] 제 1 반응단계에서는 용매는 필요에 따라 임의로 사용될 수 있다. 예를 들어, 제 1 반응단계에서 별도의 용매 없이도 반응온도에서 반응물의 점도가 반응이 진행되기에 적합하면 용매를 사용하지 않을 수 있다. 즉, 반응물의 혼합 및 교반이 용매 없이 원활하게 진행될 수 있을 정도로 반응물의 점도가 낮아지면 별도의 용매를 필요로 하지 않으며, 이는 당업자가 용이하게 판단할 수 있다. 용매를 사용할 경우, 가능한 용매로는 반응물을 잘 용해할 수 있으며, 반응에 어떠한 악영향을 미치지 않고 반응 후에 쉽게 제거될 수 있는 한 어떠한 유기용매가 사용될 수 있으며, 이로써 특히 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 1,4-디옥산, 아세토니트릴, THF(tetra hydro furan), DMF(dimethyl formamide), DMSO(dimethyl sulfoxide), 메탄올, 에탄올 등이 사용될 수 있다. 이들 용매는 단독으로 혹은 2가지 이상이 함께 사용될 수 있다. 용매의 사용량은 특히 한정하는 것은 아니며, 반응물이 충분히 용해되고 반응에 바람직하지 않은 영향을 미치지 않는 범위에서 적합한 양으로 사용될 수 있으며, 이 기술분야의 기술자는 이를 고려하여 적합하게 선택할 수 있다.

[0312] 상기 알케닐화 반응은 다음과 같다.



[0313]

[0314] 상기와 같이, 화학식 2-2의 출발물질을 제조하는 경우에, 상기 화학식 2-1의 알케닐기 부분인 B1 및 B2이 모두 상기 화학식 R1의 알케닐 화합물로부터 유래함으로써 화학식 2-2에서 B1과 B2는 동일(즉, Y1과 Y2가 동일)하다. 따라서, 상기 반응식에서 편의상 Y2 표시하였으며, Y2는 상기 화학식 2-2 및 화학식 3에서 정의한 바와 같다.

[0315] **3. 에폭시 조성물**

[0316] 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 상기 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물을 포함하는 조성물이 제공된다. 구체적으로, 상기 화학식 1에서, Y1 및 Y2는 C1-C10 알칸디일(alkanediyl), 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, C6-C10 아릴디일(aryldiyl) 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일(arylated alkanediyl) 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 각각 독립적으로 선택되며, 같거나 다를 수 있다.

[0317] 일 예로서, 상기 Y1은 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 일 예로서, 상기 Y2는 예를 들어, C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 또한, 일 예로서, 상기 Y1은 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10의 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 나아가, 또 다른 예로서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, 상기 Y2는 C1-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C1-C4 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택될 수 있다. 또 다른 예로서, 상기 Y1은 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로부터 선택되고, Y2는 C2-C10 알칸디일, 예를 들어, C9-C10 알칸디일, 예를 들어, C2-C4 알칸디일, C6-C10 아릴디일 및 C7-C10 아릴화된 알칸디일 그룹으로 구성되는 그룹으로

부터 선택될 수 있다. 상기 알칸디일 그룹은 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알칸디일 그룹, 아릴디일 그룹 및 아릴화된 알칸디일 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다. 화학식 1에서, R_a 내지 R_c 중 적어도 하나는 C1-C10 알콕시 그룹이고 나머지는 C1-C10 알킬 그룹, C6-C10 아릴 그룹, 또는 C7-C10 아랄킬 그룹이며, 상기 알콕시기 및 알킬기는 직쇄상 또는 측쇄상일 수 있고, 고리형 또는 비고리형일 수 있으며, 상기 알콕시, 알킬, 아릴 및 아랄킬 그룹은 N, O, S, 또는 P 헤테로 원자를 갖거나 갖지 않을 수 있다. 바람직하게 상기 R_a 내지 R_c는 에톡시기이다. 상기 정의는, 후술되는 어떠한 에폭시 조성물에도 적용된다.

[0318] 상기 본 발명에서 제공되는 어떠한 조성물은 전자재료용, 구체적으로, 반도체 (예를 들어, 기관, 봉지재료, 빌드업 필름등) 또는 프린트 배선기판등의 전자부품 용도, 접착제, 도료, 복합 재료 등 각종의 용도로 사용될 수 있다. 또한, 상기 본 발명에서 제공되는 어떠한 조성물은 경화성 조성물 및/또는 무기재료를 포함하는 경화성 조성물일 수 있다.

[0319] 본 발명의 일 실시형태에 의한 에폭시 조성물에는 에폭시 화합물로 본 발명의 어떠한 실시형태에 의해 제공되는 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물(이하, '본 발명의 에폭시 화합물'이라 하기도 함)을 포함하는 한, 종래 이 기술분야에 알려져 있는 어떠한 종류 및/또는 배합의 에폭시 조성물이 포함되는 것으로 이해되며, 에폭시 조성물을 구성하는 경화제, 경화촉진제(촉매), 무기재료(충진제)(예를 들어, 무기입자 및/또는 섬유), 기타 통상의 에폭시 화합물 및 기타 첨가제의 종류 및 배합비를 한정하는 것은 아니다.

[0320] 나아가, 이 기술분야에서, 에폭시 조성물, 경화물 및/또는 복합체는 이들의 적용처 및/또는 용도에 따라, 물성 제어 측면에서 다양한 종류의 에폭시가 함께 사용된다. 따라서, 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 에폭시 조성물에서 상기 에폭시 화합물로는 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물뿐만 아니라, 종래 이 기술분야에 알려져 있는 어떠한 종류의 에폭시 화합물(이하, '종래의 에폭시 화합물'이라 하기도 함)을 또한 포함할 수 있다.

[0321] 상기 종래의 에폭시 화합물은 특히 한정하는 것은 아니며 종래 이 기술분야에 알려져 있는 어떠한 에폭시 화합물일 수 있으며, 예를 들어, 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 일종일 수 있다. 나아가, 상기 종래의 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀 S, 비페닐, 나프탈렌, 벤젠, 티오피페놀, 플루오렌 (fluorene), 안트라센, 이소시아누레이트, 트리페닐메탄, 1,1,2,2-테트라페닐에탄, 테트라페닐메탄, 4,4'디아미노디페닐메탄, 아미노페놀 시클로 지방족, 또는 노볼락 유닛를 갖는 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 일종일 수 있다.

[0322] 예를 들어, 상기 종래의 에폭시 화합물은 코어구조로 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀 S, 비페닐, 나프탈렌, 또는 플루오렌을 갖는 글리시딜에테르계 에폭시 화합물, 글리시딜계 에폭시 화합물, 글리시딜아민계 에폭시 화합물, 글리시딜에스테르계 에폭시 화합물, 고무 개질된 에폭시 화합물, 지방족 폴리 글리시딜계 에폭시 화합물 및 지방족 글리시딜 아민계 에폭시 화합물로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 일종일 수 있다.

[0323] 이로써 한정하는 것은 아니지만 예를 들어, 본 발명의 일 실시형태에 의한 어떠한 에폭시 조성물은 에폭시 화합물의 총 중량을 기준으로 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 에폭시 화합물 1 내지 100 wt% 및 종래의 에폭시 화합물 0 내지 99wt%; 예를 들어, 본 발명의 에폭시 화합물 10 내지 100 wt% 및 종래의 에폭시 화합물 0 내지 90wt%; 예를 들어, 본 발명의 에폭시 화합물 30 내지 100 wt% 및 종래의 에폭시 화합물 0 내지 70wt%, 예를 들

어, 본 발명의 에폭시 화합물 50 내지 100 wt% 및 종래의 에폭시 화합물 0 내지 50wt%, 예를 들어, 본 발명의 에폭시 화합물 10 내지 100 wt% 미만 및 종래의 에폭시 화합물 0 초과 내지 90wt%; 예를 들어, 본 발명의 에폭시 화합물 30 내지 100 wt% 미만 및 종래의 에폭시 화합물 0 초과 내지 70wt%; 예를 들어, 본 발명의 에폭시 화합물 50 내지 100 wt% 미만 및 종래의 에폭시 화합물 0 초과 내지 50wt%를 포함할 수 있다.

[0324] 나아가, 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 상기한 본 발명의 어떠한 실시형태에 의한 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 경화제를 포함하는 에폭시 조성물이 제공된다. 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 경화제를 포함하는 에폭시 조성물 또한, 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물과 경화제를 포함하는 한, 종래 이 기술분야에 알려져 있는 어떠한 종류 및/또는 배합의 에폭시 조성물이 포함되는 것으로 이해되며, 에폭시 조성물을 구성하는 경화촉진제(촉매), 무기재료(충진제)(예를 들어, 무기입자 및/또는 섬유), 종래의 어떠한 에폭시 화합물 및 기타 첨가제의 종류 및 배합비를 한정하는 것은 아니다. 상기 화학식 1의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 경화제를 포함하는 에폭시 조성물 또한, 에폭시 화합물로서 종래의 에폭시 화합물을 포함할 수 있으며, 이 경우에 포함될 수 있는 종래의 에폭시 화합물의 종류 및 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물과 종래의 에폭시 화합물의 배합량은 상기한 바와 같다.

[0325] 본 발명의 일 실시형태에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물과 경화제를 포함하는 조성물에서 상기 경화제로는 에폭시 화합물에 대한 경화제로 일반적으로 알려져 있는 어떠한 경화제가 사용될 수 있으며, 이로써 특히 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 아민계 수지, 페놀계 수지, 무수산화물계 등이 사용될 수 있다.

[0326] 보다 구체적으로, 이로써 한정하는 것은 아니지만, 아민계 경화제로는 지방족 아민, 지환족 아민, 방향족 아민, 기타 아민 및 변성폴리아민을 사용할 수 있으며, 2개 이상의 일차 아민기를 포함하는 아민 화합물을 사용할 수 있다. 상기 아민 경화제의 구체적인 예로는 4,4'-디메틸아닐린(디아미노 디페닐 메탄) (4,4'-Dimethylaniline(Diamino diphenyl methane, DAM 또는 DDM), 디아미노 디페닐설폰(Diamino diphenyl sulfone, DDS), m-페닐렌 디아민(m-phenylene diamine)으로 구성되는 그룹으로부터 선택된 1종 이상의 방향족 아민, 디에틸렌트리아민(Diethylene triamine, DETA), 디에틸렌테트라아민(Diethylene tetramine), 트리에틸렌테트라아민(Triethylene Tetramine, TETA), m-크실렌 디아민(m-xylene Diamine, MXDA), 메탄 디아민(Methane Diamine, MDA), N,N'-디에틸렌디아민(N,N'-Diethylenediamine, N,N'-DEDA), 테트라에틸렌펜타아민(Tetraethylenepentaamine, TEPA), 및 헥사메틸렌디아민(Hexamethylenediamine)으로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 1종 이상의 지방족 아민, 이소포론 디아민(Isophorone Diamine, IPDI), N-아미노에틸 피페라진(N-Aminoethyl piperazine, AEP), 비스 (4-아미노 3-메틸시클로헥실)메탄(Bis(4-Amino 3-Methylcyclohexyl)Methane, Larominc 260)으로 구성되는 그룹으로부터 선택된 1종 이상의 지환족아민, 디시안 디아미드(DICY) 등과 같은 기타 아민, 폴리아미드계, 에폭사이드계 등의 변성아민을 들 수 있다.

[0327] 이로써 한정하는 것은 아니지만, 페놀계 경화제의 예로는 페놀노블락 수지, 크레졸 노블락 수지, 비스페놀 A 노블락 수지, 자일렌노블락 수지, 트리페닐 노블락 수지, 비페닐 노블락수지, 디시클로펜타디엔계 노블락수지, 페놀 p-자일렌, 나프탈렌계 페놀노블락 수지, 트리아진계 화합물등을 들 수 있다.

[0328] 이로써 한정하는 것은 아니지만, 무수산화물계 경화제의 예로는 도데세닐 숙신산 무수물(dodecenyl succinic anhydride, DDSA), 폴리 아젤라익 폴리 안하이드리드(poly azelaic poly anhydride)등과 같은 지방족 무수산화물, 헥사하이드로프탈릭 안하이드리드(hexahydrophthalic anhydride, HHPA), 메틸 테트라하이드로프탈릭 안하이드리드(methyl tetrahydrophthalic anhydride, MeTHPA), 메틸나딕 안하이드리드(methyl nadic anhydride, MNA) 등과 같은 지환족 무수산화물, 트리멜리트 안하이드리드(Trimellitic Anhydride, TMA), 피로멜리트산 디안하이드리드(pyromellitic acid dianhydride, PMDA), 벤조페논테트라카르복시산 디안하이드리드(benzophenonetetracarboxylic dianhydride, BTDA) 등과 같은 방향족 무수산화물, 테트라브로모프탈릭 안하이드리드(tetrabromophthalic anhydride, TBPA), 클로렌딕 안하이드리드(chlorendic anhydride) 등과 같은 할로

겐계 무수화합물 등을 들 수 있다.

- [0329] 일반적으로 경화제와 에폭시기의 반응 정도로 에폭시 복합체의 경화도를 조절할 수 있으며, 목적하는 경화도 범위에 따라 에폭시 화합물의 에폭시기의 농도를 기준으로 하여 경화제의 함량을 조절할 수 있다. 예를 들어, 아민 경화제가 사용되는 경우에는, 아민 경화제와 에폭시 그룹의 당량반응에서는 에폭시 당량/아민 당량비가 0.5 내지 2.0이 되도록, 또한, 예를 들어, 0.8 내지 1.5이 되도록 경화제의 함량을 조절하여 사용하는 것이 바람직하다.
- [0330] 아민계 경화제의 경우를 예로 하여 경화제의 배합량에 대하여 설명하였으나, 페놀계 경화제, 무수산화물계 경화제 및 본 명세서에 별도로 기재하지 않은 에폭시 화합물의 경화에 사용될 수 있는 어떠한 경화제 또한 원하는 경화도 범위에 따라 에폭시 조성물 중 총 에폭시기의 농도를 기준으로 하여 에폭시 작용기와 경화제의 반응성 작용기의 화학반응식에 따라 화학양론적 양으로 적합하게 배합하여 사용할 수 있으며, 이는 이 기술분야에서 일반적인 것이다.
- [0331] 상기한 본 발명에서 제공되는 어떠한 에폭시 조성물에서, 경화반응을 촉진하도록 임의의 경화촉진제(촉매)가 필요에 따라 추가로 포함될 수 있다. 경화촉진제(촉매)로는 이 기술분야에서 에폭시 조성물의 경화에 일반적으로 사용되는 것으로 알려져 있는 어떠한 촉매가 사용될 수 있으며, 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 이미다졸계, 제 3급 아민계, 제 4급 암모늄계, 유기산염계, 인 화합물계 등의 경화촉진제가 사용될 수 있다.
- [0332] 보다 구체적으로, 예를 들어, 디메틸 벤질 아민, 2-메틸이미다졸(2MZ), 2-운데실이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸(2E4M), 2-페닐이미다졸, 1-(2-시아노에틸)-2-알킬 이미다졸, 2-헵타데실이미다졸(heptadecylimidazole, 2HDI) 등의 이미다졸계; 벤질디메틸아민(benzyl dimethyl amine, BDMA), 트리스디메틸아미노메틸페놀(DMP-30), 트리에틸렌디아민 등의 3급 아민계 화합물; 테트라부틸암모늄브로마이드 등의 4급 암모늄염; 디아자비스키롤론 데센(DBU)이나 DBU의 유기산염; 트리페닐포스핀, 인산에스테르 등의 인계 화합물, BF₃-모노에틸 아민(BF₃-MEA) 등과 같은 루이스산 등을 들 수 있으며, 이로써 한정하는 것은 아니다. 이들 경화촉진제는 이들의 마이크로 캡슐코팅 및 착염 형성 등으로 잠재화된 것을 사용할 수도 있다. 이들은 경화 조건에 따라 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 병용할 수도 있다.
- [0333] 상기 경화 촉진제의 배합량은, 특히 한정하는 것은 아니며, 이 기술분야에서 일반적으로 사용되는 양으로 배합하여 사용할 수 있다. 예를 들어, 상기 에폭시 화합물에 대하여 0.1 내지 10 phr(parts per hundred resin, 에폭시 화합물 100중량부당의 중량부), 예를 들어, 0.2 내지 5 phr일 수 있다. 경화 촉진제는 경화반응 촉진 효과 및 경화 반응 속도 제어 측면에서 상기 함량으로 사용되는 것이 바람직하다. 상기 경화 촉진제를 상기 범위의 배합량으로 사용함으로써 빠르게 경화가 진행되며 작업처리량의 향상을 기대할 수 있다.
- [0334] 나아가, 본 발명에서 제공되는 어떠한 에폭시 조성물, 예를 들어, 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물 및 필요에 따라 종래의 에폭시 화합물, 경화제 및 촉매로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 일종을 임의로 포함하는 상기한 어떠한 에폭시 조성물은 또한, 무기재료인 충전제로서 무기입자 또는 섬유를 추가로 포함할 수 있다.
- [0335] 무기입자로는 종래 유기수지의 열팽창계수를 감소시키기 위해 사용되는 것으로 알려져 있는 어떠한 무기입자가 사용될 수 있으며, 이로써 한정하는 것은 아니지만, 실리카(예를 들어, 용융 실리카 및 결정성 실리카 포함), 지르코니아, 티타니아, 알루미늄, 질화규소 및 질화알루미늄으로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종의 금속산화물, 및 T-10형 실세스퀴옥산, 래더(ladder)형 실세스퀴옥산, 및 케이지형 실세스퀴옥산로 구성되는 그룹으로부터 선택되는 적어도 일종이 사용될 수 있다. 상기 무기입자는 단독으로 또는 2종 이상의 혼합물로 사용

될 수 있다.

- [0336] 무기입자를 특히 다량 배합하는 경우에는, 용융 실리카를 이용하는 것이 바람직하다. 용융 실리카는 파쇄상이나 구상의 어느 쪽도 사용 가능하지만, 용융 실리카의 배합량을 높이고, 또한 성형 재료의 용융 점도의 상승을 억제하기 위해서는, 구상의 것을 이용하는 것이 바람직하다.
- [0337] 상기 무기입자로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 복합체의 사용용도, 구체적으로는 무기입자의 분산성 등을 고려하여, 입자크기가 0.5nm 내지 수십 μm (예를 들어, 50 μm 내지 100 μm)인 무기입자가 사용될 수 있다. 무기입자는 에폭시 화합물에 분산되므로 입자크기에 따른 분산성의 차이로 인하여 상기한 크기의 무기입자가 함께 사용되는 것이 바람직하다. 뿐만 아니라, 무기입자의 배합량을 높이기 위해서는, 무기입자의 입자 분포가 보다 넓게 하여 배합하는 것이 바람직하다.
- [0338] 본 발명의 일 실시형태에 의한 에폭시 조성물에서 상기 에폭시 화합물에 대하여 무기입자는 에폭시 복합체의 CTE 감소 및 적용시 요구되는 적절한 점도 및 용도에 따라 적합하게 첨가할 수 있는데, 무기입자의 함량은 에폭시 조성물의 총중량을 기준으로 5 wt% 내지 95wt%, 예를 들어, 5wt% 내지 90wt%, 예를 들어 10wt% 내지 90wt%, 예를 들어, 30 wt% 내지 95wt%, 예를 들어, 30wt% 내지 90wt%, 예를 들어, 5 wt% 내지 60wt%, 예를 들어, 10wt% 내지 50wt% 일 수 있다.
- [0339] 보다 구체적으로, 일 예로서, 에폭시 조성물이 반도체 봉지재 등으로 사용되는 경우에는, 이로써 한정하는 것은 아니지만, CTE 값과 재료 가공성을 고려하여 무기입자의 함량은 예를 들어, 에폭시 조성물의 총중량에 대해서 30 wt% 내지 95wt%, 예를 들어, 30wt% 내지 90wt% 일 수 있다. 또한 일 예로서, 에폭시 조성물이 반도체 기판 등으로 사용되는 경우에는, 기판의 CTE 값과 강도 등을 고려하여 무기입자의 함량은 예를 들어, 에폭시 조성물의 총중량에 대해서 5 wt% 내지 60wt%, 예를 들어, 10wt% 내지 50wt% 일 수 있다.
- [0340] 한편, 섬유가 무기재료로 사용되는 경우에는, 주로 섬유에 에폭시 화합물이 적셔지는 방식으로 복합화되므로 섬유의 크기 등이 특히 제한되지 않으며, 이 기술분야에서 일반적으로 사용되는 어떠한 종류 및 치수의 섬유가 사용될 수 있다.
- [0341] 섬유로는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 종래 유기 수지 경화물의 물성개선을 위해 사용되는 일반적인 어떠한 섬유가 사용될 수 있다. 구체적으로는 유리 섬유, 유기 섬유 또는 이들의 혼합물이 사용될 수 있다. 또한, 본 명세서에서 사용된 용어 '유리 섬유'는 유리 섬유뿐만 아니라, 유리 섬유직물, 유리 섬유 부직물 등을 포함하는 의미로 사용된다. 이로써 한정하는 것은 아니지만, 유리 섬유로는 E 유리섬유, T 유리섬유, S 유리섬유, NE 유리섬유, E 유리섬유, D 유리섬유, 석영 유리섬유 등의 유리 섬유를 예로 들 수 있으며, 예를 들어, E 또는 T 유리 섬유를 예로 들 수 있다. 유기 섬유로는 이로써 특별히 한정하는 것은 아니지만, 액정 폴리에스테르 섬유, 폴리에틸렌테레프탈레이트 섬유, 전방향족 섬유, 폴리옥시벤자졸 섬유, 나일론 섬유, 폴리에틸렌 나프탈레이트 섬유, 폴리프로필렌 섬유, 폴리에테르 술폰 섬유, 폴리비닐리덴플로라이드 섬유, 폴리에틸렌 술파이드 섬유, 폴리에테르에테르케톤 섬유로 구성되는 그룹으로부터 선택된 적어도 일종이 단독으로 혹은 이종 이상이 함께 사용될 수 있다.
- [0342] 본 발명에 의한 어떠한 에폭시 조성물에서 충전체로서 섬유가 사용되는 경우에, 섬유의 함량은 에폭시 조성물의 총 중량에 대하여 10wt% 내지 90wt%, 예를 들어, 30wt% 내지 70wt%, 또한 예를 들어, 35wt% 내지 65wt%일 수 있다. 섬유를 포함하는 에폭시 조성물에서, 통상, 섬유를 제외한 부분은 레진 성분으로 칭하여지면, 섬유를 포함하는 에폭시 조성물에서, 섬유 이외의 양은 레진 성분의 양이다. 따라서, 레진 함량은 10wt% 내지 90wt%, 예를 들어, 30wt% 내지 70wt%, 또한 예를 들어, 35wt% 내지 65wt%일 수 있다. 섬유의 함량이 상기 범위인 것이 내열성 향상 및 가공성 측면에서 바람직하다. 상기 에폭시 조성물의 총 중량은 에폭시 화합물, 경화제, 촉매, 무

기재료 및/또는 기타 첨가제 등 에폭시 조성물을 구성하는 모든 조성물 구성성분의 중량의 합을 말한다. 또한, 상기한 바와 같이, 레진 함량은, 섬유 이외의 에폭시 조성물을 구성하는 경화제, 임의의 촉매, 임의의 무기입자, 및 기타 첨가제 등의 모든 구성성분의 함량을 포함하는 의미이다.

[0343] 본 발명에서 제공되는 상기 섬유를 포함하는 어떠한, 에폭시 조성물에는 또한, 필요에 따라, 무기입자가 추가로 포함될 수 있다. 이때 무기입자는 물성 향상 및 공정성을 고려하여, 총 레진 함량의 중량을 기준으로 1wt% 내지 70wt% 범위의 양으로 배합될 수 있다.

[0344] 상기 에폭시 조성물은 에폭시 조성물의 물성을 손상시키지 않는 범위에서, 에폭시 조성물의 물성조절을 위해 통상적으로 배합되는 이형제, 표면 처리제, 난연제, 가소제, 향균제, 레벨링제, 소포제, 착색제, 안정제, 커플링제, 점도조절제, 희석제 등의 기타 첨가제가 또한 필요에 따라 배합될 수 있다.

[0345] 상기한 바와 같이, 본 명세서에서 사용된 용어 "에폭시 조성물"은 본 발명의 에폭시 화합물뿐만 아니라 필요에 따라 상기 에폭시 조성물을 구성하는 다른 구성성분, 예를 들어, 임의의 경화제, 경화촉진제(촉매), 무기재료(충전제)(예를 들어, 무기입자 및/또는 섬유), 기타 통상의 에폭시 화합물 및 용매 이외의 이 기술분야에서 필요에 따라 배합되는 기타 첨가제를 포함할 수 있는 것으로 이해되며, 따라서, "에폭시 조성물의 총 중량"은 용매 이외의 에폭시 조성물을 구성하는 모든 구성성분의 총 중량을 의미하는 것으로 이해된다. 통상, 에폭시 조성물에서 용매는 에폭시 조성물의 공정성 등을 고려하여 에폭시 조성물의 고형분 함량 및/또는 점도를 적절하게 조절하도록 임의로 사용될 수 있다.

[0346] 상기 본 발명의 어떠한 실시형태에서 제공되는 어떠한 에폭시 조성물은 전자재료용으로 사용될 수 있다. 전자재료는 이로써 한정하는 것은 아니지만, 예를 들어, 반도체용 기판, 프리프레그, 프리프레그에 금속층이 배치된 적층판, 기판, 봉지재료 (패키징 재료), 빌드 업 필름 등뿐만 아니라, 인쇄 배선기판 등의 전자부품이다. 또한, 접착제, 도료 및 복합재료 등 각종 용도에 적용될 수 있다. 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 본 발명의 알콕시실릴계 이소시아누레이드 에폭시 화합물을 포함하는 조성물을 포함하는 또는 이로 이루어진 전자재료가 제공된다. 나아가, 상기 전자재료를 포함하거나 이로 이루어지는 반도체 장치가 또한 제공된다. 구체적으로 상기 반도체 장치는 본 발명의 알콕시실릴계 이소시아누레이드 에폭시 화합물을 포함하는 조성물을 포함하는 또는 이로 이루어진 인쇄배선판을 포함(예를 들어, 반도체 소자 탑재)하는 반도체 장치 및/또는 반도체 패키징 재료를 포함하는 반도체 장치일 수 있다. 또한, 상기 본 발명의 어떠한 실시형태에서 제공되는 어떠한 에폭시 조성물을 포함하거나 이로 이루어진 접착제, 도료 또는 복합재료가 제공된다.

[0347] 본 발명의 또 다른 실시형태에 의하면, 상기한 본 발명의 어떠한 실시형태에서 제공되는 에폭시 조성물을 포함하거나 혹은 이로 이루어진 경화물이 제공된다. 상기 본 발명의 어떠한 실시형태에서 제공되는 에폭시 조성물은 실제 적용되는 경우에, 예를 들어, 전자재료 등으로 적용되는 경우에는 경화물로서 사용되며, 이 기술분야에서 에폭시 화합물과 무기 성분인 충전제를 포함하는 조성물의 경화물은 일반적으로 복합체로 칭하여진다.

[0348] 상기한 본 발명의 일 실시형태에서 제공되는 알콕시실릴계 이소시아누레이드 에폭시 화합물은 복합체에서 우수한 내열특성 및/또는 경화물에서 우수한 난연성을 나타낸다.

[0349] 구체적으로, 복합체는 낮은 CTE, 예를 들어, 15ppm/°C 이하, 예를 들어, 12ppm/°C 이하, 예를 들어, 10ppm/°C 이하, 예를 들어, 8ppm/°C 이하, 예를 들어, 6ppm/°C 이하, 예를 들어, 4ppm/°C 이하의 CTE를 나타낸다. CTE 값은 작을수록 물성이 우수한 것으로 CTE의 하한값을 특히 한정하는 것은 아니다.

[0350] 예를 들어, 에폭시 화합물로서 본 발명에 의한 어떠한 알콕시실릴계 이소시아누레이드 에폭시 화합물, 무기재료

로서 유리 섬유, 예를 들어, E-글라스 및/또는 T-글라스유리 섬유를 포함하고, 레진함량이 30wt% 내지 45wt% (레진함량에는 무기입자가 포함될 수도 있고 포함되지 않을 수도 있음)인 복합체는 예를 들어, 10ppm/°C이하, 예를 들어, 8ppm/°C이하, 예를 들어, 6ppm/°C이하, 예를 들어, 4ppm/°C이하의 CTE를 나타낸다.

[0351] 또한, 예를 들어, 에폭시 화합물로서 본 발명에 의한 어떠한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물, 무기재료로서 무기입자, 예를 들어, 실리카 입자를 60 내지 80wt%, 예를 들어 70 내지 80wt% 포함하는 복합체는 20ppm/°C 이하, 예를 들어, 15ppm/°C이하, 예를 들어, 10ppm/°C이하, 예를 들어, 8ppm/°C이하, 예를 들어, 6ppm/°C이하, 예를 들어, 4ppm/°C이하의 CTE를 나타낸다.

[0352] 또한, 본 발명에 의한 복합체(무기재료를 포함하는 경화물)는 Tg가 100°C 보다 높으며, 예를 들어, 130°C이상, 또한, 예를 들어, 250°C 이상 또는 Tg-리스일 수 있다. Tg 값은 클수록 물성이 우수한 것으로 Tg의 상한값을 특히 한정하는 것은 아니다.

[0353] 한편, 본 발명에 의한 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물 자체 경화물(무기재료를 함유하지 않는 경화물)은 50ppm/°C 내지 150ppm/°C의 CTE를 갖는다.

[0354] 본 명세서에서, 범위로 나타낸 값은 특히 달리 언급하지 않는 한 범위의 하한값과 상한값뿐만 아니라 범위 사이의 어떠한 하부 범위 및 그 범위에 속하는 모든 수를 각각 포함함을 의미한다. 예를 들어, C1 내지 C10은 C1, C2, C3, C4, C5, C6, C7, C8, C9, C10 모두를 포함하는 것으로 이해된다. 또한, 수치 범위 중 하한값 또는 상한값이 규정되지 않는 것은 수치가 작을수록 혹은 클수록 바람직한 것으로 특히 이들의 한계를 규정하지 않으며, 어떠한 값을 포함하는 것으로 이해된다. 예를 들어, 4ppm/°C이하의 CTE는, 4, 3.5, 3, 2.7, 2, 1.4, 1, 0.5 ppm/°C 등 범위 사이의 모든 값을 포함하는 것으로 이해된다.

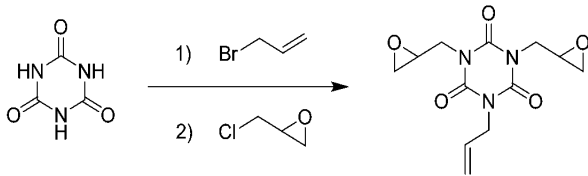
[0355] 이하, 실시예를 통하여 본 발명에 대하여 상세히 설명한다. 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것으로 이로써 본 발명을 한정하는 것은 아니다.

[0356] **합성에 1: 알콕시실릴기를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트 (Y2= -CH₂-)의 합성 (방법 1)**

[0357] (1) 알릴기를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트 중간체의 합성 (단계 1)

[0358] 플라스크에 이소시아누르산 (isocyanuric acid, 알드리치) 30.0g, 알릴 브로마이드 (알드리치) 28g, 탄산칼륨 48g 및 DMSO 773ml를 넣고 상온에서 10분 동안 교반하였다. 그 후, 온도를 80°C로 올린 후 하루 밤새동안 반응시켰다. 그 후, 반응물을 상온으로 온도를 낮춘 후, 여기에 에피클로로히드린 129g, 및 탄산칼륨 96g 넣고 상온에서 10분 교반 후, 온도를 80°C로 하여 20시간 동안 유지하였다. 그 후, 상온으로 온도를 낮춘 후 400ml의 에틸아세테이트 첨가하여 H₂O와 함께 워크 업(work up)하여 무기물을 제거하였다. 유기층에 MgSO₄를 넣어 남아있는 H₂O를 제거한 후, 용매를 증발시켜서 알릴기를 갖는 디글리시딜 이소시아누레이트를 얻었으며, 이의 NMR 데이터 및 단계 1의 반응은 다음과 같다.

[0359] [방법 1의 단계 1]



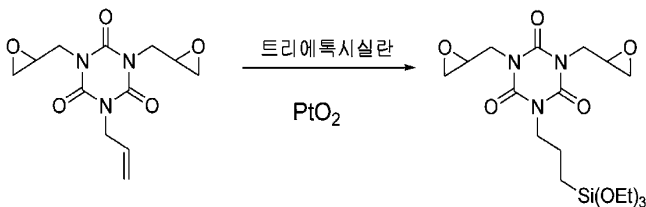
[0360]

[0361] ^1H NMR (400MHz, CDCl_3): δ =2.68-2.70 (m, 2H), 2.83 (t, J =4.8Hz, 2H), 3.24-3.28 (m, 2H), 4.01 (dd, J =0.8, 4.8Hz, 1H), 4.04 (dd, J =0.8, 4.8Hz, 1H), 4.15 (dd, J =2.4, 5.6Hz, 1H), 4.19 (dd, J =2.4, 5.6Hz, 1H), 4.50 (dt, J =1.2, 6.0Hz, 2H), 5.26 (dd, J =1.2, 10.0Hz, 1H), 5.34 (dd, J =1.2, 17.2Hz, 1H), 5.83-5.93 (m, 1H).

[0362] (2) 알콕시실릴화기를 갖는디글리시딜 아이소시아누레이트($\text{Y}_2 = -\text{CH}_2-$)의 합성 (단계 2)

[0363] 상온에서 250ml 플라스크에 상기 단계 1에서 얻어진 중간체인 모노알릴디글리시딜 아이소시아누레이트 7.59g, 트리에톡시실란 (알드리치) 6.48ml, 백금 산화물 72mg, 및 톨루엔 150ml을 넣고 아르곤을 충전한 후, 85°C에서 48시간 동안 교반하였다. 그 후, 셀라이트 필터(celite filter)로 여과하고 증발기를 이용하여 용매를 제거하여 최종 목적물을 얻었다. 최종 목적물의 NMR 데이터 및 단계 2의 반응은 다음과 같다.

[0364] [방법 1의 단계 2]



[0365]

[0366] ^1H NMR (500MHz, CDCl_3): δ =0.61-0.67 (m, 2H), 1.22 (t, J =7.2Hz, 9H), 1.70-1.80 (m, 2H), 2.68-2.70 (m, 2H), 2.82 (t, J =4.4 Hz, 2H), 3.23-3.27 (m, 2H), 3.79-3.91 (m, 8H), 3.99 (dd, J =0.4, 4.8Hz, 1H), 4.02 (dd, J =0.4, 4.8Hz, 1H), 4.15 (dd, J =2.0, 5.2Hz, 1H), 4.19 (dd, J =2.0, 5.2Hz, 1H).

[0367] **합성예 2: 알콕시실릴기를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트($\text{Y}_2 = -\text{CH}_2-$)의 합성 (방법 2)**

[0368] (1) 트리알릴 아이소시아누레이트 (triallyl isocyanurate)의 합성 (알케닐화)

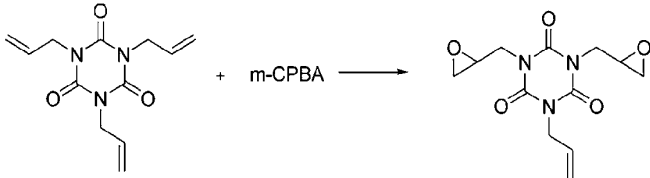
[0369] 플라스크에 이소시아누르산(알드리치) 30.0g, 알릴 브로마이드 (알드리치) 169g, 탄산칼륨 128g 및 DMSO 773ml를 넣고 상온에서 10분 동안 교반하였다. 그 후, 온도를 80°C로 올린 후 하루 밤새 동안 반응시켰다. 그 후, 상온으로 온도를 낮춘 후 400ml의 에틸아세테이트 첨가하여 H_2O 와 함께 워크 업(work up)하여 무기물을 제거하였다. 유기층에 MgSO_4 를 넣어 남아있는 H_2O 를 제거한 후, 용매를 증발시켜서 트리알릴 아이소시아누레이트 (triallyl isocyanurate)를 얻었다.

[0370] (2) 알릴기를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트 중간체의 합성 (단계 1)

[0371] 500ml 플라스크에 상기 항목 (1)에서 얻어진 트리알릴 아이소시아누레이트 20.0g, 77 중량% 메타-클로로퍼옥시벤조산(m-CPBA)(알드리치) 39.57g, 및 메틸렌 클로라이드 200ml를 넣고, 상온에서 1일 동안 교반한다. 포화 소디

움 티오술파이트(sodium thiosulfite) 수용액으로 워크 업(work up)하고, 에틸 아세테이트로 추출하였다. 그 후, 1N 소듐 히드록사이드 수용액과 염수(brine)으로 씻어주고, MgSO₄로 건조한 다음에 여과하고 증발기를 사용하여 용매를 제거하여 중간체를 얻었다. 방법 2의 단계 1의 반응 및 얻어진 중간체의 NMR 데이터 및 단계 1의 반응은 다음과 같다. 상기 트리알릴 아이소시아누레이트는 상기 항목 (1)에 기재한 바와 같이 합성하여 사용하였으나, 구입하여 사용할 수도 있다.

[0372] [방법 2의 단계 1]



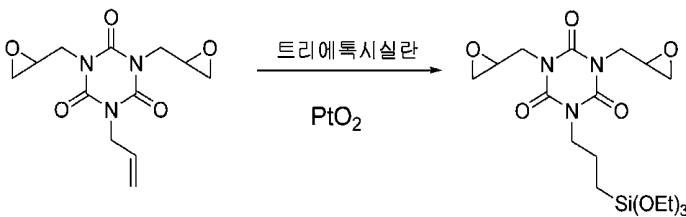
[0373]

[0374] ¹H NMR (400MHz, CDCl₃): δ=2.68-2.70 (m, 2H), 2.83 (t, J=4.8Hz, 2H), 3.24-3.28 (m, 2H), 4.01 (dd, J=0.8, 4.8Hz, 1H), 4.04 (dd, J=0.8, 4.8Hz, 1H), 4.15 (dd, J=2.4, 5.6Hz, 1H), 4.19 (dd, J=2.4, 5.6Hz, 1H), 4.50 (dt, J=1.2, 6.0Hz, 2H), 5.26 (dd, J=1.2, 10.0Hz, 1H), 5.34 (dd, J=1.2, 17.2Hz, 1H), 5.83-5.93 (m, 1H).

[0375] (3) 알콕시실릴화를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트(Y2= -CH₂-)의 합성 (단계 2)

[0376] 상온에서 250ml 플라스크에 상기 단계 1에서 얻어진 중간체인 모노알릴 디글리시딜 아이소시아누레이트 7.59g, 트리에톡시실란 (알드리치) 6.48ml, 백금 산화물 72mg, 및 톨루엔 150ml을 넣고 아르곤을 충전한 후, 85℃에서 48시간 동안 교반하였다. 그 후, 셀라이트 필터(celite filter)로 여과하고 증발기를 이용해 용매를 제거하여 최종 목적물을 얻었으며, 이의 NMR 값은 다음과 같다. 단계 2의 반응은 다음과 같다.

[0377] [방법 2의 단계 2]



[0378]

[0379] ¹H NMR (500MHz, CDCl₃): δ=0.61-0.67 (m, 2H), 1.22 (t, J=7.2Hz, 9H), 1.70-1.80 (m, 2H), 2.68-2.70 (m, 2H), 2.82 (t, J=4.4 Hz, 2H), 3.23-3.27 (m, 2H), 3.79-3.91 (m, 8H), 3.99 (dd, J=0.4, 4.8Hz, 1H), 4.02 (dd, J=0.4, 4.8Hz, 1H), 4.15 (dd, J=2.0, 5.2Hz, 1H), 4.19 (dd, J=2.0, 5.2Hz, 1H).

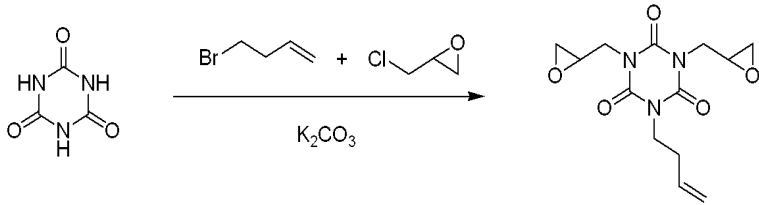
[0380] **합성예 3: 알콕시실릴기를 갖는 디글리시딜 이소시아누레이트 (Y2= -CH₂-CH₂-) 의 합성(방법 1)**

[0381] (1) 부테닐기(butenyl)를 갖는 디글리시딜 이소시아누레이트 (Y2=-CH₂-CH₂-) 중간체의 합성 (단계 1)

[0382] 플라스크에 이소시아누르산(알드리치) 30.0g, 부테닐 브로마이드 (알드리치) 31g, 탄산칼륨 48g 및 DMSO 773ml를 넣고 상온에서 10분 동안 교반하였다. 그 후, 온도를 80℃로 올린 후 하루 밤새 동안 반응시켰다. 그 후, 반응물을 상온으로 온도를 낮춘 후, 여기에 에피클로로히드린 129g, 및 탄산칼륨 96g을 넣고 상온에서 10분간 교

반한 다음에, 온도를 80℃로 하여 20시간 동안 유지하였다. 그 후, 상온으로 온도를 낮춘 후 400ml의 에틸아세테이트 첨가하여 H₂O와 함께 워크 업(work up)하여 무기물과 DMSO를 제거하였다. 유기층에 MgSO₄를 넣어 남아있는 H₂O를 제거한 후, 용매를 증발시켜서 부테닐기를 갖는 디글리시딜 이소시아누레이트를 얻었으며, 이의 NMR 데이터 및 합성 스킴은 다음과 같다.

[0383] [방법 1의 단계 1]



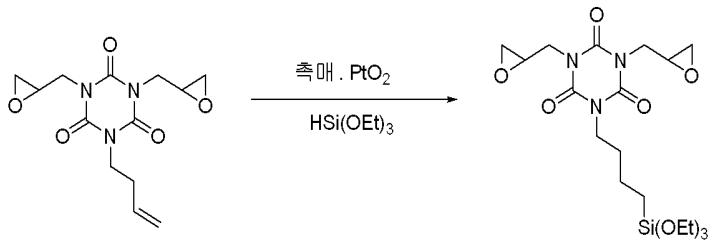
[0384]

[0385] ¹H NMR (400MHz, DMSO): δ = 2.29 (dd, J=14Hz, 6.8Hz, 2H), 2.40 (m, 2H), 2.64 (t, J=4.8Hz, 2H), 2.95-2.90 (m, 2H), 3.82 (t, J=7.2Hz, 2H), 3.95-3.83 (m, 4H), 5.09-4.98 (m, 2H), 5.79-5.72 (m, 1H).

[0386] (2) 알콕시실릴기를 갖는 디글리시딜 아이소시아누레이트(Y2= -CH₂CH₂-)의 합성 (단계 2)

[0387] 플라스크에 상기 단계 1에서 얻어진 중간체인 모노부테닐 디글리시딜 아이소시아누레이트 10g과 이산화백금 (알드리치) 154mg, 트리에톡시실란 (TEOS) 6.68g 및 톨루엔 200ml를 넣고 아르곤 기체하에서 80℃로 17시간 동안 교반하였다. 그 후 셀라이트 필터로 여과하고 증발기를 이용한 용매를 제거하여 최종목적물을 얻었으며, 얻어진 최종화합물의 NMR 데이터 및 단계 2의 반응스킴은 다음과 같다.

[0388] [방법 1의 단계 2]



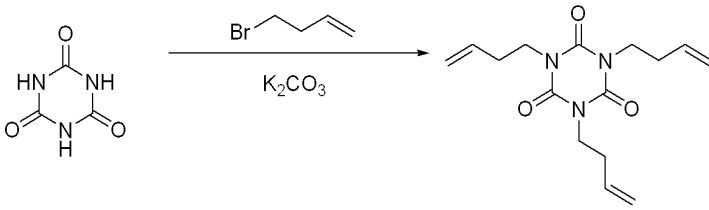
[0389]

[0390] ¹H NMR (400MHz, DMSO): δ=0.58 (t, J= 8.0Hz, 2H), 1.17 (t, J=7.0Hz, 9H), 1.38-1.27 (m, 2H), 1.60-1.52 (m, 2H), 2.40 (m, 2H), 2.63 (t, J=5.2Hz, 2H), 2.96-2.90 (m, 2H), 3.79-3.77 (m, 8H), 3.95-3.84 (m, 4H).

[0391] **합성예 4: 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트계 에폭시(Y1= -CH₂-CH₂-, Y2= -CH₂-CH₂-)의 합성**

[0392] (1) 트리부테닐 아이소시아누레이트 의 합성 (알케닐화)

[0393] 플라스크에 이소시아누르산(알드리치) 30.0g, 부테닐 브로마이드 (알드리치) 106ml (141g), 탄산칼륨 128g 및 디메틸설폭사이드 773ml를 넣고 상온에서 10분 동안 교반하였다. 그 후, 온도를 80℃로 올린 후, 하루 밤새 동안 유지하였다. 그 후 상온으로 온도를 낮춘 후 400ml의 에틸아세테이트 첨가하여 H₂O와 함께 워크 업(work up)하여 무기물과 DMSO를 제거하였다. 유기층에 MgSO₄를 넣어 남아있는 H₂O를 제거한 후, 용매를 증발시켜서 트리부테닐 아이소시아누레이트를 얻었다. 얻어진 화합물의 NMR 데이터 및 상기 반응스킴은 다음과 같다.



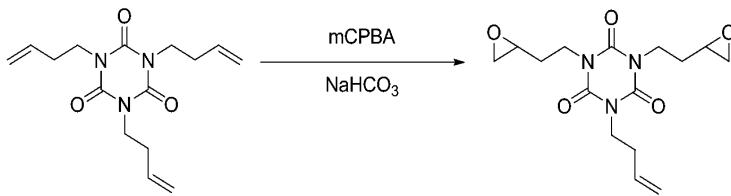
[0394]

[0395] ^1H NMR (400MHz, DMSO): δ = 2.28 (dd, J =14Hz, 6.8Hz, 6H), 3.82 (t, J =7.2Hz, 6H), 5.08-4.98 (m, 6H), 5.80-5.72 (m, 3H).

[0396] (2) 부테닐기를 갖는 이소시아누레이드계 에폭시 중간체의 합성 (단계 1)

[0397] 플라스크에 상기 항목 (1)에서 합성된 트리부테닐이소시아누레이트 66.0g, 메타-클로로퍼벤조산 (알드리치) 50.5 g, 탄산수소나트륨 41.8 g 및 클로로포름 750ml를 넣고 상온에서 12시간 동안 교반하였다. 교반 종료 후, 메타-클로로퍼벤조산 50.5g을 더 넣고 상온에서 6시간 동안 교반한다. 그 후, 600ml의 에틸아세테이트를 첨가하고 1N NaOH 수용액으로 3회 이상 씻어주고, NaCl 포화 수용액으로 유기층을 1회 이상 씻어준 후 MgSO_4 를 이용하여 유기층의 수분을 제거하였다. 그 다음 유기층의 용매를 증발시켜서 부테닐기를 갖는 이소시아누레이드계 에폭시 중간체를 얻었다. 얻어진 중간체의 NMR 데이터 및 반응스킴은 다음과 같다.

[0398] [방법 2의 단계 1]



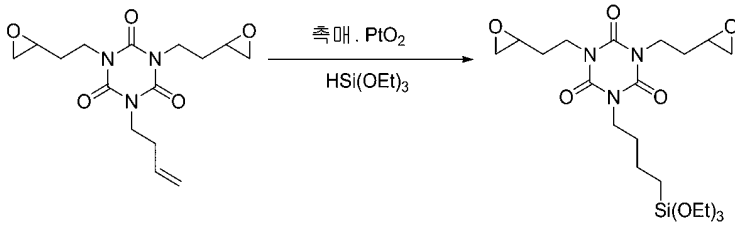
[0399]

[0400] ^1H NMR (400MHz, DMSO): δ = 1.86-1.60 (m, 4H), 2.30 (dd, J =14Hz, 6.8Hz, 2H), 2.40 (m, 2H), 2.64 (t, J =4.8Hz, 2H), 2.96-2.90 (m, 2H), 3.82 (t, J =6.8Hz, 2H), 3.94-3.84 (m, 4H), 5.08-4.99 (m, 2H), 5.80-5.72 (m, 1H).

[0401] (3) 알콕시실릴기를 갖는 아이소시아누레이드계 에폭시(Y1= $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$, Y2= $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$)의 합성 (단계 2)

[0402] 플라스크에 상기 1단계에서 얻어진 부테닐기를 갖는 아이소시아누레이드계 에폭시 중간체 6.4g, 이산화백금 (알드리치) 100mg, 트리에톡시실란 (TCI) 2.6 ml 및 톨루엔 100ml를 넣고 아르곤 기체하에서 80°C 로 17시간 동안 교반하였다. 그 후 상온으로 온도를 낮춘 뒤 셀라이트 필터로 여과하여 이산화백금을 제거하였다. 그 다음에, 거른용액의 유기용매를 증발시켜서 최종 목적물을 얻었다. 최종 목적물의 NMR 데이터 및 반응스킴은 다음과 같다.

[0403] [방법 2의 단계 2]

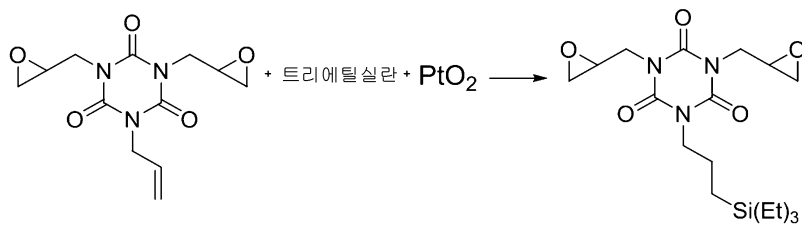


[0404]

[0405] ¹H NMR (400MHz, DMSO): δ=0.57 (t, J= 8.0Hz, 2H), 1.15 (t, J=7.0Hz, 9H), 1.38-1.27 (m, 2H), 1.60-1.52 (m, 2H), 1.87-1.61 (m, 4H), 2.40 (m, 2H), 2.63 (t, J=5.2Hz, 2H), 2.96-2.90 (m, 2H), 3.79-3.77 (m, 8H), 3.83-3.79 (m, 4H).

[0406] **합성예 5: 알킬실릴기를 갖는 디글리시딜 이소시아누레이트의 합성**

[0407] 상온에서 250ml 플라스크에 상기 실시예 1의 제 1단계에서 얻어진모노알릴 디글리시딜 아이소시아누레이트 2.85g, 트리에틸실란(TCI) 4.85ml, 백금 산화물 69.0mg, 및 톨루엔 150ml을 넣고 아르곤을 충전한 후, 85℃에서 7일 동안 교반하였다. 그 후, 셀라이트 필터로 여과하고 증발기를 이용하여 용매를 제거하여 알킬실릴화된 디글리시딜 아이소시아누레이트를 얻었다. 얻어진 화합물의 NMR 데이터 및 이의 반응스킴은 다음과 같다.



[0408]

[0409] ¹H NMR (500MHz, CDCl₃): δ=0.49-0.55 (m, 8H), 0.92 (t, J=7.8Hz, 9H), 1.59-1.67 (m, 2H), 2.68-2.70 (m, 2H), 2.82 (t, J=4.4 Hz, 2H), 3.23-3.27 (m, 2H), 3.86 (t, J=7.8Hz, 2H), 3.99 (dd, J=0.4, 4.8Hz, 1H), 4.02 (dd, J=0.4, 4.8Hz, 1H), 4.15 (dd, J=2.0, 5.2Hz, 1H), 4.19 (dd, J=2.0, 5.2Hz, 1H).

[0410] **물성평가 :경화물 제조 및 내열특성 평가**

[0411] 1. **에폭시 경화물의 제조**

[0412] 하기 표 1의 조성으로 에폭시 화합물, 경화제 (페놀계 경화제(HF-1M™, Meiwa Plastic Industries, Ltd., 당량 107) 또는 아민경화제 (4,4'-디아미노디페닐메탄(diaminodiphenylmethane, DDM), 알드리치)) 및 트리페닐포스핀(triphenyl phosphine, 알드리치에서 구입) 경화촉매 (첨가되는 경우에)를 메틸에틸케톤에 고형분 함량이 40wt%이 되도록 녹인후, 균일한 용액이 되도록 혼합하여 혼합액을 제조하였다 (상기 고형분 함량이란, 혼합액 중 용매 이외의 고상 물질의 함량을 말한다). 그 후, 상기 혼합액을 100℃로 가열된 진공 오븐에 넣어, 용매를 제거한 다음에 예열된 핫 프레스에서 경화시켜서 에폭시 경화물(4mm×16mm×0.1mm)을 얻었다.

[0413] 2. **에폭시 화합물과 유리 섬유를 포함하는 복합체(경화물)의 제조**

[0414] 하기 표 2의 조성으로 에폭시 화합물, 경화제 (페놀계 경화제(HF-1M™, Meiwa Plastic Industries, Ltd., 당량 107) 또는 아민경화제 (4,4'-디아미노디페닐메탄(diaminodiphenylmethane, DDM), 알드리치)) 및 트리페닐포스핀(triphenyl phosphine (TPP), 알드리치에서 구입) 경화촉매 (첨가되는 경우에)를 메틸에틸케톤에 고형분 함량이 40wt%이 되도록 녹인후, 균일한 용액이 되도록 혼합하여 얻어진 혼합물에 유리 섬유(Nittobo사의 유리 섬유 직물, E-glass 2116)를 침지하여 에폭시 화합물을 포함하는 유리 섬유 복합물을 제조하였다. 그 후, 상기 복합물을 100℃로 가열된 진공 오븐에 넣어 용매를 제거한 다음에 예열된 핫 프레스에서 경화시켜서 실시예 5-10 및 비교예 3-5의 유리 섬유 복합체 필름(4mm×16mm×0.1mm)을 얻었다. 복합체 필름 제조시, 프레스의 압력과 레진의 점도에 따라 복합체 필름의 레진 함량을 조절하였으며, 복합체 필름에서 레진의 함량은 하기 표 2에 나타낸 바와 같다.

[0415] 3. 에폭시화합물, 유리 섬유 및 실리카를 포함하는 복합체(경화물)의 제조

[0416] 하기 표 2의 조성으로, 에폭시 화합물, 및 실리카 슬러리(고형분 함량 70wt%, 2-메톡시에탄올(methoxyethanol) 용매, 실리카의 입자크기는 450nm 내지 3 μ m의 분포임)를 메틸에틸케톤에 고형분 함량이 40wt%이 되도록 녹인다. 이 혼합액을 1500 rpm의 속도로 1 시간 혼합한 후, 페놀계 경화제(HF-1M™, Meiwa Plastic Industries, Ltd., 당량 107)를 넣고 추가로 50분간 더 혼합하였다. 그 후, 여기에, 마지막으로 트리페닐포스핀(triphenyl phosphine, 알드리치) 경화촉매를 넣고 10분간 더 혼합하여 에폭시 혼합물을 얻었다. 상기 에폭시 혼합물에 유리 섬유(Nittobo사 유리 섬유 직물(Glass fiber fabric), E-glass 2116)를 침지하여 에폭시 화합물을 포함하는 유리 섬유 복합물을 제조하였다. 그 후, 상기 복합물을 100℃로 가열된 진공 오븐에 넣어 용매를 제거한 다음에 예열된 핫 프레스에서 경화시켜서 실시예 11 내지 13의 유리 섬유 복합체 필름(4mm×16mm×0.1mm)을 얻었다. 복합체 필름 제조시, 프레스의 압력과 레진의 점도에 따라 복합체 필름의 레진 함량을 조절하였으며, 복합체 필름에서 레진의 함량은 하기 표 2에 나타낸 바와 같다.

[0417] 4. 에폭시화합물 및 실리카를 포함하는 복합체(경화물)의 제조

[0418] 하기 표 3의 조성으로, 에폭시 화합물 및 실리카 슬러리(고형분 함량 70wt%, 2-메톡시에탄올 용매, 실리카의 입자크기는 450nm 내지 3 μ m의 분포임)를 메틸에틸케톤에 고형분 함량이 40wt%이 되도록 녹였다. 상기 혼합액을 1500 rpm의 속도로 1 시간 혼합한 후, 페놀계 경화제(HF-1M™, Meiwa Plastic Industries, Ltd., 당량 107)를 넣고 추가로 50분간 더 혼합하였다. 그 후, 여기에, 마지막으로 트리페닐포스핀(triphenyl phosphine, 알드리치) 경화촉매를 넣고 10분간 더 혼합하여 에폭시 혼합물을 얻었다. 상기 혼합물을 100℃로 가열된 진공 오븐에 넣어 용매를 제거한 다음에 예열된 핫 프레스에서 14 내지 18 및 비교예 6 및 7의 에폭시 복합체 (5mm×5mm×3mm)를 얻었다.

[0419] 5. 물성평가

[0420] (1) 내열특성 평가

[0421] 하기 표 1 내지 3의 실시예 및 비교예에서 얻어진 경화물의 온도에 따른 치수변화를 열-기계 분석기(Thermo-mechanical Analyzer)(Film/fiber mode, Force 0.1N)를 이용하여 평가하여 하기 표 1 내지 3에 나타내었다. 에폭시 경화물과 실리카 복합체의 시편은 5mm×5mm×3mm의 크기 (팽창측정양식(expansion mode))로 그리고 유리 섬유복합필름의 시편은 4mm×16mm×0.1mm의 크기 (인장측정양식(tension mode))로 제조하였다. 또한 경화물의 열분해온도를 열중량분석기(thermogravimetric analyzer, TGA)를 이용하여 평가하였다.

표 1

에폭시 레진 경화물

번호	에폭시 배합물조성							내열특성	
	에폭시 화합물 (g)				HF-IM 경화제 (g)	TPP 경화 촉매 (g)	DDM 경화제 (g)	CTE (ppm/°C)	Tg (°C)
	합성예 1 또는 2	이소시아 누레이트 에폭시 ⁽¹⁾	비스페놀 A 에폭시 ⁽³⁾	아미노 페놀 에폭시 ⁽⁴⁾					
실시예1	5.00	-	-	-	-	-	1.10	112	Tg-리스
실시예2	5.00	-	-	-	2.35	0.05	-	85	155
실시예3	4.50	-	0.50	-	2.44	0.05	-	98	140
실시예4	4.50	-	-	0.50	2.69	0.05	-	93	155
비교예1		5.0			-	-	2.50	50	170
비교예2		5.0			5.40	0.05	-	크랙생성-측정불가	

[0422]

표 2

에폭시 유리 섬유 복합체

번호	에폭시 화합물 (g)							에폭시 배합물조성					내열특성	
	합성예 1 또는 2	합성예3	합성예4	이소시아이 나이드 에폭시 ⁽¹⁾	합성예5 ⁽²⁾	비스페놀 A 에폭시 ⁽³⁾	아미노페놀 에폭시 ⁽⁴⁾	HF-IM 경화제 (g)	TPP 경화 촉매 (g)	DDM 경화제 (g)	실리카 (g)	레진 함량 (wt%)	CTE (ppm/°C)	Tg (°C)
실시예5	5.00	-	-	-	-	-	-	-	2.50	-	40	7.6	Tg리스	
실시예6	5.00	-	-	-	-	-	2.40	0.05	-	-	40	7.6	Tg리스	
실시예7	5.00	-	-	-	-	-	2.40	0.05	-	-	35	5.8	Tg리스	
실시예8	5.00	-	-	-	-	-	2.36	0.05	-	-	38	7.7	Tg리스	
실시예9	4.50	-	-	-	0.5	-	2.44	0.05	-	-	39	5.7	Tg리스	
실시예 10	4.50	-	-	-	-	0.5	2.69	0.05	-	-	35	7.6	Tg리스	
실시예 11	5.00	-	-	-	-	-	2.41	0.05	-	0.50	37	7.5	Tg리스	
실시예 12	-	5	-	-	-	-	2.33	0.048	-	1.00	37	7.8	Tg리스	
실시예 13	-	-	5	-	-	-	2.63	0.054	-	1.00	36	8.0	Tg리스	
비교예3	-	-	-	5.00	-	-	-	-	2.50	-	39	9.0	140	
비교예4	-	-	-	5.00	-	-	5.40	0.05	-	-	45	15.8	210	
비교예5	-	-	-	-	5	-	2.69	0.05	-	-	34	16.3	150	

표 3

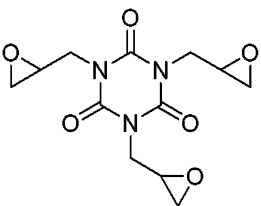
에폭시 무기입자복합체

번호	에폭시 배합물 조성						내열특성						
	합성예 1 또는 2	합성예 3	합성예 4	이소시아누레이트 에폭시 ⁽¹⁾	합성예 5 ⁽²⁾	비스페놀 A 에폭시 ⁽³⁾	아미노 페놀 에폭시 ⁽⁴⁾	IR-111 경화제 (g)	TPP 경화 촉매 (g)	살리카 (g)	살리카 함량 (wt%)	CTE (ppm/°C)	Tg (°C)
실시예14	5.00	-	-	-	-	-	-	2.32	0.05	29.48	80	6.5	Tg리스
실시예15	-	5.00	-	-	-	-	-	2.33	0.048	29.32	80	7.0	Tg리스
실시예16	-	-	5.00	-	-	-	-	2.63	0.054	30.52	80	7.5	Tg리스
실시예17	4.50	-	-	-	0.5	-	-	2.44	0.05	-	80	7.6	Tg리스
실시예18	4.50	-	-	-	-	-	0.5	2.69	0.05	-	80	9.0	Tg리스
비교예6	-	-	-	5.00	-	-	-	5.40	0.05	41.80	80	크릭생성-축정물가	
비교예7	-	-	-	-	-	5.00	-	2.84	0.05	31.55	80	15.9	110

[0424]

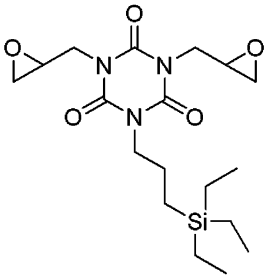
[0425] 주: 상기 표 1, 2 및 3에서 사용된 종래 에폭시 화합물은 다음과 같다.

[0426] (1) 이소시아누레이트계 에폭시



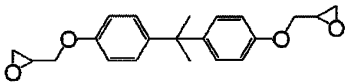
[0427]

[0428] (2) 알킬실릴기를 갖는 이소시아누레이트계 에폭시



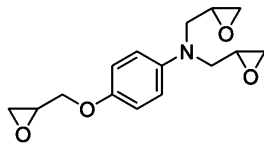
[0429]

[0430] (3) 비스페놀A계 에폭시



[0431]

[0432] (4) 아미노페놀계 에폭시



[0433]

[0434] 본 발명의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 자체의 경화물은 알콕시실릴기를 갖는 않는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 자체의 경화물에 비하여, CTE는 증가하고 Tg는 감소하는 경향을 나타낸다. 그러나, 이와 상반되게, 본 발명의 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 복합체는 알콕시실릴기를 갖는 않는 이소시아누레이트 에폭시 복합체에 비하여, CTE가 감소할 뿐만 아니라 높은 Tg 혹은 Tg리스를 나타낸다.

[0435] 구체적으로, 상기 표 1 및 도 1에 나타난 바와 같이, 본 발명에 의한 화학식 1의 알콕시실릴계 아이소시아누레이트 에폭시 화합물 자체의 경화물(실시예 1)은 코어 구조는 같지만 알콕시실릴기를 갖지 않는 에폭시 화합물 자체의 경화물(비교예 1)에 비하여 CTE는 크게 증가하는 경향을 보인다. 그러나, 표 2에 나타난 바와 같이, 유리 섬유와 복합화된 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체 (실시예 5 내지 13)의 CTE는 5.8 내지 8 ppm/°C로 알콕시실릴기를 갖지 않는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체 (비교예 3 내지 5)의 CTE값인 9 내지 16 ppm/°C에 비하여 매우 낮았다.

[0436] 구체적으로, 도 2에 나타난 바와 같이, 비교예 3 복합체의 CTE에 비하여 실시예 5의 복합체의 CTE가 현저하게 작을 뿐만 아니라, 표 1 및 표 2에서 알 수 있듯이, 실시예 5의 복합체는 Tg리스를 나타냄에 반하여, 비교예 3은 140°C 부근에서의 유리전이온도가 관찰되었다.

[0437] 이로부터, 본 발명에 의한 화학식 1의 알콕시실릴계 아이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체는 알콕시실릴기를 갖지 않는 아이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체에 비하여 CTE가 감소하고 Tg가 증가(혹은 Tg리스)의 물성을 보이며, 이로부터 내열특성이 향상됨을 알 수 있다.

[0438] 한편, 실시예 14의 무기입자 고충진 에폭시 복합체의 CTE 값은 6.5ppm/°C로 비교예 7의 알콕시실릴기가 없는 비

스페놀 에폭시 복합체의 CTE 값인 15.9ppm/℃에 비하여 현저하게 낮을 뿐만 아니라, 유리전이온도 또한, Tg-리스로 우수한 내열 특성을 나타내었다. 실시예 14와의 비교를 위하여, 비교예 6에서 무기입자가 고충진된 알콕시실릴기가 없는 이소시아누레이트 에폭시 복합체를 제조하였으나, 이는 크랙이 생성되어 물성을 평가할 수 없었으며, 따라서, 비교예 7과 비교하였다.

[0439] 이와 같은, 알콕시실릴기계 이소시아누레이트 에폭시 복합체의 CTE 감소 및 Tg 증가 혹은 Tg-리스 특성은 복합체에서 에폭시 화합물과 충전제의 결합특성이 향상됨에 기인한 여겨진다.

[0440] 또한, 도 4 (a) 및 4 (b) 그리고 표 2에 나타낸 바와 같이, 알콕시실릴기계 이소시아누레이트에폭시 복합체 (실시예 7)의 CTE는 5.8ppm/℃로 알킬실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 복합체 (비교예 5)의 CTE CTE=16ppm/℃에 비하여 매우 우수하며, 비교예 5의 CTE는 일반적인 종래의 에폭시 복합체의 CTE값을 나타낸다. 이로부터, 알콕시실릴기에 의해 본 발명에 의한 에폭시 복합체의 내열특성이 향상됨을 알 수 있다.

[0441] 나아가, 본 발명에 의한 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 복합체는 에폭시 화합물 자체의 경화물의 Tg에 비하여 복합체의 Tg가 증가되는 것으로 또한, 관찰되기도 하였다. 예를들어, 도 5(a) 및 5(b)에 나타낸 바와 같이, 실시예 2의 에폭시 경화물은 155℃ 부근에서 유리전이온도가 관찰되었으나, 실시예 6의 에폭시 복합체는 Tg-리스 나타내는 것으로 내열특성이 크게 향상되었다. 이와 같은, 유리전이온도의 변화는 알콕시실릴기가 유리 섬유와 효과적으로 계간 결합을 형성에 기인한 것으로 여겨진다.

[0442]

[0443] (2) 열분해온도 평가

[0444] 실시예 2의 에폭시 경화물, 실시예 6의 에폭시 복합체, 비교예 1의 에폭시 경화물 및 비교예 3의 에폭시 복합체의 열분해 온도를 측정하여 하기 표 4 및 도 6 및 7에 나타내었다.

표 4

열분해 온도

	비교예	실시예
에폭시 경화물	372℃ (비교예 1)	464℃ (실시예 2)
에폭시 복합체	373℃ (비교예 3)	479℃ (실시예 6)

[0445]

[0446] 도 6(a)에는 실시예 2 및 비교예 1의 경화물의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 그리고 도 6(b)에는 실시예 6 및 비교예 3의 복합체의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내었다. 또한, 도 7(a)에는 실시예 2의 경화물과 실시예 6의 복합체의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 그리고 도 7(b)에는 비교예 1의 경화물과 비교예 3의 복합체의 온도 변화에 따른 중량% 변화를 나타내었다.

[0447] 상기 표 4 그리고 도 6 및 7에서 알 수 있듯이, 본 발명에 의한, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 경화물 및 복합체에서, 알콕시실릴기를 갖지 않는 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 경화물 및 복합체에 비하여 높은 열 분해 온도를 나타낸다. 구체적으로, 실시예 2는 비교예 1에 비하여 92℃ 그리고 실시예 6은 비교예 3에 비하여 106℃ 높은 열 분해 온도를 나타낸다.

[0448] 이와 같이, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 화합물은 알콕시실릴기를 갖지 않는 이소시아누레이트 에폭시 화합물에 비하여 높은 열분해온도를 보임으로 인하여, 알콕시실릴화에 따라서 내열특성이 향상됨을 알 수 있다.

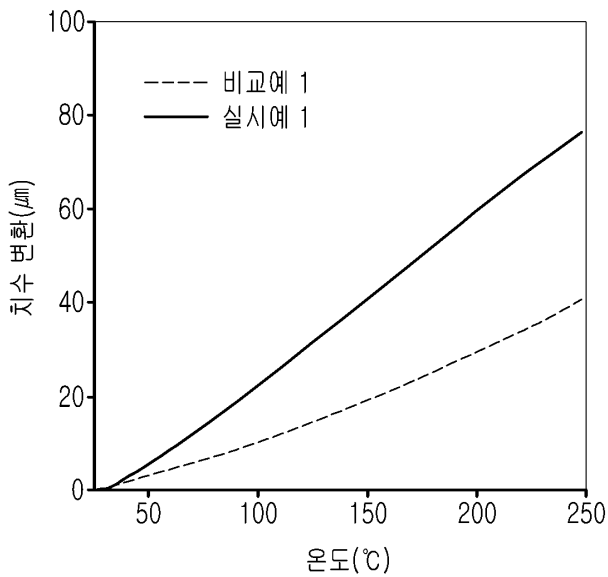
[0449] 또한, 표 3 그리고 도 7(a) 및 도 7(b)에서 알 수 있듯이, 알콕시실릴기를 갖지 않는 이소시아누레이트 에폭시 시스템(비교예 3)과 달리, 알콕시실릴기를 갖는 이소시아누레이트 에폭시 시스템(실시예 6)에서는, 복합화에 의해 시스템의 열 분해 온도 증가가 관찰되었는데, 이는 복합화되는 경우에, 알콕시실릴기와 충전제의 계면 결합의 향상에 기인한 것으로 여겨진다.

[0450] (3) 난연성 평가

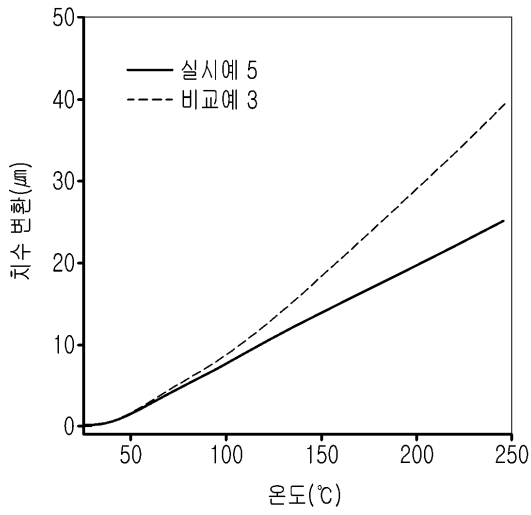
[0451] 상기 실시예 6 및 비교예 4의 복합체의 스트립에 점화하였으며, 이들 스트립이 연소된 사진을 도 8에 나타내었다. 도 8에 나타낸 바와 같이, 실시예 6 및 비교예 4의 복합체 모두 점화 후, 1초 내지 2초 이내에 자연 소화되어, 우수한 난연성을 나타내었다. 즉, 이소시아누레이트 코어는 질소를 포함하는 구조로서 그 자체가 난연성이 우수하며, 따라서, 알콕시실릴기를 갖도록 개질되지 않은 종래의 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체가 난연성이 우수할 뿐만 아니라, 본 발명에 의한, 알콕시실릴계 이소시아누레이트 에폭시 화합물의 복합체 또한, 우수한 난연성을 나타낸다.

도면

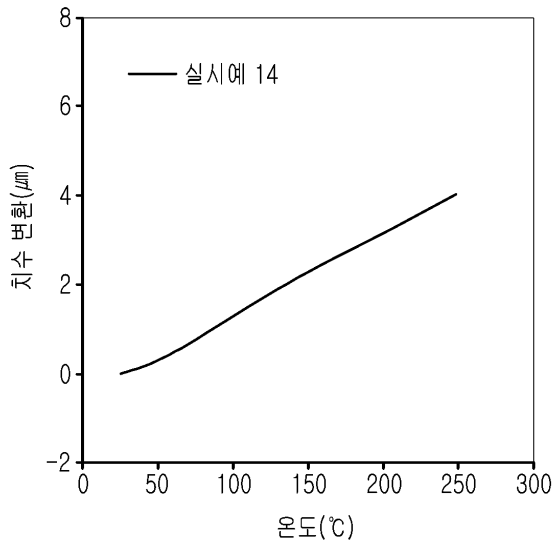
도면1



도면2

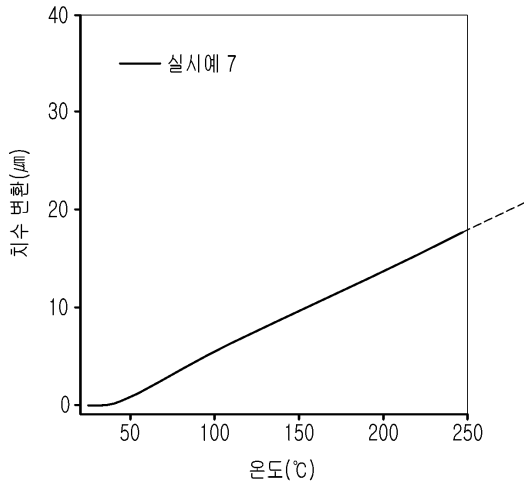


도면3

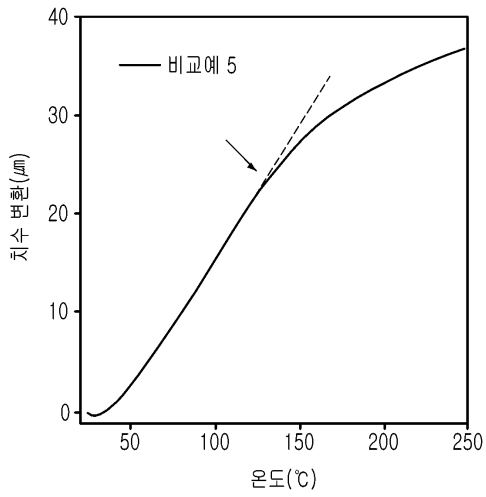


도면4

(a)

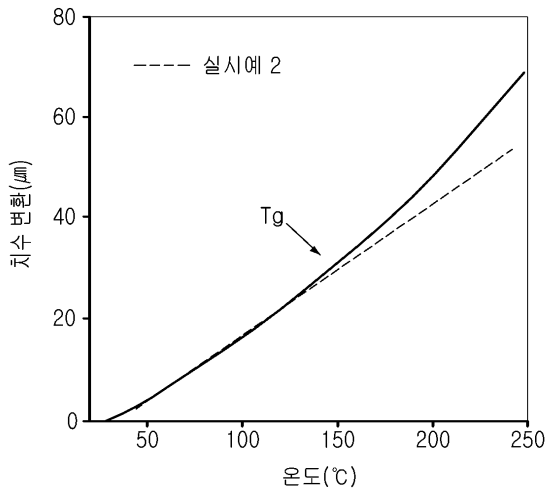


(b)

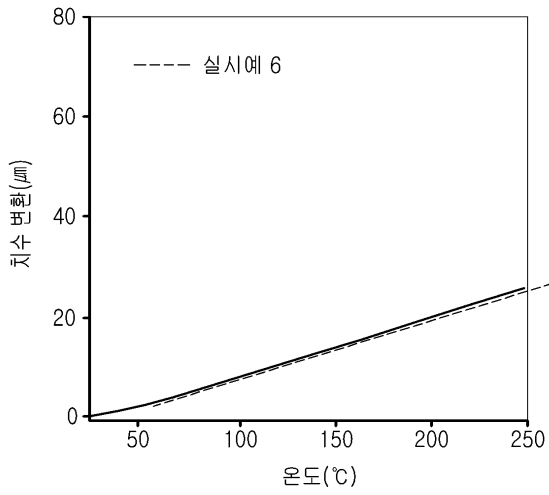


도면5

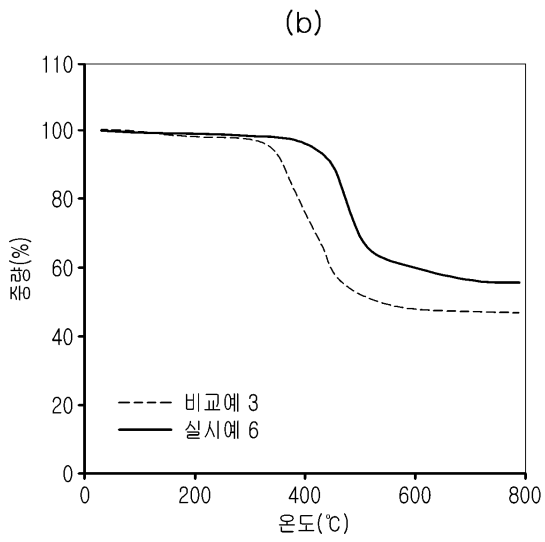
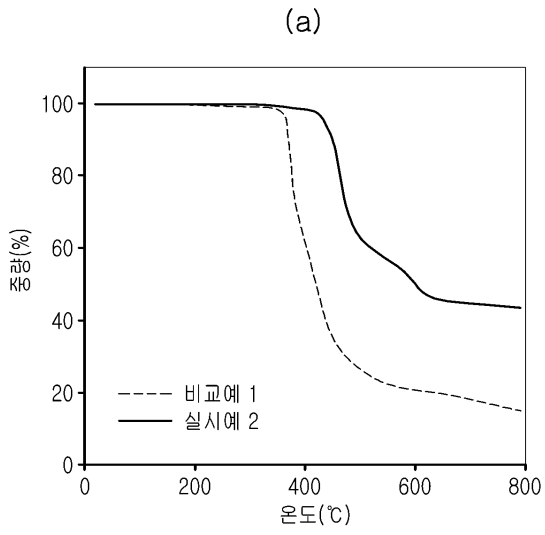
(a)



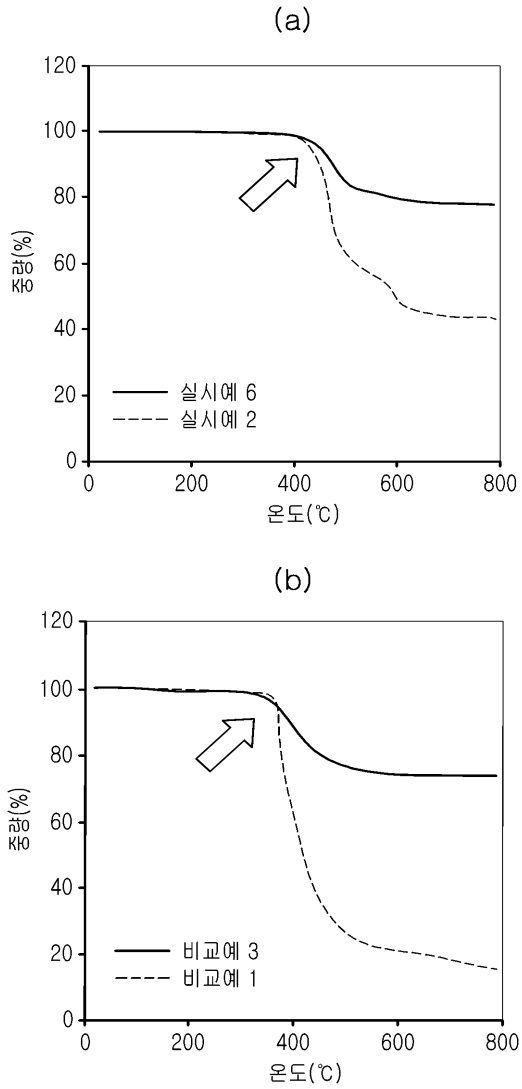
(b)



도면6



도면7



도면8

