

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載
 【部門区分】第 3 部門第 3 区分
 【発行日】平成 25 年 7 月 11 日 (2013.7.11)

【公開番号】特開 2012-233153 (P2012-233153A)
 【公開日】平成 24 年 11 月 29 日 (2012.11.29)
 【年通号数】公開・登録公報 2012-050
 【出願番号】特願 2012-34100 (P2012-34100)
 【国際特許分類】

C 0 8 L 83/07 (2006.01)

C 0 8 L 83/05 (2006.01)

H 0 1 L 33/56 (2010.01)

【 F I 】

C 0 8 L 83/07

C 0 8 L 83/05

H 0 1 L 33/00 4 2 4

【手続補正書】

【提出日】平成 25 年 5 月 24 日 (2013.5.24)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アルケニル基および密着性基を有するポリシロキサン (A) と、1 分子当たり少なくとも 2 個のケイ素原子結合水素原子を有するポリシロキサン (B) (ただし、ポリシロキサン (A) を除く) と、ヒドロシリル化反応用触媒 (C) とを含有する硬化性組成物であって、該硬化性組成物中に含まれる全成分の含有量の合計を 100 質量% とするとき、ポリシロキサン (A) の含有割合が 40 ~ 90 質量%であることを特徴とする硬化性組成物。

【請求項 2】

ポリシロキサン (A) 中に含まれる全 Si 原子の数を 100 モル% とするとき、ポリシロキサン (A) は、アルケニル基の含有量が 3 ~ 50 モル% であり、密着性基の含有量が 0.01 ~ 10 モル% である請求項 1 に記載の硬化性組成物。

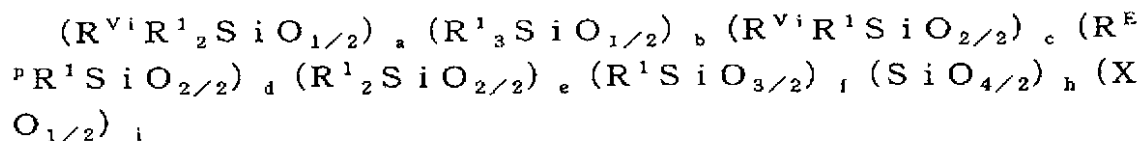
【請求項 3】

前記密着性基が、エポキシ基を有する基である請求項 2 に記載の硬化性組成物。

【請求項 4】

前記ポリシロキサン (A) が、下記化学式 (2) :

【化 2】



(2)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ep} は、エポキシ基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1 価の炭化水素基 (ただし、アルケニル基を有する基をのぞく) を示す。X は水素原子または炭素数 1 から 3 のアルキル基を示す。a は 0 以上の整数、b は 0 以上の整数、c は 0 以上の整数、d は 1 以上の整数、e は 0 以上の整数、f は 0

以上の整数、hは0以上の整数を示す。iは0以上の整数を示す。ただし、a + cは1以上の整数である。)で示される請求項3に記載の硬化性組成物。

【請求項5】

ポリシロキサン(A)がアリール基を有し、ポリシロキサン(A)中に含まれる全Si原子の数を100モル%とするとき、ポリシロキサン(A)に含まれるアリール基の含有量が30～120モル%である請求項4に記載の硬化性組成物。

【請求項6】

請求項1～5のいずれかに記載の硬化性組成物から得られることを特徴とする硬化物。

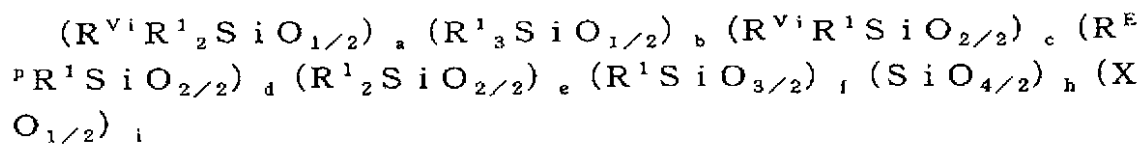
【請求項7】

半導体発光素子と、該半導体発光素子を被覆する、請求項6に記載の硬化物とを有することを特徴とする光半導体装置。

【請求項8】

下記化学式(2)：

【化2】



(2)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ep} は、エポキシ基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1価の炭化水素基(ただし、アルケニル基を有する基をのぞく。)を示す。Xは水素原子または炭素数1から3のアルキル基を示す。aは0以上の整数、bは0以上の整数、cは0以上の整数、dは1以上の整数、eは0以上の整数、fは0以上の整数、hは0以上の整数を示す。iは0以上の整数を示す。ただし、a + cは1以上の整数である。)で示されるポリシロキサン。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0002

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0002】

半導体発光装置(LED)の封止材などに使用されているヒドロシリル化反応硬化型のポリシロキサン組成物(以下、ヒドロシリル系ポリシロキサン組成物ともいう。)は、LEDパッケージなどに対する接着性を高める技術が求められている。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

基板や金属配線と封止材との接着性を高めるためには、接着促進剤であるエポキシ基含有ポリシロキサンのエポキシ基含有量を多くする必要がある。しかしながら、このような接着促進剤を多く用いた場合、輝度が低下するおそれがある。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0012】

前記硬化性組成物においては、前記密着性基が、エポキシ基を有する基であることが好ましい。

前記硬化性組成物においては、前記ポリシロキサン (A) が、下記化学式 (2) :

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

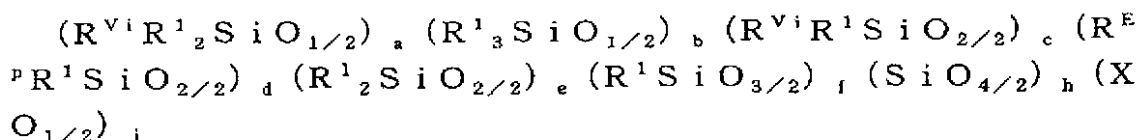
【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0013】

【化 2】



(2)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ep} は、エポキシ基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1価の炭化水素基(ただし、アルケニル基を有する基をのぞく。)を示す。 X は水素原子または炭素数1から3のアルキル基を示す。 a は0以上の整数、 b は0以上の整数、 c は0以上の整数、 d は1以上の整数、 e は0以上の整数、 f は0以上の整数、 h は0以上の整数を示す。 i は0以上の整数を示す。ただし、 $a + c$ は1以上の整数である。)で示されることが好ましい。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0016】

また、他の発明は、下記化学式 (2) :

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

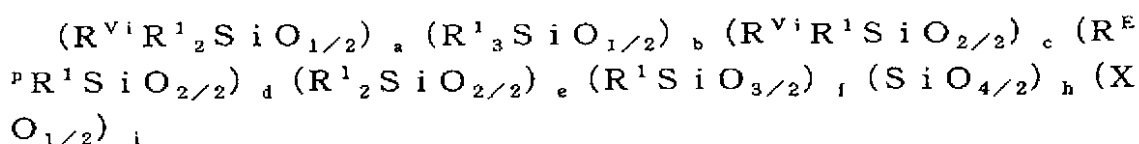
【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0017】

【化 2】



(2)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ep} は、エポキシ基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1価の炭化水素基(ただし、アルケニル基を有する基をのぞく。)を示す。 X は水素原子または炭素数1から3のアルキル基を示す。 a は0以上の整数、 b は0以上の整数、 c は0以上の整数、 d は1以上の整数、 e は0以上の整数、 f は0以上の整数、 h は0以上の整数を示す。 i は0以上の整数を示す。ただし、 $a + c$ は1以上の整数である。)で示されるポリシロキサンである。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 7

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 7 】

ポリシロキサン (A) としては、下記化学式 (1) :

【手続補正 9】

【補正対象書類名】 明細書

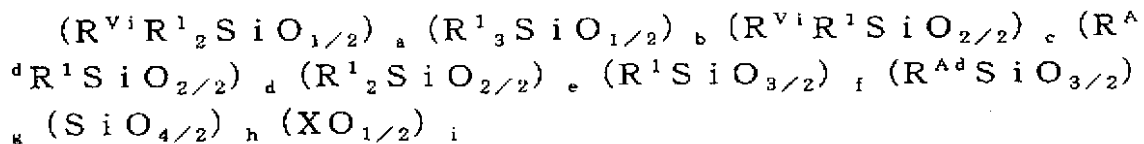
【補正対象項目名】 0 0 3 8

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 8 】

【化 1】



(1)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ad} は、密着性基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1 価の炭化水素基 (ただし、アルケニル基を有する基をのぞく。) を示す。 X は水素原子または炭素数 1 から 3 のアルキル基を示す。 a は 0 以上の整数、 b は 0 以上の整数、 c は 0 以上の整数、 d は 0 以上の整数、 e は 0 以上の整数、 f は 0 以上の整数、 g は 0 以上の整数、 h は 0 以上の整数を示す。 i は 0 以上の整数を示す。ただし、 $a + c$ は 1 以上の整数である。 $d + g$ は 1 以上の整数である。) で示されるポリシロキサンが挙げられる。

【手続補正 1 0】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 9

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 9 】

a 、 b 、 c 、 d 、 e 、 f 、 g 、 h および i の合計に対する a の割合は、前記合計を 1 0 0 % とした場合、好ましくは 0 % 以上 6 0 % 以下であり、より好ましくは、5 % 以上 4 0 % 以下である。 b の割合は、好ましくは 0 % 以上 5 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 2 0 % 以下である。 c の割合は、好ましくは 0 % 以上 3 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 2 0 % 以下である。 d の割合は、好ましくは 0 % 以上 1 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 5 % 以下である。 e の割合は、好ましくは 0 % 以上 5 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 3 0 % 以下である。 f の割合は、0 % 以上 9 0 % 以下であり、好ましくは 2 0 % 以上 9 0 % 以下であり、より好ましくは、4 0 % 以上 8 0 % 以下である。 g の割合は、好ましくは 0 % 以上 1 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 5 % 以下である。 h の割合は、好ましくは 0 % 以上 5 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 3 0 % 以下である。 i の割合は、好ましくは 0 % 以上 1 0 % 以下であり、より好ましくは、0 % 以上 5 % 以下である。ただし、 $a + c$ の割合は 0 % より大きく、 $d + g$ の割合は 0 % より大きい。

【手続補正 1 1】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 4 0

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 4 0 】

前記化学式(1)で示されるポリシロキサンの中でも、下記化学式(2)で示されるポリシロキサンが、基板や金属配線などに対する接着性と輝度とを高度に両立しうる硬化物を形成することから好ましい。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

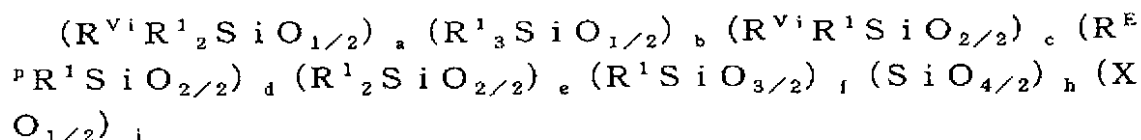
【補正対象項目名】0041

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0041】

【化2】



(2)

(式中、 R^{Vi} は、アルケニル基を有する基を示す。 R^{Ep} は、エポキシ基を有する基を示す。 R^1 はそれぞれ独立に、1価の炭化水素基(ただし、アルケニル基を有する基をのぞく。)を示す。 X は水素原子または炭素数1から3のアルキル基を示す。 a は0以上の整数、 b は0以上の整数、 c は0以上の整数、 d は1以上の整数、 e は0以上の整数、 f は0以上の整数、 h は0以上の整数を示す。 i は0以上の整数を示す。ただし、 $a + c$ は1以上の整数である。)

アルケニル基を有する基としては、上述のアルケニル基を有する基と同じ基が例示される。密着性基を有する基としては、上述の密着性基と同じ基を有する基が例示される。エポキシ基を有する基としては、上述のエポキシ基を有する基と同じ基が例示される。1価の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラールキル基；クロロメチル基、3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、ノナフルオロブチルエチル基等の置換アルキル基が例示される。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0048】

ヒドロシリル化反応用触媒(C)の具体例としては、白金系触媒、ロジウム系触媒、パラジウム系触媒を挙げることができる。これらの中で、本組成物の硬化促進の観点から白金系触媒が好ましい。白金系触媒としては、たとえば、白金-アルケニルシロキサン錯体等が挙げられる。アルケニルシロキサンとしては、たとえば、1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン等が挙げられる。特に、錯体の安定性の観点から、1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサンが好ましい。

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0057

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0057】

(1) ポリシロキサンの合成

(1 - 1) ポリシロキサン の 合成

[合成例 1] ポリシロキサン (A R 1) の 合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに 1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン 82 g、フェニルトリメトキシシラン 525 g、水 143 g、トリフルオロメタンスルホン酸 0.4 g およびトルエン 500 g を投入して混合し、1 時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に水酸化カリウム 0.4 g を加え、水分離管から水を除去しながら還流した。水の除去完了後、固形分濃度が 75 質量% となるまで濃縮し、さらに 5 時間還流した。冷却後、酢酸 0.6 g を投入して中和した後、ろ過して得られたトルエン溶液を水洗した。その後、減圧濃縮してポリシロキサン (A R 1) を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで ポリシロキサン (A R 1) のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、2000 であった。ポリシロキサン (A R 1) の化学式は $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{75}$ (Vi はビニル基、Me はメチル基、Ph はフェニル基を示す。添え字は mol % を示す) であった。

[合成例 2] ポリシロキサン (A 1) の 合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに 1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン 82 g、水 143 g、フェニルトリメトキシシラン 521 g、トリフルオロメタンスルホン酸 0.4 g およびトルエン 500 g を投入して混合し、1 時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に 3 - グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン 4 g と水酸化カリウム 0.5 g とを加え 1 時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて 4 時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸 0.6 g で中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮してアルケニル基 25 モル% 及びエポキシ基 0.5 モル% を有する (ポリシロキサン中に含まれる全 Si 原子の数を 100 モル% とする) ポリシロキサン (A 1) を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで ポリシロキサン (A 1) のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、2000 であった。ポリシロキサン (A 1) の化学式は $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{74.5}(\text{EpMeSiO}_{2/2})_{0.5}$ (Vi はビニル基、Me はメチル基、Ph はフェニル基、Ep はグリシドキシプロピル基を示す。添え字は mol % を示す) であった。ポリシロキサン (A 1) 中に含まれる全 Si 原子の数を 100 モル% とするとき、アルケニル基の含有割合は 25 mol %、エポキシ基の含有割合は 0.5 mol %、アリアル基の含有割合は 74.5 mol % であった。

【 手続補正 15 】

【 補正対象書類名 】 明細書

【 補正対象項目名 】 0058

【 補正方法 】 変更

【 補正の内容 】

【 0058 】

[合成例 3] ポリシロキサン (A 2) の 合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに 1, 3 - ジビニル - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルジシロキサン 82 g、フェニルトリメトキシシラン 518 g、水 143 g、トリフルオロメタンスルホン酸 0.4 g およびトルエン 500 g を投入して混合し、1 時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に 3 - グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン 8 g と水酸化カリウム 0.5 g とを加え 1 時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて 4 時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸 0.6 g で中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮してアルケニル基 25 モル% 及びエポキシ基 1 モル% を有する (ポリシロキサン中に含まれる全 Si 原子の数を 100 モル% とする) ポリシロキサン (A 2) を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで ポリシロキサン (A 2) のポリスチレン換算重量平均分子量を測定

したところ、2000であった。ポリシロキサン(A2)の化学式は $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{74}(\text{EpMeSiO}_{2/2})_1$ (Viはビニル基、Meはメチル基、Phはフェニル基、Epはグリシドキシプロピル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。ポリシロキサン(A2)中に含まれる全Si原子の数を100mol%とするとき、アルケニル基の含有割合は25mol%、エポキシ基の含有割合は1mol%、アリール基の含有割合は74mol%であった。

【手続補正16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0059

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0059】

【合成例4】ポリシロキサン(A3)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン82g、フェニルトリメトキシシラン511g、水143g、トリフルオロメタンスルホン酸0.4gおよびトルエン500gを投入して混合し、1時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン16gと水酸化カリウム0.5gとを加え1時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて4時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸0.6gで中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮して、アルケニル基25mol%及びエポキシ基2mol%を有する(ポリシロキサン中に含まれる全Si原子の数を100mol%とする)ポリシロキサン(A3)を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーでポリシロキサン(A3)のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、2000であった。ポリシロキサン(A3)の化学式は $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{73}(\text{EpMeSiO}_{2/2})_2$ (Viはビニル基、Meはメチル基、Phはフェニル基、Epはグリシドキシプロピル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。ポリシロキサン(A3)中に含まれる全Si原子の数を100mol%とするとき、アルケニル基の含有割合は25mol%、エポキシ基の含有割合は2mol%、アリール基の含有割合は73mol%であった。

【手続補正17】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0060

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0060】

【合成例5】ポリシロキサン(A4)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン49g、フェニルトリメトキシシラン442g、ジメチルジメトキシシラン85g、水143g、トリフルオロメタンスルホン酸0.4gおよびトルエン500gを投入して混合し、1時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン8gと水酸化カリウム0.5gとを加え1時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて4時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸0.6gで中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮して、アルケニル基15mol%及びエポキシ基1mol%を有する(ポリシロキサン中に含まれる全Si原子の数を100mol%とする)ポリシロキサン(A4)を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーでポリシロキサン(A4)のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、1800であった。ポリシロキサン(A4)の化学式は $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{15}(\text{PhSiO}_{3/2})_{64}(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_{20}$

($\text{EpMeSiO}_{2/2}$)₁(Viはビニル基、Meはメチル基、Phはフェニル基、Epはグリシドキシプロピル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。ポリシロキサン(A4)中に含まれる全Si原子の数を100mol%とすると、アルケニル基の含有割合は15mol%、エポキシ基の含有割合は1mol%、アリアル基の含有割合は64mol%であった。

【手続補正18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0061

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0061】

[合成例6] ポリシロキサン(A5)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン82g、フェニルトリメトキシシラン525g、水143g、トリフルオロメタンスルホン酸0.4gおよびトルエン500gを投入して混合し、1時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン314gと水130gと水酸化カリウム0.5gとを加え1時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて4時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸0.6gで中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮して、アルケニル基25mol%及びエポキシ基40mol%を有する(ポリシロキサン中に含まれる全Si原子の数を100mol%とする)ポリシロキサン(A5)を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーでポリシロキサン(A5)のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、1600であった。ポリシロキサン(A5)の化学式は($\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$)₂₅($\text{PhSiO}_{3/2}$)₃₅($\text{EpMeSiO}_{2/2}$)₄₀(Viはビニル基、Meはメチル基、Phはフェニル基、Epはグリシドキシプロピル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。ポリシロキサン(A5)中に含まれる全Si原子の数を100mol%とすると、アルケニル基の含有割合は25mol%、エポキシ基の含有割合は40mol%、アリアル基の含有割合は35mol%であった。

【手続補正19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0062

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0062】

[合成例7] ポリシロキサン(A6)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコに1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン33g、フェニルトリメトキシシラン442g、ジメチルジメトキシシラン85g、ジフェニルジメトキシシラン43g、水155g、トリフルオロメタンスルホン酸0.4gおよびトルエン500gを投入して混合し、1時間加熱還流した。冷却後、下層を分離除去し、上層であるトルエン溶液層を水洗した。水洗したトルエン溶液層に3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン8gと水酸化カリウム0.5gとを加え1時間加熱還流した。続いて、メタノールを留去し、過剰の水を共沸脱水で除いた。続いて4時間加熱還流した。反応後のトルエン溶液は冷却後、酢酸0.6gで中和し水洗した。水除去後、トルエンを減圧下に留去濃縮して、アルケニル基10mol%及びエポキシ基1mol%を有する(ポリシロキサン中に含まれる全Si原子の数を100mol%とする)ポリシロキサン(A6)を得た。ゲルパーミエーションクロマトグラフィーでポリシロキサン(A6)のポリスチレン換算重量平均分子量を測定したところ、1800であった。ポリシロキサン(A6)の化学式は($\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$)₁₀($\text{PhSiO}_{3/2}$)₆₄($\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2}$)₅($\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2}$)₂₀($\text{EpMeSiO}_{2/2}$)₁(Vi

はビニル基、Meはメチル基、Phはフェニル基、Epはグリシドキシプロピル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。ポリシロキサン(A6)中に含まれる全Si原子の数を100mol%とすると、アルケニル基の含有割合は10mol%、エポキシ基の含有割合は1mol%、アリアル基の含有割合は74mol%であった。

【手続補正20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0063

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0063】

[合成例8] ポリシロキサン(B1)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコにフェニルトリメトキシシラン195gとトリフルオロメタンスルホン酸0.2gを投入して混合し、攪拌しつつ水13gを15分間で滴下し、滴下終了後、1時間加熱還流した。室温まで冷却した後、1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン119gを加え、攪拌しつつ、酢酸88gを滴下した。滴下終了後、混合液を攪拌しつつ50に昇温し、3時間反応させた。室温まで冷却した後、トルエンと水を加え、良く混合して静置し、水層を分離除去した。上層であるトルエン溶液層を水洗した後、減圧濃縮して、メチルフェニルヒドロジェンポリシロキサン(B1)を得た。ポリシロキサン(B1)の化学式は $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{60}(\text{PhSiO}_{3/2})_{40}$ (Meはメチル基、Phはフェニル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。

【手続補正21】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0064

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0064】

[合成例9] ポリシロキサン(B2)の合成

攪拌機、還流冷却管、投入口、温度計付き四口フラスコにジフェニルジメトキシシラン220gとトリフルオロメタンスルホン酸0.6gを投入して混合し、1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン147gを加え、攪拌しつつ酢酸108gを30分間かけて滴下した。滴下終了後、混合液を攪拌しつつ50に昇温して3時間反応させた。室温まで冷却した後、トルエンと水を加え、良く混合して静置し、水層を分離除去した。上層であるトルエン溶液層を3回水洗した後、減圧濃縮して、ジフェニルヒドロジェンポリシロキサン(B2)を得た。ポリシロキサン(B2)の化学式は $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{50}(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{50}$ (Meはメチル基、Phはフェニル基を示す。添え字はmol%を示す)であった。

(1-2) 重量平均分子量

得られたポリシロキサンの重量平均分子量(Mw)は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)により下記条件で測定し、ポリスチレン換算値として求めた。

【手続補正22】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0073

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0073】

本発明の硬化性組成物は、その硬化物が透明でありながら、高温雰囲気下に置かれても光透過率の低下が小さく、高い接着性を有するので、光学用半導体素子および光半導体部材の封止材、接着剤、ポッティング剤、保護コーティング剤、アンダーフィル剤等として有用である。本発明の硬化物は、高温に曝されても光透過率の低下が小さいので、高温条

件下の製造工程においても光透過率の低下が小さく、長期信頼性に優れるという特徴がある。本発明の硬化物は、特に高輝度の発光素子などの光学用半導体装置に用いられたとき、全放射束が高くなるので、高輝度の光源の近傍に用いられる光学部材として有用である。