(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017 年 8 月 17 日(17.08.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/138491 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 63/00 (2006.01) *C08L 21/00* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) *H01L 33/60* (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/004216

(22) 国際出願日: 2017 年 2 月 6 日(06.02.2017)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2016-025329 2016 年 2 月 12 日(12.02.2016) JP

(71) 出願人: 株式会社ダイセル(DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300011 大阪府大阪市北区大深町３番１号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 鈴木弘世(SUZUKI, Hirose); 〒7390695 広島県大竹市東栄２丁目１番４号株式会社ダイセル内 Hiroshima (JP). 海老浦康貴(EBIURA, Yasutaka); 〒7390695 広島県大竹市東栄２丁目１番４号株式会社ダイセル内 Hiroshima (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人後藤特許事務所(GOTO & CO.); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町２番１８号 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

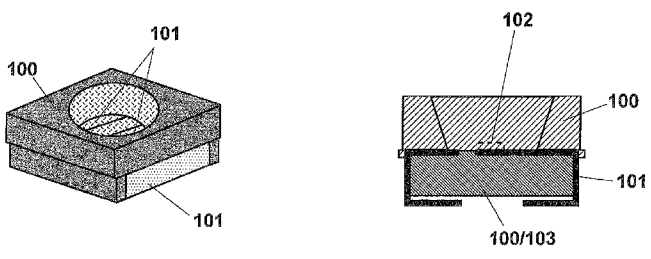
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: CURABLE RESIN COMPOSITION FOR REFLECTING LIGHT, CURED PRODUCT THEREOF, AND OPTICAL SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称 : 光反射用硬化性樹脂組成物及びその硬化物、並びに光半導体装置

[図1]



(57) **Abstract**: A curable resin composition for reflecting light is provided which is capable of forming a cured product which exhibits high light reflectance, and excellent heat resistance and light resistance, and which has a light reflectance which does not readily deteriorate over time, said curable resin composition exhibiting this remarkable effect particularly when used to form a cured product by way of compression moulding. This curable resin composition for reflecting light is characterized by: including an alicyclic epoxy compound (A), rubber particles (B), a white pigment (C), an inorganic filler (D), an isocyanuric acid derivative (H) having at least one oxirane ring in a molecule thereof, and a siloxane derivative (I) having at least two epoxy groups in a molecule thereof; further including a curing agent (E), and a curing accelerator (F), or a curing catalyst (G); and being liquid at 25°C.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2017/138491 A1

高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を形成することができ、特にコンプレッション成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮される光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。　脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含有し、さらに、硬化剤（Ｅ）、及び硬化促進剤（Ｆ）、又は、硬化触媒（Ｇ）を含有し、２５℃において液状であることを特徴とする光反射用硬化性樹脂組成物。

明　細　書

発明の名称 ：

光反射用硬化性樹脂組成物及びその硬化物、並びに光半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、光反射用硬化性樹脂組成物及びその硬化物、該硬化物により形成されたリフレクターと光半導体素子とを有する光半導体装置に関する。本願は、２０１６年２月１２日に日本に出願した、特願２０１６－０２５３２９号の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 近年、各種の屋内又は屋外表示板、画像読み取り用光源、交通信号、大型ディスプレイ用ユニット等においては、光半導体素子（ＬＥＤ素子）を光源とする発光装置（光半導体装置）の採用が進んでいる。このような光半導体装置としては、一般に、基板（光半導体素子搭載用基板）上に光半導体素子が搭載され、さらに該光半導体素子が透明な封止材により封止された光半導体装置が普及している。このような光半導体装置における基板には、光半導体素子から発せられる光の取り出し効率を高めるため、光を反射させるための部材（リフレクター）が形成されている。

[0003] 上記リフレクターには、高い光反射性を有することが求められている。従来、上記リフレクターの構成材としては、例えば、テレフタル酸単位を必須の構成単位とするポリアミド樹脂（ポリフタルアミド樹脂）中に、無機充填剤等を分散させた樹脂組成物等が知られている（特許文献１～３参照）。

[0004] また、上記リフレクターの構成材としては、その他に、例えば、エポキシ樹脂を含む熱硬化性樹脂と、屈折率１．６～３．０の無機酸化物とを特定割合で含有する光反射用熱硬化性樹脂組成物が知られている（特許文献４参照）。さらに、例えば、熱硬化性樹脂成分と１以上の充填剤成分とを含有し、熱硬化性樹脂成分全体の屈折率と各充填剤成分の屈折率との差、及び、各充填剤成分の体積割合より算出されるパラメータを特定範囲に制御した光反射

用熱硬化性樹脂組成物が知られている（特許文献５参照）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２０００－２０４２４４号公報

特許文献2：特開２００４－７５９９４号公報

特許文献3：特開２００６－２５７３１４号公報

特許文献4：特開２０１０－２３５７５３号公報

特許文献5：特開２０１０－２３５７５６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上述の特許文献１～５に記載の材料より作製したリフレクターは、高出力の青色光半導体や白色光半導体を光源とする光半導体装置において、半導体素子から発せられる光や熱によって経時で黄変する等して劣化し、光反射性が経時で低下するという問題を有していた。さらに、鉛フリーはんだの採用に伴い、発光装置の製造の際のリフロー工程（はんだリフロー工程）における加熱温度がより高くなる傾向にあり、このような製造工程において加わる熱によっても上記リフレクターが経時で劣化し、光反射性が低下するという問題も発生していた。

[0007] このため、より高出力、短波長の光や高温に対しても光反射性が経時で低下しにくい、耐熱性及び耐光性に優れる材料が求められているのが現状である。

[0008] また、上記リフレクターは、一般に、該リフレクターを形成するための材料（樹脂組成物）を、トランスファー成型やコンプレッション成型に付すことによって製造される。しかしながら、従来のリフレクターを形成するための樹脂組成物は、トランスファー成型に適したものが多いため、該樹脂組成物より形成したリフレクターは耐熱性に優れるが、コンプレッション成型により形成したリフレクターは耐熱性が比較的劣るものが多かった。

[0009] 従って、本発明の目的は、高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を形成でき、特にコンプレッション成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮される光反射用硬化性樹脂組成物を提供することにある。

また、本発明の他の目的は、生産性に優れ、高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を提供することにある。

さらに、本発明の他の目的は、経時で光の輝度が低下しにくく、信頼性の高い光半導体装置を提供することにある。

[0010] さらに、上記リフレクターには、切削加工や温度変化（例えば、リフロー工程のような非常に高温での加熱や、冷温サイクルなど）等による応力が加わった場合に、クラック（ひび割れ）を生じにくい（このような特性を「耐クラック性」と称する場合がある）等、強靭であることが求められている。リフレクターにクラックが生じてしまうと、光反射性が低下して（即ち、光の取り出し効率が低下して）、発光装置の信頼性を担保することが困難となるためである。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含み、２５℃において液状である光反射用硬化性樹脂組成物、又は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化触媒（Ｇ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含み、２５℃において液状である光反射用硬化性樹脂組成物が、高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を形成でき、特にコンプレッシ

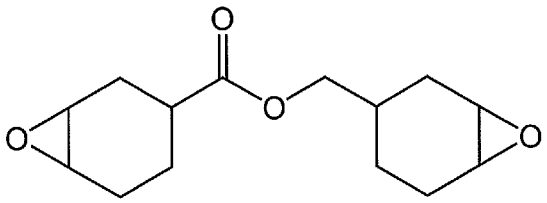
ョン成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮されることを見出した。本発明は、これらの知見に基づいて完成されたものである。

[0012] すなわち、本発明は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含有し、さらに、硬化剤（Ｅ）、及び硬化促進剤（Ｆ）、又は、硬化触媒（Ｇ）を含有し、２５℃において液状であることを特徴とする光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0013] さらに、本発明は、前記ゴム粒子（Ｂ）が、（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分とするポリマーで構成され、表面にヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基を有し、前記ゴム粒子（Ｂ）の平均粒子径が１０～５００ｎｍであり、最大粒子径が５０～１０００ｎｍである光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0014] さらに、本発明は、前記脂環式エポキシ化合物（Ａ）が、下記式（Ｉ－１）

[化1]

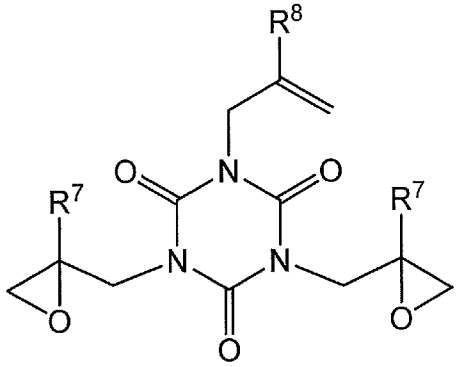


(I-1)

で表される化合物を含む光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0015] さらに、本発明は、前記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）が、下記式（III－１）

[化2]



（III－1）

［式（ＩＩＩ－１）中、R^7及びR^8は、同一又は異なって、水素原子又は炭素数１～８のアルキル基を示す。］

で表される化合物である光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0016] さらに、本発明は、前記白色顔料（Ｃ）が、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、及び硫酸バリウムからなる群より選択される少なくとも１種であり、前記無機充填剤（Ｄ）が、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、及び窒化ホウ素からなる群より選択される少なくとも１種である光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0017] さらに、本発明は、トランスファー成型用又はコンプレッション成型用樹脂組成物である前記光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0018] さらに、本発明は、リフレクター形成用樹脂組成物である前記光反射用硬化性樹脂組成物を提供する。

[0019] また、本発明は、前記光反射用硬化性樹脂組成物の硬化物を提供する。

[0020] また、本発明は、光半導体素子と、前記硬化物からなるリフレクターとを少なくとも備えることを特徴とする光半導体装置を提供する。

[0021] すなわち、本発明は以下に関する。

［１］脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含有し、さらに、硬化剤（Ｅ）、及び硬化促進剤（Ｆ）、又は、硬化触媒（Ｇ）を含有し、２５℃において液状であることを特徴とする光反射

用硬化性樹脂組成物。

［２］前記ゴム粒子（Ｂ）が、ゴム弾性を有するコア部分と、該コア部分を被覆する少なくとも１層のシェル層とからなる多層構造を有するゴム粒子である［１］に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［３］前記ゴム粒子（Ｂ）が、（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分とするポリマーで構成される［１］又は［２］に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［４］前記ゴム粒子（Ｂ）のゴム弾性を有するコア部分を構成するポリマーが、モノマー成分として、（メタ）アクリル酸エステルと共に、芳香族ビニル、ニトリル、及び共役ジエンからなる群より選択された一種又は二種以上を組み合わせて含む［２］又は［３］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［５］前記ゴム粒子（Ｂ）のシェル層を構成するポリマーが、モノマー成分として、（メタ）アクリル酸エステルと共に、ヒドロキシ基含有モノマー及びカルボキシ基含有モノマーからなる群より選択された一種又は二種以上を組み合わせて含む［２］～［４］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［６］前記ゴム粒子（Ｂ）が、表面にヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基を有する［１］～［５］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［７］前記ゴム粒子（Ｂ）の平均粒子径が１０～５００ｎｍであり、最大粒子径が５０～１０００ｎｍである［１］～［６］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［８］前記脂環式エポキシ化合物（Ａ）が、後述の式（Ｉ）で表される化合物を含む［１］～［７］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［９］前記脂環式エポキシ化合物（Ａ）が、後述の式（Ｉ－１）で表される化合物を含む［１］～［８］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組

成物。

［１０］前記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）が、後述の式（ＩＩＩ）で表される化合物である［１］～［９］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１１］前記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）が、後述の式（ＩＩＩ－１）で表される化合物である［１］～［１０］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１２］前記シロキサン誘導体（Ｉ）が、分子内に２以上のエポキシ基を有する環状シロキサン及び／又は分子内に２以上のエポキシ基を有する直鎖状シリコーンである［１］～［１１］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１３］前記白色顔料（Ｃ）が、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、及び硫酸バリウムからなる群より選択される少なくとも１種である［１］～［１２］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１４］前記無機充填剤（Ｄ）が、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、及び窒化ホウ素からなる群より選択される少なくとも１種である［１］～［１３］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１５］前記シロキサン誘導体（Ｉ）が、後述の式（ＩＶ）で表されるシロキサン化合物である［１］～［１４］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１６］前記脂環式エポキシ化合物（Ａ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～６０重量％、０．３～５０重量％、又は０．５～４０重量％である［１］～［１５］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１７］前記ゴム粒子（Ｂ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０１～２０重量％、０．０５～１５重量％、又は０．１～１０重量％である［１］～［１６］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１８］前記白色顔料（Ｃ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～５０重量％、１～４０重量％、又は５～３５重量％である［１］～［１７］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［１９］前記無機充填剤（Ｄ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、１０～９０重量％、１３～７５重量％、１５～７０重量％、又は２０～７０重量％である［１］～［１８］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２０］前記硬化剤（Ｅ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、１～４０重量％、３～３５重量％、又は５～３０重量％である［１］～［１９］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２１］前記硬化促進剤（Ｆ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０００１～５重量％、又は０．００１～１重量％である［１］～［２０］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２２］前記硬化触媒（Ｇ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０００１～５重量％、又は０．００１～１重量％である［１］～［２１］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２３］前記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０５～１５重量％、０．１～１０重量％、又は０．３～５重量％である［１］～［２２］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２４］前記シロキサン誘導体（Ｉ）の含有量（配合量）が、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～３０重量％、０．５～２０重量％、又は１．０～１０重量％である［１］～［２３］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２５］トランスファー成型用又はコンプレッション成型用樹脂組成物である［１］～［２４］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２６］リフレクター形成用樹脂組成物である［１］～［２５］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［２７］［１］～［２６］のいずれか１つに記載の光反射用硬化性樹脂組成物の硬化物。

［２８］光半導体素子と、［２７］に記載の光反射用硬化性樹脂組成物の硬化物からなるリフレクターとを少なくとも備えることを特徴とする光半導体装置。

発明の効果

[0022] 本発明の硬化性樹脂組成物は上記構成を有するため、高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を形成することができ、特にコンプレッション成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮される。このため、経時で光の輝度が低下しにくく、信頼性の高い光半導体装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]本発明の光半導体素子搭載用基板の一例を示す概略図である。左側の図（ａ）は斜視図であり、右側の図（ｂ）は断面図である。

[図2]本発明の光半導体装置の一例を示す概略図（断面図）である。

[図3]本発明の光半導体装置の他の一例を示す概略図（断面図；ヒートシンクを有する場合）である。

[図4]本発明の光半導体装置の他の一例を示す概略図（ヒートシンク（放熱フィン）を有する場合）である。左側の図（ａ）は上面図であり、右側の図（ｂ）は（ａ）におけるＡ－Ａ’断面図である。

発明を実施するための形態

[0024] ＜光反射用硬化性樹脂組成物＞

本発明の光反射用硬化性樹脂組成物（単に「本発明の硬化性樹脂組成物」と称する場合がある）は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、

白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含有し、さらに硬化剤（Ｅ）及び硬化促進剤（Ｆ）、又は硬化触媒（Ｇ）を含有し、２５℃において液状であることを特徴とする硬化性樹脂組成物である。なお、前記分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）を「イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）」と称する場合がある。また、分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を「シロキサン誘導体（Ｉ）」と称する場合がある。

[0025] 言い換えると、本発明の硬化性樹脂組成物は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）を必須成分として含む２５℃で液状である光反射用硬化性樹脂組成物、又は脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化触媒（Ｇ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）を必須成分として含む２５℃で液状である硬化性樹脂組成物である。なお、本発明の硬化性樹脂組成物は、上記必須成分以外にも、必要に応じてその他の成分を含んでいてもよい。なお、本発明の硬化性樹脂組成物は、加熱により硬化を形成することが可能な熱硬化性組成物（熱硬化性エポキシ樹脂組成物）として使用できる。

[0026] なお、本明細書において「光反射用硬化性樹脂組成物」とは、光反射性を有する硬化物を形成可能な硬化性樹脂組成物をいう。具体的には、例えば、波長４５０ｎｍの光に対する反射率が５０％以上（好ましくは８０％以上、より好ましくは９０％以上）である硬化物を形成可能な硬化性樹脂組成物をいう。

[0027] 本発明の硬化性樹脂組成物は２５℃において液体であることにより、コンプレッション成型に適する傾向があり、その硬化物（リフレクター）は、光反射性に優れ、且つ、耐熱性及び耐光性に優れる傾向がある。なお、本明細書において「２５℃において液状」とは、常圧において２５℃で測定した粘

度が１０００００００ｍＰａ・ｓ以下（好ましくは、８０００００ｍＰａ・ｓ以下）であることをいう。なお、上記粘度は、例えば、デジタル粘度計（型番「ＤＶＵ－ＥＩＩ型」、（株）トキメック製）を用いて、ローター：標準１°３４′×Ｒ２４、温度：２５℃、回転数：０．５～１０ｒｐｍの条件で測定することができる。

[0028] ２５℃において液体である本発明の硬化性樹脂組成物は、例えば、成分（例えば、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、硬化触媒（Ｇ）等）として、２５℃で液体の成分を用いることにより得やすくなる。なお、上記成分として２５℃で固体の成分を用いてもよいが、その含有量は、本発明の硬化性樹脂組成物が２５℃において液状となるように調整される。また、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）等の２５℃で固体である成分の含有量を、本発明の効果を損なわない範囲内で調整することによっても得やすくなる。

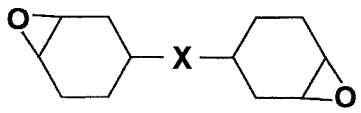
[0029] ［脂環式エポキシ化合物（Ａ）］

本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分である脂環式エポキシ化合物（脂環式エポキシ樹脂）（Ａ）は、分子内（一分子中）に脂環（脂肪族炭化水素環）構造とエポキシ基（オキシラニル基）とを少なくとも有する化合物であり、公知乃至慣用の脂環式エポキシ化合物を使用することができる。ただし、脂環式エポキシ化合物（Ａ）からはイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）に該当するものが除かれる。脂環式エポキシ化合物（Ａ）としては、より具体的には、例えば、（ｉ）脂環を構成する隣接する２つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基（脂環式エポキシ基）を有する化合物、（ii）脂環に直接単結合で結合しているエポキシ基を有する化合物が挙げられる。

[0030] 上述の（ｉ）脂環式エポキシ基を有する化合物としては、分子内に脂環式エポキシ基を１つ以上有する公知乃至慣用の化合物を使用することができ、特に限定されない。上記脂環式エポキシ基としては、硬化性樹脂組成物の硬化性及び硬化物（リフレクター）の耐熱性及び耐光性の観点で、シクロヘキ

センオキシド基が好ましい。特に、硬化物（リフレクター）の耐熱性及び耐光性の観点で、分子内に２つ以上のシクロヘキセンオキシド基を有する化合物が好ましく、より好ましくは下記式（Ｉ）で表される化合物である。

[化3]



（Ｉ）

[0031] 式（Ｉ）中、Ｘは単結合又は連結基（１以上の原子を有する二価の基）を示す。上記連結基としては、例えば、二価の炭化水素基、炭素－炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基（「エポキシ化アルケニレン基」と称する場合がある）、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、及びこれらが複数個連結した基等が挙げられる。なお、式（Ｉ）におけるシクロヘキサン環（シクロヘキセンオキシド基）を構成する炭素原子の１以上には、アルキル基等の置換基が結合していてもよい。

[0032] 式（Ｉ）中のＸが単結合である化合物としては、３，４，３’，４’－ジエポキシビシクロヘキサン等が挙げられる。

[0033] 上記二価の炭化水素基としては、炭素数が１～１８の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基、二価の脂環式炭化水素基等が挙げられる。炭素数が１～１８の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基等が挙げられる。上記二価の脂環式炭化水素基としては、例えば、１，２－シクロペンチレン基、１，３－シクロペンチレン基、シクロペンチリデン基、１，２－シクロヘキシレン基、１，３－シクロヘキシレン基、１，４－シクロヘキシレン基、シクロヘキシリデン基等のシクロアルキレン基（シクロアルキリデン基を含む）等が挙げられる。

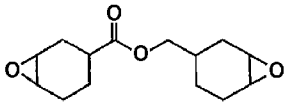
[0034] 上記炭素－炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基（エポキシ化アルケニレン基）におけるアルケニレン基としては、例えば

、ビニレン基、プロペニレン基、１－ブテニレン基、２－ブテニレン基、ブタジエニレン基、ペンテニレン基、ヘキセニレン基、ヘプテニレン基、オクテニレン基等の炭素数２～８の直鎖又は分岐鎖状のアルケニレン基等が挙げられる。特に、上記エポキシ化アルケニレン基としては、炭素－炭素二重結合の全部がエポキシ化されたアルケニレン基が好ましく、より好ましくは炭素－炭素二重結合の全部がエポキシ化された炭素数２～４のアルケニレン基である。

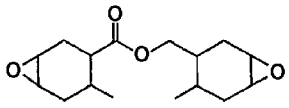
[0035] 上記Ｘにおける連結基としては、特に、酸素原子を含有する連結基が好ましく、具体的には、－ＣＯ－、－Ｏ－ＣＯ－Ｏ－、－ＣＯＯ－、－Ｏ－、－ＣＯＮＨ－、エポキシ化アルケニレン基；これらの基が複数個連結した基；これらの基の１又は２以上と二価の炭化水素基の１又は２以上とが連結した基等が挙げられる。二価の炭化水素基としては上記で例示したものが挙げられる。

[0036] 上記式（Ｉ）で表される化合物の代表的な例としては、下記式（Ｉ－１）～（Ｉ－１０）で表される化合物、２，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）プロパン、１，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）エタン、１，２－エポキシ－１，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）エタン、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル）エーテル等が挙げられる。なお、下記式（Ｉ－５）、（Ｉ－７）中のｌ、ｍは、それぞれ１～３０の整数を表す。下記式（Ｉ－５）中のＲは炭素数１～８のアルキレン基であり、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、ブチレン基、イソブチレン基、ｓ－ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基等の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が挙げられる。これらの中でも、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基等の炭素数１～３の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。下記式（Ｉ－９）、（Ｉ－１０）中のｎ１～ｎ６は、それぞれ１～３０の整数を示す。

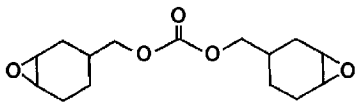
[化4]



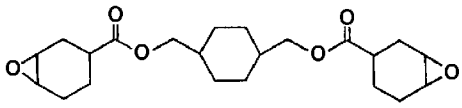
(I−1)



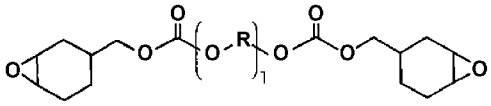
(I−2)



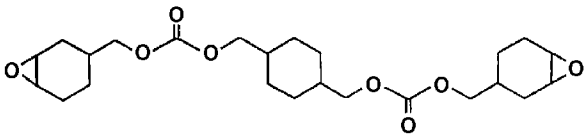
(I−3)



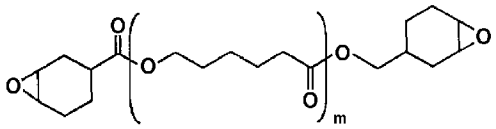
(I−4)



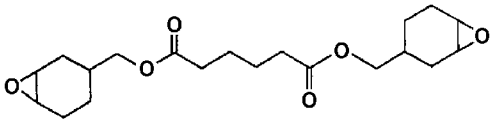
(I−5)



(I−6)

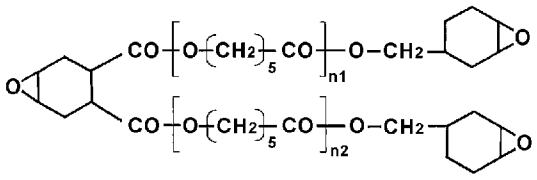


(I−7)

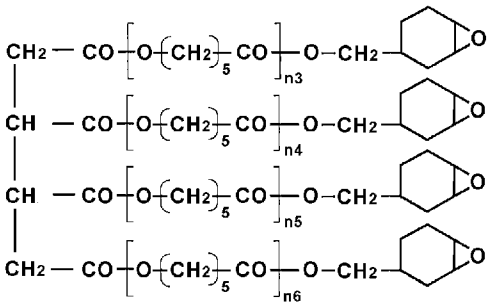


(I−8)

[化5]



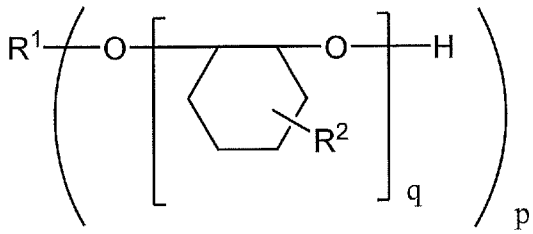
(I−9)



(I−10)

[0037] 上述の（ii）脂環に直接単結合で結合しているエポキシ基を有する化合物としては、例えば、下記式（II）で表される化合物（エポキシ樹脂）が挙げられる。

[化6]



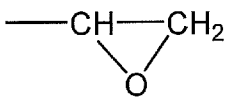
(II)

[0038] 上記式（II）中、R^1はｐ価の有機基を示す。ｐは、１～２０の整数を示す。ｐ価の有機基としては、例えば、後述のｐ個のヒドロキシ基を有する有機化合物の構造式からｐ個のヒドロキシ基を除いて形成された構造を有するｐ価の有機基等が挙げられる。

[0039] 式（II）中、ｑは、１～５０の整数を示す。なお、ｐが２以上の整数の場合、複数のｑは同一であってもよいし、異なっていてもよい。式（II）におけるｑの和（総和）は、３～１００の整数である。

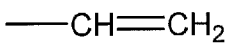
[0040] 式（II）中、R^2は、式中に示されるシクロヘキサン環上の置換基であり、下記式（IIａ）～（IIｃ）で表される基のいずれかを示す。上記シクロヘキサン環上のR^2の結合位置は特に限定されないが、通常、酸素原子と結合するシクロヘキサン環の２つの炭素原子の位置を１位、２位とした場合、４位又は５位の炭素原子である。また、式（II）で表される化合物が複数のシクロヘキサン環を有する場合、それぞれのシクロヘキサン環におけるR^2の結合位置は同一であってもよいし、異なっていてもよい。式（II）におけるR^2の少なくとも１つは、式（IIａ）で表される基（エポキシ基）である。なお、式（II）で表される化合物が２以上のR^2を有する場合、複数のR^2は同一であってもよいし、異なっていてもよい。

[化7]



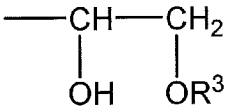
(IIa)

[化8]



(IIb)

[化9]



(IIc)

[0041] 式（IIｃ）中、R^3は、水素原子、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルキルカルボニル基、又は置換若しくは無置換のアリールカルボニル基を示す。上記アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、２－エチルヘキシル基等の炭素数１～２０の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基等が挙げられる。上記アルキルカルボニル基としては、例えば、メチルカルボニル基（アセチル基）、エチルカルボニル基、ｎ－プロピルカルボニル基、イソプロピルカルボニル基、ｎ－ブチルカルボニル基、イソブチルカルボニル基、ｓ

－ブチルカルボニル基、ｔ－ブチルカルボニル基等の炭素数１～２０の直鎖又は分岐鎖状のアルキル－カルボニル基等が挙げられる。上記アリールカルボニル基としては、例えば、フェニルカルボニル基（ベンゾイル基）、１－ナフチルカルボニル基、２－ナフチルカルボニル基等の炭素数６～２０のアリール－カルボニル基等が挙げられる。

[0042] 上述のアルキル基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基が有していてもよい置換基としては、例えば、炭素数０～２０（より好ましくは炭素数０～１０）の置換基等が挙げられる。上記置換基としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子；ヒドロキシ基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブチルオキシ基等のアルコキシ基（好ましくはC_{1-6}アルコキシ基、より好ましくはC_{1-4}アルコキシ基）；アリルオキシ基等のアルケニルオキシ基（好ましくはC_{2-6}アルケニルオキシ基、より好ましくはC_{2-4}アルケニルオキシ基）；アセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基、（メタ）アクリロイルオキシ基等のアシルオキシ基（好ましくはC_{1-12}アシルオキシ基）；メルカプト基；メチルチオ基、エチルチオ基等のアルキルチオ基（好ましくはC_{1-6}アルキルチオ基、より好ましくはC_{1-4}アルキルチオ基）；アリルチオ基等のアルケニルチオ基（好ましくはC_{2-6}アルケニルチオ基、より好ましくはC_{2-4}アルケニルチオ基）；カルボキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基（好ましくはC_{1-6}アルコキシ－カルボニル基）；アミノ基；メチルアミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のモノ又はジアルキルアミノ基（好ましくはモノ又はジ－C_{1-6}アルキルアミノ基）；アセチルアミノ基、プロピオニルアミノ基等のアシルアミノ基（好ましくはC_{1-11}アシルアミノ基）；エチルオキセタニルオキシ基等のオキセタニル基含有基；アセチル基、プロピオニル基等のアシル基；オキソ基；これらの２以上が必要に応じてC_{1-6}アルキレン基を介して結合した基等が挙げられる。また、上述のアリールカルボニル基が有していてもよい置換基としては、さらに、上記

置換若しくは無置換のアルキル基、上記置換若しくは無置換のアルキルカルボニル基も挙げられる。

[0043] 式（II）で表される化合物におけるR^2の全量（１００モル％）に対する、式（IIａ）で表される基（エポキシ基）の割合は、特に限定されないが、４０モル％以上（例えば、４０～１００モル％）が好ましく、より好ましくは６０モル％以上、さらに好ましくは８０モル％以上である。上記割合が４０モル％以上であると、硬化物の耐熱性や耐光性、機械特性等がより向上する傾向がある。なお、上記割合は、例えば、^{1}Ｈ－ＮＭＲスペクトル測定や、オキシラン酸素濃度測定等により算出することができる。

[0044] 式（II）で表される化合物は、特に限定されないが、例えば、分子内にｐ個のヒドロキシ基を有する有機化合物［R^1（ＯＨ）$_p$］を開始剤として（即ち、当該化合物のヒドロキシ基（活性水素）を出発点として）、１，２－エポキシ－４－ビニルシクロヘキサン（３－ビニル－７－オキサビシクロ［４．１．０］ヘプタン）を開環重合（カチオン重合）させ、その後、酸化剤によりエポキシ化することによって製造される。

[0045] 上記分子内にｐ個のヒドロキシ基を有する有機化合物［R^1（ＯＨ）$_p$］としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、オクタノール等の脂肪族アルコール；エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、１，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、ネオペンチルグリコールエステル、シクロヘキサンジメタノール、グリセリン、ジグリセリン、ポリグリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、水添ビスフェノールＡ、水添ビスフェノールＦ、水添ビスフェノールＳ等の多価アルコール；ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル部分加水分解物、デンプン、アクリルポリオール樹脂、スチレン－アリルアルコール共重合樹脂、ポリエステルポリオール、ポリカプロラクトンポリオール、ポリ

プロピレンポリオール、ポリテトラメチレングリコール、ポリカーボネートポリオール類、ヒドロキシ基を有するポリブタジエン、セルロース、セルロースアセテート、セルロースアセテートブチレート、ヒドロキシエチルセルロース等のセルロース系ポリマー等のヒドロキシ基を有するオリゴマー又はポリマー等が挙げられる。

[0046] 上記１，２－エポキシ－４－ビニルシクロヘキサンは、公知乃至慣用の方法により製造でき、特に限定されないが、例えば、ブタジエンの二量化反応によって得られる４－ビニルシクロヘキセンを、過酢酸等の酸化剤を使用して部分エポキシ化することによって得られる。また、１，２－エポキシ－４－ビニルシクロヘキサンとしては、市販品を使用することもできる。

[0047] また、上記酸化剤としては、過酸化水素や有機過酸等の公知乃至慣用の酸化剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、有機過酸としては、過ギ酸、過酢酸、過安息香酸、トリフルオロ過酢酸等が挙げられる。中でも、過酢酸は工業的に安価に入手可能であり、かつ安定度も高いため、好ましい。

[0048] なお、上述の開環重合及びエポキシ化は、より具体的には、例えば、特開昭６０－１６１９７３号公報等に記載の周知慣用の方法に従って実施することができる。

[0049] 式（II）で表される化合物の標準ポリスチレン換算の重量平均分子量は、特に限定されないが、３００～１００００００が好ましく、より好ましくは１０００～１００００である。重量平均分子量が３００以上であると、硬化物の機械強度や耐熱性、耐光性が向上する傾向がある。一方、重量平均分子量が１００００００以下であると、粘度が高くなり過ぎず成型時の流動性を低く維持しやすい傾向がある。なお、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法により測定される。

[0050] 式（II）で表される化合物のエポキシ基の当量（エポキシ当量）は、特に限定されないが、５０～１０００が好ましく、より好ましくは１００～５００である。エポキシ当量が５０以上であると、硬化物が脆くなりにくい傾向

がある。一方、エポキシ当量が１０００以下であると、硬化物の機械強度が向上する傾向がある。なお、エポキシ当量は、ＪＩＳ　Ｋ７２３６：２００１に準じて測定される。

[0051] 本発明の硬化性樹脂組成物において脂環式エポキシ化合物（Ａ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。また、脂環式エポキシ化合物（Ａ）は、公知乃至慣用の方法により製造することもできるし、例えば、商品名「セロキサイド２０２１Ｐ」、「セロキサイド２０８１」（以上、（株）ダイセル製）等の市販品を使用することもできる。

[0052] 脂環式エポキシ化合物（Ａ）は、調合時、及び注型時などの作業性の点から、常温（２５℃）で液状を呈するものが好ましい。また、常温（２５℃）で固体である脂環式エポキシ化合物（Ａ）であっても、配合した後に液状を呈するものであれば、含有していてもよい。

[0053] 中でも、本発明の硬化性樹脂組成物は、硬化物（リフレクター）の光反射性、耐熱性及び耐光性がより向上する観点から、（ｉ）脂環式エポキシ基を有する化合物を少なくとも含むことが好ましく、さらに（ii）脂環に直接単結合で結合しているエポキシ基を有する化合物を含むことがより好ましい。

[0054] 本発明の硬化性樹脂組成物における脂環式エポキシ化合物（Ａ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～６０重量％が好ましく、より好ましくは０．３～５０重量％、さらに好ましくは０．５～４０重量％である。脂環式エポキシ化合物（Ａ）の含有量を０．１重量％以上とすることにより、硬化物（リフレクター）の耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、脂環式エポキシ化合物（Ａ）の含有量を６０重量％以下とすることにより、硬化物（リフレクター）の耐熱性及び耐光性がより向上し、線膨張係数が低減され、光半導体素子搭載用基板におけるリードフレームの反り等の不具合の発生が抑制される傾向がある。

[0055] 脂環式エポキシ化合物（Ａ）以外のエポキシ化合物を含有する場合、本発

明の硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量（１００重量％）に対する脂環式エポキシ化合物（Ａ）の割合は、特に限定されないが、例えば、１～９０重量％が好ましく、より好ましくは５～８０重量％、さらに好ましくは１０～７０重量％である。上記範囲内とすることで、硬化物（リフレクター）の耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。なお、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物としては、例えば、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）等が挙げられる。

[0056] なお、本明細書において、本発明の硬化性樹脂組成物に含まれる各成分（例えば、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、硬化触媒（Ｇ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、シロキサン誘導体（Ｉ）等）の含有量は、それぞれ、合計が１００重量％以下となるように、記載の範囲内から適宜選択することができる。

[0057] ［ゴム粒子（Ｂ）］

本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分であるゴム粒子（Ｂ）は、ゴム弾性を有する粒子である。本発明の硬化性樹脂組成物は、ゴム粒子（Ｂ）を脂環式エポキシ化合物（Ａ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）と組み合わせて用いることにより、形成される硬化物の光反射性、耐熱性、耐光性、及び耐クラック性に優れ、特にコンプレッション成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮される傾向がある。

[0058] ゴム粒子（Ｂ）としては、例えば、粒子状ＮＢＲ（アクリロニトリル－ブタジエンゴム）、反応性末端カルボキシ基ＮＢＲ（ＣＴＢＮ）、メタルフリーＮＢＲ、粒子状ＳＢＲ（スチレン－ブタジエンゴム）等のゴム粒子が挙げられる。ゴム粒子（Ｂ）としては、分散性が良好であり靭性向上（耐クラック性向上）の効果を得られやすい観点から、ゴム弾性を有するコア部分と、該コア部分を被覆する少なくとも１層のシェル層とからなる多層構造（コア

シェル構造）を有するゴム粒子（以下、「コアシェル型ゴム粒子」と称する場合がある）が好ましい。ゴム粒子（Ｂ）は、硬化物の耐熱性及び耐光性がより向上する観点から、特に、（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分とするポリマー（重合体）で構成され、表面に脂環式エポキシ化合物（Ａ）等のエポキシ基を有する化合物と反応し得る官能基としてヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基（ヒドロキシ基及びカルボキシ基のいずれか一方又は両方）を有するゴム粒子が好ましい。即ち、ゴム粒子（Ｂ）は、（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分とするポリマー（アクリル系ポリマー）で構成された、コアシェル型ゴム粒子であることが特に好ましい。なお、本発明の硬化性樹脂組成物においてゴム粒子（Ｂ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。

[0059] ゴム粒子（Ｂ）がコアシェル型ゴム粒子である場合、上記ゴム弾性を有するコア部分を構成するポリマーは、特に限定されないが、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸ブチル等の（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分として含むポリマーであることが好ましい。上記ゴム弾性を有するコア部分を構成するポリマーは、その他、例えば、スチレン、α－メチルスチレン等の芳香族ビニル；アクリロニトリル、メタクリロニトリル等のニトリル；ブタジエン、イソプレン等の共役ジエン；エチレン、プロピレン、イソブテン等のα－オレフィン等をモノマー成分として含んでいてもよい。

[0060] 中でも、上記ゴム弾性を有するコア部分を構成するポリマーは、モノマー成分として、（メタ）アクリル酸エステルと共に、芳香族ビニル、ニトリル、及び共役ジエンからなる群より選択された一種又は二種以上を組み合わせて含むことが好ましい。即ち、上記コア部分を構成するポリマーとしては、例えば、（メタ）アクリル酸エステル／芳香族ビニル、（メタ）アクリル酸エステル／共役ジエン等の二元共重合体；（メタ）アクリル酸エステル／芳香族ビニル／共役ジエン等の三元共重合体等が挙げられる。なお、上記コア部分を構成するポリマーには、ポリジメチルシロキサンやポリフェニルメチ

ルシロキサン等のシリコーンやポリウレタン等が含まれていてもよい。

[0061] 上記コア部分を構成するポリマーは、その他のモノマー成分として、ジビニルベンゼン、アリル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジアリルマレエート、トリアリルシアヌレート、ジアリルフタレート、ブチレングリコールジアクリレート等の分子内に２個以上の反応性官能基を有する反応性架橋モノマーを含有していてもよい。

[0062] 上記コア部分は、中でも、（メタ）アクリル酸エステル及び芳香族ビニル（特に、アクリル酸ブチル及びスチレン）を含む二元又は三元共重合体より構成されたコア部分であることが、コアシェル型ゴム粒子の屈折率を容易に調整できる点で好ましい。

[0063] 上記コア部分を構成するポリマーのガラス転移温度は、特に限定されないが、－１００～１０℃が好ましく、より好ましくは－８０～－１０℃、さらに好ましくは－６０～－２０℃である。上記ポリマーのガラス転移温度を上記範囲内とすることにより硬化物の耐クラック性が向上する傾向がある。なお、上記コア部分を構成するポリマーのガラス転移温度は、下記Ｆｏｘの式により算出される計算値を意味する（Ｂｕｌｌ．Ａｍ．Ｐｈｙｓ．Ｓｏｃ．，１（３）１２３（１９５６）参照）。下記Ｆｏｘの式中、Ｔｇはコア部分を構成するポリマーのガラス転移温度（単位：Ｋ）を示し、W_iはコア部分を構成するポリマーを構成する単量体全量に対する単量体ｉの重量分率を示す。また、Tg_iは単量体ｉの単独重合体のガラス転移温度（単位：Ｋ）を示す。下記Ｆｏｘの式は、コアを構成するポリマーが単量体１、単量体２、・・・、及び単量体ｎの共重合体である場合の式を示す。

$$1/Tg = W_1/Tg_1 + W_2/Tg_2 + \cdots + W_n/Tg_n$$

上記単独重合体のガラス転移温度は、各種文献に記載の値を採用することができ、例えば、「ＰＯＬＹＭＥＲ　ＨＡＮＤＢＯＯＫ　第３版」（Ｊｏｈｎ　Ｗｉｌｅｙ　＆　Ｓｏｎｓ，Ｉｎｃ．発行）に記載の値を採用できる。なお、文献に記載のないものについては、単量体を常法により重合して得られる単独重合体の、ＤＳＣ法により測定されるガラス転移温度の値を採用す

ることができる。

[0064] 上記コア部分は、通常用いられる方法で製造することができ、例えば、上記モノマーを乳化重合法により重合する方法等により製造することができる。乳化重合法においては、上記モノマーの全量を一括して仕込んで重合してもよいし、上記モノマーの一部を重合した後、残りを連続的に又は断続的に添加して重合してもよいし、さらに、シード粒子を使用する重合方法を使用してもよい。

[0065] なお、ゴム粒子（Ｂ）として、コアシェル構造を有しないゴム粒子を用いる場合には、例えば、上記コア部分のみからなるゴム粒子等を使用することができる。

[0066] コアシェル型ゴム粒子のシェル層を構成するポリマーは、上記コア部分を構成するポリマーとは異種のポリマー（異なるモノマー組成を有するポリマー）であることが好ましい。また、上述のように、上記シェル層は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）等のエポキシ基を有する化合物と反応し得る官能基としてヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基を有することが好ましい。これにより、特に、脂環式エポキシ化合物（Ａ）との界面で接着性を向上させることができ、該シェル層を有するコアシェル型ゴム粒子を含む硬化性樹脂組成物を硬化させた硬化物に対して、優れた耐クラック性を発揮させることができる。また、硬化物のガラス転移温度の低下を防止することもできる。

[0067] 上記シェル層を構成するポリマーは、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸ブチル等の（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分として含むポリマーであることが好ましい。例えば、上記コア部分における（メタ）アクリル酸エステルとしてアクリル酸ブチルを用いた場合、シェル層を構成するポリマーのモノマー成分としては、例えば、アクリル酸ブチル以外の（メタ）アクリル酸エステル（例えば、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル等）を使用することが好ましい。（メタ）アクリル酸エステル以外に含んでいてもよいモノマー成分としては、例えば、スチレン、α－メチルスチレ

ン等の芳香族ビニル；アクリロニトリル、メタクリロニトリル等のニトリル等が挙げられる。コアシェル型ゴム粒子においては、シェル層を構成するモノマー成分として、（メタ）アクリル酸エステルと共に、上記モノマーを単独で、又は二種以上を組み合わせて含むことが好ましく、特に、少なくとも芳香族ビニルを含むことが、コアシェル型ゴム粒子の屈折率を容易に調整できる点で好ましい。

[0068] さらに、上記シェル層を構成するポリマーは、モノマー成分として、脂環式エポキシ化合物（Ａ）等のエポキシ基を有する化合物と反応し得る官能基としてのヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基を形成するために、ヒドロキシ基含有モノマー（例えば、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート等のヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート等）や、カルボキシ基含有モノマー（例えば、（メタ）アクリル酸等のα，β－不飽和酸；マレイン酸無水物等のα，β－不飽和酸無水物等）を含有することが好ましい。

[0069] 上記シェル層を構成するポリマーは、モノマー成分として、（メタ）アクリル酸エステルと共に、上記モノマーから選択された一種又は二種以上を組み合わせて含むことが好ましい。即ち、上記シェル層は、例えば、（メタ）アクリル酸エステル／芳香族ビニル／ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリル酸エステル／芳香族ビニル／α，β－不飽和酸等の三元共重合体等から構成されたシェル層であることが好ましい。

[0070] また、上記シェル層を構成するポリマーは、その他のモノマー成分として、コア部分と同様に、上記モノマーの他にジビニルベンゼン、アリル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジアリルマレエート、トリアリルシアヌレート、ジアリルフタレート、ブチレングリコールジアクリレート等の分子内に２個以上の反応性官能基を有する反応性架橋モノマーを含有していてもよい。

[0071] 上記シェル層を構成するポリマーのガラス転移温度は、特に限定されないが、２０～２００℃が好ましく、より好ましくは４０～１８０℃、さらに好ましくは６０～１６０℃である。上記ポリマーのガラス転移温度を２０℃以

上とすることにより、硬化物の耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、上記ポリマーのガラス転移温度を２００℃以下とすることにより、ゴム粒子（Ｂ）の分散性及び硬化物の耐クラック性が向上する傾向がある。なお、上記シェル層を構成するポリマーのガラス転移温度は、上記Ｆｏｘの式により算出される計算値を意味し、例えば、上述のコアを構成するポリマーのガラス転移温度と同様にして測定できる。

[0072] コアシェル型ゴム粒子は、上記コア部分をシェル層により被覆することで得られる。上記コア部分をシェル層で被覆する方法としては、例えば、上記方法により得られたゴム弾性を有するコア部分の表面に、シェル層を構成するポリマーを塗布することにより被覆する方法；上記方法により得られたゴム弾性を有するコア部分を幹成分とし、シェル層を構成する各成分を枝成分としてグラフト重合する方法等が挙げられる。

[0073] ゴム粒子（Ｂ）の平均粒子径は、特に限定されないが、１０～５００ｎｍが好ましく、より好ましくは２０～４００ｎｍである。また、ゴム粒子（Ｂ）の最大粒子径は、特に限定されないが、５０～１０００ｎｍが好ましく、より好ましくは１００～８００ｎｍである。平均粒子径を５００ｎｍ以下（又は、最大粒子径を１０００ｎｍ以下）とすることにより、硬化物におけるゴム粒子（Ｂ）の分散性が向上し、耐クラック性が向上する傾向がある。一方、平均粒子径を１０ｎｍ以上（又は、最大粒子径を５０ｎｍ以上）とすることにより、硬化物の耐クラック性が向上する傾向がある。

[0074] ゴム粒子（Ｂ）の屈折率は、特に限定されないが、１．４０～１．６０が好ましく、より好ましくは１．４２～１．５８である。また、ゴム粒子（Ｂ）の屈折率と、該ゴム粒子（Ｂ）を含む硬化性樹脂組成物（本発明の硬化性樹脂組成物）を硬化させて得られる硬化物の屈折率との差は±０．０３以内であることが好ましい。

[0075] ゴム粒子（Ｂ）の屈折率は、例えば、ゴム粒子（Ｂ）１ｇを型に注型して２１０℃、４ＭＰａで圧縮成型し、厚さ１ｍｍの平板を得、得られた平板から、縦２０ｍｍ×横６ｍｍの試験片を切り出し、中間液としてモノブロモナ

フタレンを使用してプリズムと該試験片とを密着させた状態で、多波長アッベ屈折計（商品名「ＤＲ－Ｍ２」、（株）アタゴ製）を使用し、２０℃、ナトリウムＤ線での屈折率を測定することにより求めることができる。

[0076] 本発明の硬化性樹脂組成物の硬化物の屈折率は、例えば、下記硬化物の項に記載の加熱硬化方法により得られた硬化物から、縦２０ｍｍ×横６ｍｍ×厚さ１ｍｍの試験片を切り出し、中間液としてモノブロモナフタレンを使用してプリズムと該試験片とを密着させた状態で、多波長アッベ屈折計（商品名「ＤＲ－Ｍ２」、（株）アタゴ製）を使用し、２０℃、ナトリウムＤ線での屈折率を測定することにより求めることができる。

[0077] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるゴム粒子（Ｂ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０１～２０重量％が好ましく、より好ましくは０．０５～１５重量％、さらに好ましくは０．１～１０重量％である。ゴム粒子（Ｂ）の含有量を上記範囲内とすることにより、硬化物の耐クラック性が向上し、耐熱性及び耐光性がより優れる傾向がある。

[0078] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるゴム粒子（Ｂ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、０．５～３０重量部が好ましく、より好ましくは１～２０重量部である。ゴム粒子（Ｂ）の含有量を上記範囲内とすることにより、硬化物の耐クラック性が向上し、耐熱性及び耐光性がより優れる傾向がある。

[0079] ［白色顔料（Ｃ）］

本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分である白色顔料（Ｃ）は、主に、硬化物（リフレクター）に対して高い光反射性を付与し、また、その線膨張率を低減させる働きを有する。白色顔料（Ｃ）としては、公知乃至慣用の白色顔料を使用することができ、特に限定されないが、例えば、ガラス、クレー、雲母、タルク、カオリナイト（カオリン）、ハロイサイト、ゼオライト、酸性白土、活性白土、ベーマイト、擬ベーマイト、無機酸化物、金属塩［例

えば、アルカリ土類金属塩等］等の無機白色顔料；スチレン系樹脂、ベンゾグアナミン系樹脂、尿素－ホルマリン系樹脂、メラミン－ホルマリン系樹脂、アミド系樹脂等の樹脂顔料等の有機白色顔料（プラスチックピグメント等）；中空構造（バルーン構造）を有する中空粒子等が挙げられる。

[0080] 白色顔料（Ｃ）としては、リフレクターの反射率を高くするため屈折率が高い白色顔料を使用することが好ましく、例えば、屈折率が１．５以上の白色顔料が好ましい。但し、中空粒子構造を有する白色顔料は内部（コア）に低屈折率の気体を含み表面反射率が非常に大きいので、シェル部分は屈折率が１．５より低い材料で構成されていてもよい。なお、白色顔料（Ｃ）として例示するもののうち、無機充填剤（Ｄ）にも該当するものについては、屈折率が１．５以上のものは白色顔料（Ｃ）とし、屈折率が１．５より小さいものは無機充填剤（Ｄ）とする。

[0081] 上記無機酸化物としては、例えば、酸化アルミニウム（アルミナ）、酸化マグネシウム、酸化アンチモン、酸化チタン［例えば、ルチル型酸化チタン、アナターゼ型酸化チタン、ブルッカイト型酸化チタン等］、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛等が挙げられる。また、上記アルカリ土類金属塩としては、例えば、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸バリウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、水酸化マグネシウム、リン酸マグネシウム、リン酸水素マグネシウム、硫酸マグネシウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム等が挙げられる。また、アルカリ土類金属塩以外の金属塩としては、例えば、ケイ酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、硫化亜鉛等が挙げられる。

[0082] 上記中空粒子としては、特に限定されないが、例えば、無機ガラス［例えば、珪酸ソーダガラス、アルミ珪酸ガラス、硼珪酸ソーダガラス、石英等］、シリカ、アルミナ等の金属酸化物、炭酸カルシウム、炭酸バリウム、炭酸ニッケル、珪酸カルシウム等の金属塩等の無機物により構成された無機中空粒子（シラスバルーン等の天然物も含む）；スチレン系樹脂、アクリル系樹脂、シリコーン系樹脂、アクリル－スチレン系樹脂、塩化ビニル系樹脂、塩化ビニリデン系樹脂、アミド系樹脂、ウレタン系樹脂、フェノール系樹脂、

スチレン－共役ジエン系樹脂、アクリル－共役ジエン系樹脂、オレフィン系樹脂等のポリマー（これらポリマーの架橋体も含む）等の有機物により構成された有機中空粒子；無機物と有機物のハイブリッド材料により構成された無機－有機中空粒子等が挙げられる。なお、上記中空粒子は、単一の材料より構成されたものであってもよいし、二種以上の材料より構成されたものであってもよい。また、上記中空粒子の中空部（中空粒子の内部の空間）は、真空状態であってもよいし、媒質で満たされていてもよいが、特に、反射率向上の観点では、屈折率が低い媒質（例えば、窒素、アルゴン等の不活性ガスや空気等）で満たされた中空粒子が好ましい。

[0083] なお、白色顔料（Ｃ）は、公知乃至慣用の表面処理［例えば、金属酸化物、シランカップリング剤、チタンカップリング剤、有機酸、ポリオール、シリコーン等の表面処理剤による表面処理等］が施されたものであってもよい。このような表面処理を施すことにより、硬化性樹脂組成物における他の成分との相溶性や分散性を向上させることができる場合がある。

[0084] 中でも、白色顔料（Ｃ）としては、入手性、耐熱性、耐光性の観点、及び硬化物（リフレクター）の高反射率及び添加量に対する光反射性の上昇率の観点で、無機酸化物、無機中空粒子が好ましく、より好ましくは酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化アンチモン、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、硫酸バリウム、無機中空粒子、さらに好ましくは酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、硫酸バリウムである。特に、白色顔料（Ｃ）としては、より高い屈折率を有する点で、酸化チタンが好ましい。

[0085] 白色顔料（Ｃ）の形状は、特に限定されず、例えば、球状、破砕状、繊維状、針状、鱗片状等が挙げられる。中でも、分散性の観点で、球状の酸化チタンが好ましく、特に真球状の酸化チタン（例えば、アスペクト比が１．２以下の球状の酸化チタン）が好ましい。

[0086] 白色顔料（Ｃ）の中心粒径は、特に限定されないが、硬化物（リフレクター）の光反射性向上の観点で、０．１～５０μｍが好ましい。特に、白色顔料（Ｃ）として酸化チタンを使用する場合、該酸化チタンの中心粒径は、特

に限定されないが、０．１～５０μｍが好ましく、より好ましくは０．１～３０μｍ、さらに好ましくは０．１～２０μｍ、特に好ましくは０．１～１０μｍ、最も好ましくは０．１～５μｍである。一方、白色顔料（Ｃ）として中空粒子（特に、無機中空粒子）を用いる場合、該中空粒子の中心粒径は、特に限定されないが、０．１～５０μｍが好ましく、より好ましくは０．１～３０μｍである。なお、上記中心粒径は、レーザー回折・散乱法で測定した粒度分布における積算値５０％での粒径（メディアン径）を意味する。

[0087] 本発明の硬化性樹脂組成物において白色顔料（Ｃ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。また、白色顔料（Ｃ）は、公知乃至慣用の方法により製造することもできるし、例えば、商品名「ＳＲ－１」、「Ｒ－４２」、「Ｒ－４５Ｍ」、「Ｒ－６５０」、「Ｒ－３２」、「Ｒ－５Ｎ」、「ＧＴＲ－１００」、「Ｒ－６２Ｎ」、「Ｒ－７Ｅ」、「Ｒ－４４」、「Ｒ－３Ｌ」、「Ｒ－１１Ｐ」、「Ｒ－２１」、「Ｒ－２５」、「ＴＣＲ－５２」、「Ｒ－３１０」、「Ｄ－９１８」、「ＦＴＲ－７００」（以上、堺化学工業（株）製）、商品名「タイペークＣＲ－５０」、「ＣＲ－５０－２」、「ＣＲ－６０」、「ＣＲ－６０－２」、「ＣＲ－６３」、「ＣＲ－８０」、「ＣＲ－９０」、「ＣＲ－９０－２」、「ＣＲ－９３」、「ＣＲ－９５」、「ＣＲ－９７」（以上、石原産業（株）製）、商品名「ＪＲ－３０１」、「ＪＲ－４０３」、「ＪＲ－４０５」、「ＪＲ－６００Ａ」、「ＪＲ－６０５」、「ＪＲ－６００Ｅ」、「ＪＲ－６０３」、「ＪＲ－８０５」、「ＪＲ－８０６」、「ＪＲ－７０１」、「ＪＲＮＣ」、「ＪＲ－８００」、「ＪＲ」（以上、テイカ（株）製）、商品名「ＴＲ－６００」、「ＴＲ－７００」、「ＴＲ－７５０」、「ＴＲ－８４０」、「ＴＲ－９００」（以上、富士チタン工業（株）製）、商品名「ＫＲ－３１０」、「ＫＲ－３８０」、「ＫＲ－３８０Ｎ」、「ＳＴ－４１０ＷＢ」、「ＳＴ－４５５」、「ＳＴ－４５５ＷＢ」、「ＳＴ－４５７ＳＡ」、「ＳＴ－４５７ＥＣ」、「ＳＴ－４８５ＳＡ１５」、「ＳＴ－４８６ＳＡ」、「ＳＴ－４９５Ｍ」（以上、チタン工業（株）製）等のルチル型酸化チタン；商

品名「Ａ－１１０」、「ＴＣＡ－１２３Ｅ」、「Ａ－１９０」、「Ａ－１９７」、「ＳＡ－１」、「ＳＡ－１Ｌ」、「ＳＳＰシリーズ」、「ＣＳＢシリーズ」（以上、堺化学工業（株）製）、商品名「ＪＡ－１」、「ＪＡ－Ｃ」、「ＪＡ－３」（以上、テイカ（株）製）、商品名「ＫＡ－１０」、「ＫＡ－１５」、「ＫＡ－２０」、「ＳＴＴ－６５Ｃ－Ｓ」、「ＳＴＴ－３０ＥＨＪ」（以上、チタン工業（株）製）、商品名「ＤＣＦ－Ｔ－１７００７」、「ＤＣＦ－Ｔ－１７００８」、「ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０」（以上、レジノカラー工業（株）製）等のアナターゼ型酸化チタン等の市販品を使用することもできる。

[0088] 中でも、白色顔料（Ｃ）としては、特に硬化物（リフレクター）の光反射性及び耐熱性向上の観点で、商品名「Ｒ－６２Ｎ」、「ＣＲ－６０」、「ＤＣＦ－Ｔ－１７００７」、「ＤＣＦ－Ｔ－１７００８」、「ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０」、「ＦＴＲ－７００」が好ましい。

[0089] 本発明の硬化性樹脂組成物における白色顔料（Ｃ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～５０重量％が好ましく、より好ましくは１～４０重量％、さらに好ましくは５～３５重量％である。白色顔料（Ｃ）の含有量を０．１重量％以上とすることにより、硬化物（リフレクター）の光反射性がより向上する傾向がある。また、耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、白色顔料（Ｃ）の含有量を６０重量％以下とすることにより、硬化物（リフレクター）の成型性が向上し、量産により適する傾向がある。

[0090] 本発明の硬化性樹脂組成物における白色顔料（Ｃ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、１０～６００重量部が好ましく、より好ましくは３０～５００重量部、さらに好ましくは３０～４００重量部である。白色顔料（Ｃ）の含有量が１０重量部以上であることにより、硬化物（リフレクター）の光反射性がより向上する傾向がある。また、耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、白色顔料（Ｃ）の含有量が６００重量

部以下であることにより、硬化物（リフレクター）の成型性が向上し、量産により適する傾向がある。

[0091] 本発明の硬化性樹脂組成物に酸化チタンが含まれる場合、白色顔料（Ｃ）と無機充填剤（Ｄ）の総量（１００重量％）に対する酸化チタンの割合は、特に限定されないが、硬化物（リフレクター）の耐熱性と光反射性のバランスの観点で、５～７０重量％が好ましく、より好ましくは１０～６０重量％である。酸化チタンの割合を５重量％以上とすることにより、硬化物（リフレクター）の光反射性がより向上する傾向がある。また、耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、酸化チタンの割合を７０重量％以下とすることにより、硬化物（リフレクター）の成型性が向上し、量産により適する傾向がある。

[0092] ［無機充填剤（Ｄ）］

本発明の硬化性樹脂組成物は、白色顔料（Ｃ）とは別に、無機充填剤（Ｄ）を必須成分として含む。無機充填剤（Ｄ）は、主に、硬化物（リフレクター）に優れた耐熱性及び耐光性（特に、優れた耐熱性）を付与する。また、硬化物（リフレクター）の線膨張率を低減させる働きを有する。また、無機充填剤（Ｄ）の種類によっては、硬化物（リフレクター）に対して優れた光反射性を付与できる場合もある。

[0093] 無機充填剤（Ｄ）としては、公知乃至慣用の無機充填剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、シリカ、アルミナ、ジルコン、珪酸カルシウム、リン酸カルシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、水酸化アルミニウム、酸化鉄、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、酸化アルミニウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、フォステライト、ステアタイト、スピネル、クレー、カオリン、ドロマイト、ヒドロキシアパタイト、ネフェリンサイナイト、クリストバライト、ウォラストナイト、珪藻土、タルク等の粉体、又はこれらの成型体（例えば、球形化したビーズ等）等が挙げられる。また、無機充填剤（Ｄ）としては、上述の無機充填剤に公知乃

至慣用の表面処理が施されたもの等も挙げられる。中でも、無機充填剤（Ｄ）としては、硬化物（リフレクター）の耐熱性、耐光性、及び流動性の観点で、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化ホウ素が好ましい。

[0094] シリカとしては、特に限定されず、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、高純度合成シリカ等の公知乃至慣用のシリカを使用できる。なお、シリカとしては、公知乃至慣用の表面処理［例えば、金属酸化物、シランカップリング剤、チタンカップリング剤、有機酸、ポリオール、シリコーン等の表面処理剤による表面処理等］が施されたものを使用することもできる。

[0095] シリカの形状は、特に限定されないが、例えば、粉体、球状、破砕状、繊維状、針状、鱗片状等が挙げられる。中でも、分散性の観点で、球状のシリカが好ましく、特に真球状のシリカ（例えば、アスペクト比が１．２以下の球状のシリカ）が好ましい。

[0096] シリカの中心粒径は、特に限定されないが、硬化物（リフレクター）の光反射性向上の観点で、０．１～５０μｍが好ましく、より好ましくは０．１～３０μｍである。なお、上記中心粒径は、レーザー回折・散乱法で測定した粒度分布における積算値５０％での粒径（メディアン径）を意味する。

[0097] なお、本発明の硬化性樹脂組成物において無機充填剤（Ｄ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。また、無機充填剤（Ｄ）は、公知乃至慣用の製造方法により製造することもできるし、例えば、商品名「ＦＢ－９１０」、「ＦＢ－９４０」、「ＦＢ－９５０」、「ＦＢ－１０５」、「ＦＢ－１０５ＦＤ」、「ＦＢ－５Ｄ」、「ＦＢ－８Ｓ」、「ＦＢ－７ＳＤＣ」、「ＦＢ－５ＳＤＣ」、「ＦＢ－３ＳＤＣ」、「ＦＢ－９ＦＤＣ」、「ＦＢ－７ＦＤＣ」、「ＦＢ－５ＦＤＣ」、「ＦＢ－９７０ＦＤ」、「ＦＢ－９７５ＦＤ」、「ＦＢ－９５０ＦＤ」、「ＦＢ－４０ＲＦＤ」等のＦＢシリーズ、商品名「ＤＡＷ－０３ＤＣ」、「ＤＡＷ－０５２５」、「ＤＡＷ－１０２５」等のＤＡＷシリーズ、商品名「ＳＧＰ」（以上、デンカ（株）製）、商品名「ＨＦ－０５」（（株）トクヤ

マ製）、商品名「１０μｍＳＥ－ＣＣ５」（（株）アドマテックス製）、商品名「ＭＳＲ－２２１２」、「ＭＳＲ－２５」（以上、（株）龍森製）、商品名「ＨＳ－１０５」、「ＨＳ－１０６」、「ＨＳ－１０７」（以上、マイクロン社製）等の市販品を使用することもできる。

[0098] 本発明の硬化性樹脂組成物における無機充填剤（Ｄ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、１０～９０重量％が好ましく、より好ましくは１３～７５重量％、さらに好ましくは１５～７０重量％、さらに好ましくは２０～７０重量％である。無機充填剤（Ｄ）の含有量を１０重量％以上とすることにより、硬化物の耐熱性及び耐光性（特に、優れた耐熱性）がより向上する傾向がある。また、硬化物（リフレクター）の線膨張係数が低くなって、該リフレクターを用いた光半導体素子搭載用基板におけるリードフレームの反り等の不具合が生じにくくなる傾向がある。一方、無機充填剤（Ｄ）の含有量を９０重量％以下とすることにより、硬化物（リフレクター）の成型性が向上し、量産により適する傾向がある。

[0099] 本発明の硬化性樹脂組成物における無機充填剤（Ｄ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、１０～１５００重量部が好ましく、より好ましくは５０～１２００重量部、さらに好ましくは１００～１０００重量部である。無機充填剤（Ｄ）の含有量が１０重量部以上であることにより、硬化物の耐熱性及び耐光性（特に、優れた耐熱性）がより向上する傾向がある。また、硬化物（リフレクター）の線膨張係数が低くなって、該リフレクターを用いた光半導体素子搭載用基板におけるリードフレームの反り等の不具合が生じにくくなる傾向がある。一方、無機充填剤（Ｄ）の含有量が１５００重量部以下であることにより、硬化物（リフレクター）の成型性が向上し、量産により適する傾向がある。

[0100] 本発明の硬化性樹脂組成物における白色顔料（Ｃ）及び無機充填剤（Ｄ）の最大粒子径は、特に限定されないが、２００μｍ以下が好ましく、より好

ましくは１８５μｍ以下、さらに好ましくは１７５μｍ以下、特に好ましくは１５０μｍ以下である。上記最大粒子径が２００μｍ以下であると、最大粒子径が２００μｍを超える白色顔料又は無機充填剤を用いる場合よりも、硬化物の耐熱性、耐光性、及び耐クラック性（特に、優れた耐熱性）がさらに優れる傾向がある。また、最大粒子径が小さい白色顔料（Ｃ）及び無機充填剤（Ｄ）を用いることにより、これらの含有量を増やすことが可能となり、硬化物の光反射性、耐熱性及び耐光性がよりいっそう向上する傾向がある。上記最大粒子径の下限は、例えば０．０１μｍ以上である。なお、上記最大粒子径は、本発明の硬化性樹脂組成物に含まれる白色顔料（Ｃ）及び無機充填剤（Ｄ）のトータルの最大粒子径である。上記最大粒子径は、レーザー回折・散乱法で測定した粒度分布における最大の粒径を意味する。

[0101] ［硬化剤（Ｅ）］

本発明の硬化性樹脂組成物における硬化剤（Ｅ）は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）等のエポキシ基を有する化合物と反応することにより、硬化性樹脂組成物を硬化させる働きを有する化合物である。硬化剤（Ｅ）としては、公知乃至慣用のエポキシ樹脂用硬化剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、酸無水物類（酸無水物系硬化剤）、アミン類（アミン系硬化剤）、ポリアミド樹脂、イミダゾール類（イミダゾール系硬化剤）、ポリメルカプタン類（ポリメルカプタン系硬化剤）、フェノール類（フェノール系硬化剤）、ポリカルボン酸類、ジシアンジアミド類、有機酸ヒドラジド等が挙げられる。

[0102] 硬化剤（Ｅ）としての酸無水物類（酸無水物系硬化剤）としては、公知乃至慣用の酸無水物系硬化剤を使用でき、特に限定されないが、例えば、メチルテトラヒドロ無水フタル酸（４－メチルテトラヒドロ無水フタル酸、３－メチルテトラヒドロ無水フタル酸等）、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸（４－メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、３－メチルヘキサヒドロ無水フタル酸等）、ドデセニル無水コハク酸、メチルエンドメチレンテトラヒドロ無水フタル酸、無水フタル酸、無水マレイン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘ

キサヒドロ無水フタル酸、メチルシクロヘキセンジカルボン酸無水物、無水ピロメリット酸、無水トリメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸無水物、無水ナジック酸、無水メチルナジック酸、水素化メチルナジック酸無水物、４－（４－メチル－３－ペンテニル）テトラヒドロ無水フタル酸、無水コハク酸、無水アジピン酸、無水セバシン酸、無水ドデカン二酸、メチルシクロヘキセンテトラカルボン酸無水物、ビニルエーテル－無水マレイン酸共重合体、アルキルスチレン－無水マレイン酸共重合体等が挙げられる。中でも、均一な硬化性樹脂組成物を効率的に調製することができる観点、脂環式エポキシ化合物（Ａ）と混合して２５℃で液状の混合物（硬化剤組成物）としやすい観点で、２５℃で液状の酸無水物［例えば、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、ドデセニル無水コハク酸、メチルエンドメチレンテトラヒドロ無水フタル酸等］が好ましい。一方、２５℃で固体状の酸無水物については、例えば、２５℃で液状の酸無水物に溶解させて液状の混合物とすることで、本発明の硬化性樹脂組成物における硬化剤（Ｅ）としての取り扱い性が向上する傾向がある。酸無水物系硬化剤としては、硬化物の耐熱性、光反射性の観点で、飽和単環炭化水素ジカルボン酸の無水物（環にアルキル基等の置換基が結合したものも含む）が好ましい。

[0103] 硬化剤（Ｅ）としてのアミン類（アミン系硬化剤）としては、公知乃至慣用のアミン系硬化剤を使用でき、特に限定されないが、例えば、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジプロピレンジアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ポリプロピレントリアミン等の脂肪族ポリアミン；メンセンジアミン、イソホロンジアミン、ビス（４－アミノ－３－メチルジシクロヘキシル）メタン、ジアミノジシクロヘキシルメタン、ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、Ｎ－アミノエチルピペラジン、３，９－ビス（３－アミノプロピル）－３，４，８，１０－テトラオキサスピロ［５，５］ウンデカン等の脂環式ポリアミン；ｍ－フェニレンジアミン、ｐ－フェニレンジアミン、トリレン－２，４

－ジアミン、トリレン－２，６－ジアミン、メシチレン－２，４－ジアミン、３，５－ジエチルトリレン－２，４－ジアミン、３，５－ジエチルトリレン－２，６－ジアミン等の単核ポリアミン、ビフェニレンジアミン、４，４－ジアミノジフェニルメタン、２，５－ナフチレンジアミン、２，６－ナフチレンジアミン等の芳香族ポリアミン等が挙げられる。

[0104] 硬化剤（Ｅ）としてのフェノール類（フェノール系硬化剤）としては、公知乃至慣用のフェノール系硬化剤を使用でき、特に限定されないが、例えば、ノボラック型フェノール樹脂、ノボラック型クレゾール樹脂、パラキシリレン変性フェノール樹脂、パラキシリレン・メタキシリレン変性フェノール樹脂等のアラルキル樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、トリフェノールプロパン等が挙げられる。

[0105] 硬化剤（Ｅ）としてのポリアミド樹脂としては、例えば、分子内に第１級アミノ基及び第２級アミノ基のいずれか一方又は両方を有するポリアミド樹脂等が挙げられる。

[0106] 硬化剤（Ｅ）としてのイミダゾール類（イミダゾール系硬化剤）としては、公知乃至慣用のイミダゾール系硬化剤を使用でき、特に限定されないが、例えば、２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－ウンデシルイミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾリウムトリメリテート、２－メチルイミダゾリウムイソシアヌレート、２－フェニルイミダゾリウムイソシアヌレート、２，４－ジアミノ－６－［２－メチルイミダゾリル－（１）］－エチル－ｓ－トリアジン、２，４－ジアミノ－６－［２－エチル－４－メチルイミダゾリル－（１）］－エチル－ｓ－トリアジン等が挙げられる。

[0107] 硬化剤（Ｅ）としてのポリメルカプタン類（ポリメルカプタン系硬化剤）

としては、例えば、液状のポリメルカプタン、ポリスルフィド樹脂等が挙げられる。

[0108] 硬化剤（Ｅ）としてのポリカルボン酸類としては、例えば、アジピン酸、セバシン酸、テレフタル酸、トリメリット酸、カルボキシ基含有ポリエステル等が挙げられる。

[0109] 中でも、硬化剤（Ｅ）としては、硬化物の耐熱性、耐光性、光反射性の観点で、酸無水物類（酸無水物系硬化剤）が好ましい。なお、本発明の硬化性樹脂組成物において硬化剤（Ｅ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。なお、硬化剤は公知乃至慣用の方法により製造することもできるし、例えば、商品名「リカシッドＭＨ－７００」、「リカシッドＭＨ－７００Ｆ」、「リカシッドＭＨ－７００Ｇ」、「リカシッドＴＨ」、「リカシッドＨＨ」、「リカシッドＨＮＡ－１００」（以上、新日本理化（株）製）；商品名「ＨＮ－５５００」（日立化成工業（株）製）；商品名「Ｈ－ＴＭＡｎ－Ｓ」、「Ｈ－ＴＭＡｎ」（以上、三菱ガス化学（株）製）；商品名「ＹＨ１１２０」（三菱化学（株）製）等の市販品を使用することもできる。

[0110] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化剤（Ｅ）を含有する場合、硬化剤（Ｅ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、１～４０重量％が好ましく、より好ましくは３～３５重量％、さらに好ましくは５～３０重量％である。硬化剤（Ｅ）の含有量を１重量％以上とすることにより、硬化がより十分となり、硬化物の耐クラック性が向上する傾向がある。一方、硬化剤（Ｅ）の含有量を４０重量％以下とすることにより、着色がより抑制され色相に優れた硬化物（リフレクター）が得られやすい傾向がある。

[0111] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化剤（Ｅ）を含有する場合、硬化剤（Ｅ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、４０～２００重量部が好ましく、より好ましくは５０～１５０重量部である。より具体的には

、硬化剤（Ｅ）として酸無水物類を使用する場合、本発明の硬化性樹脂組成物に含まれる全てのエポキシ基を有する化合物におけるエポキシ基１当量当たり、０．５～１．５当量となる割合で使用することが好ましい。硬化剤（Ｅ）の含有量を４０重量部以上とすることにより、硬化がより十分となり、硬化物の耐クラック性が向上する傾向がある。一方、硬化剤（Ｅ）の含有量を２００重量部以下とすることにより、着色がより抑制され色相に優れた硬化物（リフレクター）が得られやすい傾向がある。

[0112] ［硬化促進剤（Ｆ）］

本発明の硬化性樹脂組成物は、硬化促進剤（Ｆ）を含んでいてもよい。硬化促進剤（Ｆ）は、本発明の硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物（例えば、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ））が硬化剤（Ｅ）等の硬化剤と反応する際、その反応速度を促進する機能を有する化合物である。硬化促進剤（Ｆ）としては、公知乃至慣用の硬化促進剤を使用することができ、例えば、１，８－ジアザビシクロ［５．４．０］ウンデセン－７（ＤＢＵ）又はその塩（例えば、フェノール塩、オクチル酸塩、ｐ－トルエンスルホン酸塩、ギ酸塩、テトラフェニルボレート塩等）；１，５－ジアザビシクロ［４．３．０］ノネン－５（ＤＢＮ）又はその塩（例えば、フェノール塩、オクチル酸塩、ｐ－トルエンスルホン酸塩、ギ酸塩、テトラフェニルボレート塩等）；ベンジルジメチルアミン、２，４，６－トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、Ｎ，Ｎ－ジメチルシクロヘキシルアミン等の第３級アミン；２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール等のイミダゾール；リン酸エステル、トリフェニルホスフィン等のホスフィン類；テトラフェニルホスホニウムテトラ（ｐ－トリル）ボレート等のホスホニウム化合物；オクチル酸亜鉛やオクチル酸スズ等の有機金属塩；金属キレート等が挙げられる。

[0113] 本発明の硬化性樹脂組成物において硬化促進剤（Ｆ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。

[0114] また、硬化促進剤（Ｆ）は、公知乃至慣用の方法により製造することもできるし、例えば、商品名「Ｕ－ＣＡＴ　ＳＡ　５０６」、「Ｕ－ＣＡＴ　ＳＡ　１０２」、「Ｕ－ＣＡＴ　５００３」、「Ｕ－ＣＡＴ　１８Ｘ」、「１２ＸＤ」（開発品）（以上、サンアプロ（株）製）；商品名「ＴＰＰ－Ｋ」、「ＴＰＰ－ＭＫ」（以上、北興化学工業（株）製）；商品名「ＰＸ－４ＥＴ」（日本化学工業（株）製）等の市販品を使用することもできる。

[0115] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化促進剤（Ｆ）を含有する場合、硬化促進剤（Ｆ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０００１～５重量％が好ましく、より好ましくは０．００１～１重量％である。硬化促進剤（Ｆ）の含有量を０．０００１重量％以上とすることにより、より効率的に硬化反応を進行させることができる傾向がある。一方、硬化促進剤（Ｆ）の含有量を５重量％以下とすることにより、硬化性樹脂組成物の保存性がより向上したり、着色がより抑制され色相に優れた硬化物（リフレクター）が得られやすい傾向がある。

[0116] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化促進剤（Ｆ）を含有する場合、硬化促進剤（Ｆ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、０．０５～１５重量部が好ましく、より好ましくは０．１～１２重量部、さらに好ましくは０．２～１０重量部、特に好ましくは０．２５～８重量部である。硬化促進剤の含有量を０．０５重量部以上とすることにより、より効率的に硬化反応を進行させることができる傾向がある。一方、硬化促進剤の含有量を１５重量部以下とすることにより、硬化性樹脂組成物の保存性がより向上したり、着色がより抑制され色相に優れた硬化物（リフレクター）が得られやすい傾向がある。

[0117] ［硬化触媒（Ｇ）］

本発明の硬化性樹脂組成物における硬化触媒（Ｇ）は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）等のカチオン重合性化合物の硬化反応（重合反応）を開始及び／又は促進させることにより、硬化性樹脂組成物を硬化させる働きを有する化

合物である。硬化触媒（Ｇ）としては、特に限定されないが、例えば、光照射や加熱処理等を施すことによりカチオン種を発生して、重合を開始させるカチオン重合開始剤（光カチオン重合開始剤、熱カチオン重合開始剤等）や、ルイス酸・アミン錯体、ブレンステッド酸塩類、イミダゾール類等が挙げられる。

[0118] 硬化触媒（Ｇ）としての光カチオン重合開始剤としては、例えば、ヘキサフルオロアンチモネート塩、ペンタフルオロヒドロキシアンチモネート塩、ヘキサフルオロホスフェート塩、ヘキサフルオロアルセネート塩等が挙げられ、より具体的には、例えば、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロホスフェート（例えば、ｐ－フェニルチオフェニルジフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート等）、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート等のスルホニウム塩（特に、トリアリールスルホニウム塩）；ジアリールヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ジアリールヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ヨードニウム［４－（４－メチルフェニル－２－メチルプロピル）フェニル］ヘキサフルオロホスフェート等のヨードニウム塩；テトラフルオロホスホニウムヘキサフルオロホスフェート等のホスホニウム塩；Ｎ－ヘキシルピリジニウムテトラフルオロボレート等のピリジニウム塩等が挙げられる。また、光カチオン重合開始剤としては、例えば、商品名「ＵＶＡＣＵＲＥ１５９０」（ダイセル・サイテック（株）製）；商品名「ＣＤ－１０１０」、「ＣＤ－１０１１」、「ＣＤ－１０１２」（以上、米国サートマー製）；商品名「イルガキュア２６４」（ＢＡＳＦ社製）；商品名「ＣＩＴ－１６８２」（日本曹達（株）製）等の市販品を好ましく使用することもできる。

[0119] 硬化触媒（Ｇ）としての熱カチオン重合開始剤としては、例えば、アリールジアゾニウム塩、アリールヨードニウム塩、アリールスルホニウム塩、アレン－イオン錯体等が挙げられ、商品名「ＰＰ－３３」、「ＣＰ－６６」、「ＣＰ－７７」（以上（株）ＡＤＥＫＡ製）；商品名「ＦＣ－５０９」（ス

リーエム製）；商品名「ＵＶＥ１０１４」（Ｇ．Ｅ．製）；商品名「サンエイドＳＩ－６０Ｌ」、「サンエイドＳＩ－８０Ｌ」、「サンエイドＳＩ－１００Ｌ」、「サンエイドＳＩ－１１０Ｌ」、「サンエイドＳＩ－１５０Ｌ」（以上、三新化学工業（株）製）；商品名「ＣＧ－２４－６１」（ＢＡＳＦ社製）等の市販品を好ましく使用することができる。さらに、熱カチオン重合開始剤としては、アルミニウムやチタン等の金属とアセト酢酸若しくはジケトン類とのキレート化合物とトリフェニルシラノール等のシラノールとの化合物、又は、アルミニウムやチタン等の金属とアセト酢酸若しくはジケトン類とのキレート化合物とビスフェノールＳ等のフェノール類との化合物等も挙げられる。

[0120] 硬化触媒（Ｇ）としてのルイス酸・アミン錯体としては、公知乃至慣用のルイス酸・アミン錯体系硬化触媒を使用することができ、特に限定されないが、例えば、BF_3・ｎ－ヘキシルアミン、BF_3・モノエチルアミン、BF_3・ベンジルアミン、BF_3・ジエチルアミン、BF_3・ピペリジン、BF_3・トリエチルアミン、BF_3・アニリン、BF_4・ｎ－ヘキシルアミン、BF_4・モノエチルアミン、BF_4・ベンジルアミン、BF_4・ジエチルアミン、BF_4・ピペリジン、BF_4・トリエチルアミン、BF_4・アニリン、PF_5・エチルアミン、PF_5・イソプロピルアミン、PF_5・ブチルアミン、PF_5・ラウリルアミン、PF_5・ベンジルアミン、AsF_5・ラウリルアミン等が挙げられる。

[0121] 硬化触媒（Ｇ）としてのブレンステッド酸塩類としては、公知乃至慣用のブレンステッド酸塩類を使用することができ、特に限定されないが、例えば、脂肪族スルホニウム塩、芳香族スルホニウム塩、ヨードニウム塩、ホスホニウム塩等が挙げられる。

[0122] 硬化触媒（Ｇ）としてのイミダゾール類としては、公知乃至慣用のイミダゾール類を使用することができ、特に限定されないが、例えば、２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－ウンデシルイミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－メチルイミ

ダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾリウムトリメリテート、２－メチルイミダゾリウムイソシアヌレート、２－フェニルイミダゾリウムイソシアヌレート、２，４－ジアミノ－６－［２－メチルイミダゾリル－（１）］－エチル－ｓ－トリアジン、２，４－ジアミノ－６－［２－エチル－４－メチルイミダゾリル－（１）］－エチル－ｓ－トリアジン等が挙げられる。

[0123] 本発明の硬化性樹脂組成物において硬化触媒（Ｇ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。なお、上述のように、硬化触媒（Ｇ）としては市販品を使用することもできる。

[0124] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化触媒（Ｇ）を含有する場合、硬化触媒（Ｇ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０００１～５重量％が好ましく、より好ましくは０．００１～１重量％である。硬化触媒（Ｇ）を上記範囲内で使用することにより、耐熱性、耐光性に優れた硬化物を得ることができる。

[0125] 本発明の硬化性樹脂組成物が硬化触媒（Ｇ）を含有する場合、本発明の硬化性樹脂組成物における硬化触媒（Ｇ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、０．０００１～１５重量部が好ましく、より好ましくは０．０１～１２重量部、さらに好ましくは０．０５～１０重量部、特に好ましくは０．０５～８重量部である。硬化触媒（Ｇ）を上記範囲内で使用することにより、耐熱性、耐光性に優れた硬化物を得ることができる。

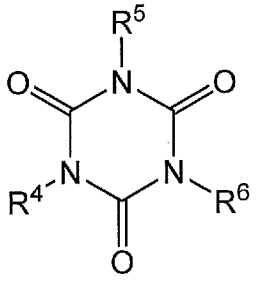
[0126] ［分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）］

本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分であるイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）は、イソシアヌル酸の誘導体であって、分子内に１個以上のオキシラン環を少なくとも有する化合物である。本発明の硬化性樹脂組成物がイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）を含むことにより、硬化物の光反射性、耐熱性、耐光性が向

上し、後述のシロキサン誘導体（Ｉ）と同時に硬化性樹脂組成物に含まれることで、硬化物の光反射性、耐熱性、耐光性がさらに向上する。イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）が分子内に有するオキシラン環の数は、１個以上であればよく、特に限定されないが、１～６個が好ましく、より好ましくは１～３個である。

[0127] イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）としては、例えば、下記式（III）で表される化合物が挙げられる。

[化10]

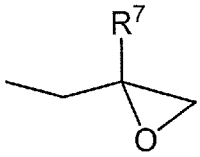


（III）

[0128] 式（III）中、R^4～R^6は、同一又は異なって、水素原子又は一価の有機基を示す。但し、R^4～R^6の少なくとも１つは、エポキシ基を含有する一価の有機基である。上記一価の有機基としては、例えば、一価の脂肪族炭化水素基（例えば、アルキル基、アルケニル基等）；一価の芳香族炭化水素基（例えば、アリール基等）；一価の複素環式基；脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、及び芳香族炭化水素基の２以上が結合して形成された一価の基等が挙げられる。なお、一価の有機基は置換基（例えば、ヒドロキシ基、カルボキシ基、ハロゲン原子等の置換基）を有していてもよい。エポキシ基を含有する一価の有機基としては、例えば、エポキシ基、グリシジル基、２－メチルエポキシプロピル基、シクロヘキセンオキシド基等の後述のエポキシ基を含有する一価の有機基等が挙げられる。

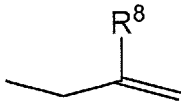
[0129] 特に、式（III）におけるR^4～R^6は、同一又は異なって、下記式（IIIａ）で表される基又は下記式（IIIｂ）で表される基であって、R^4～R^6の少なくとも１つが式（IIIａ）で表される基であることが好ましい。

[化11]



(IIIa)

[化12]

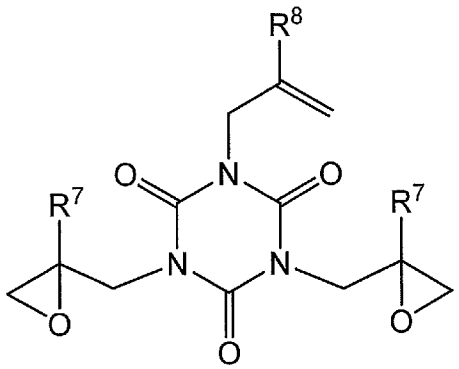


(IIIb)

[0130] 上記式（IIIａ）及び式（IIIｂ）中のR[7]及びR[8]は、同一又は異なって、水素原子又は炭素数１～８のアルキル基を示す。炭素数１～８のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基等の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。中でも、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等の炭素数１～３の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基が好ましい。式（IIIａ）及び式（IIIｂ）中のR[7]及びR[8]は、水素原子であることが特に好ましい。

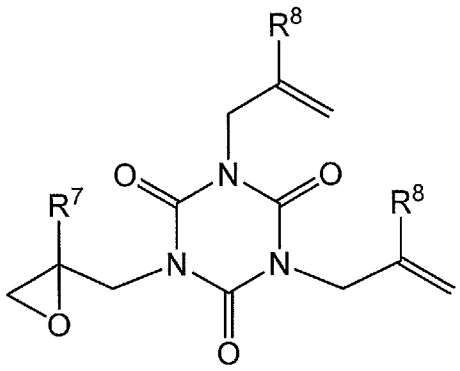
[0131] より具体的には、上記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）としては、下記式（III－１）で表される化合物、下記式（III－２）で表される化合物、下記式（III－３）で表される化合物等が挙げられる。

[化13]



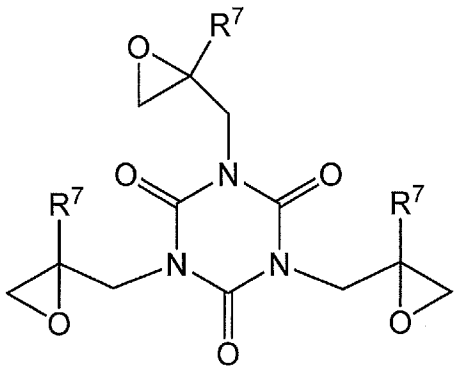
(III－1)

[化14]



(III－2)

[化15]



(III－3)

[0132] 上記式（III－１）～（III－３）中、R^7及びR^8は、同一又は異なって、式（IIIａ）及び式（IIIｂ）におけるものと同じものを示す。

[0133] 上記式（III－１）で表される化合物の代表的な例としては、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート、１－アリル－３，５－ビス（２－メチルエポキシプロピル）イソシアヌレート、１－（２－メチルプロペニル）－３，５－ジグリシジルイソシアヌレート、１－（２－メチルプロペニル）－３，５－ビス（２－メチルエポキシプロピル）イソシアヌレート等が挙げられる。

[0134] 上記式（III－２）で表される化合物の代表的な例としては、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート、１，３－ジアリル－５－（２－メチルエポキシプロピル）イソシアヌレート、１，３－ビス（２－メチルプロペニル）－５－グリシジルイソシアヌレート、１，３－ビス（２－メチルプロペニル）－５－（２－メチルエポキシプロピル）イソシアヌレート等が挙げられる。

[0135] 上記式（III－３）で表される化合物の代表的な例としては、トリグリシジ

ルイソシアヌレート、トリス（２－メチルエポキシプロピル）イソシアヌレート等が挙げられる。

[0136] なお、上記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）は、アルコールや酸無水物等のエポキシ基と反応する化合物を加えてあらかじめ変性して用いることもできる。

[0137] 中でも、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）としては、硬化物の光反射性、耐熱性、及び溶解性の観点から、上記式（III－１）～（III－３）で表される化合物が好ましく、より好ましくは上記式（III－１）で表される化合物である。なお、本発明の硬化性樹脂組成物においてイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。なお、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）としては、例えば、商品名「ＴＥＰＩＣ」（日産化学工業（株）製）；商品名「ＭＡ－ＤＧＩＣ」、「ＤＡ－ＭＧＩＣ」（以上、四国化成工業（株）製）等の市販品を使用することもできる。

[0138] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）の含有量（配合量）は、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．０５～１５重量％が好ましく、より好ましくは０．１～１０重量％、さらに好ましくは０．３～５重量％である。イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）の含有量を上記範囲内とすることにより、耐熱性及び耐光性に優れた硬化物を得ることができる。

[0139] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、１～６０重量部が好ましく、より好ましくは１～５０重量部、さらに好ましくは１～３０重量部である。イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）の含有量を上記範囲内とすることにより、耐熱性及び耐光性に優れた硬化物を得ることができる。

[0140] ［分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）］

本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分であるシロキサン誘導体（Ｉ）は、

分子内に２以上のエポキシ基を有し、シロキサン結合（－Ｓｉ－Ｏ－Ｓｉ－）により構成された骨格を有する化合物（シロキサン化合物）である。シロキサン誘導体（Ｉ）におけるシロキサン骨格（Ｓｉ－Ｏ－Ｓｉ骨格）としては、特に限定されないが、例えば、環状シロキサン骨格；直鎖状のシリコーンや、かご型やラダー型のポリシルセスキオキサン等のポリシロキサン骨格等が挙げられる。中でも、上記シロキサン骨格としては、硬化物の光反射性、耐熱性、耐光性を向上させて光半導体装置の光度低下を抑制する観点で、環状シロキサン骨格、直鎖状シリコーン骨格が好ましい。即ち、シロキサン誘導体（Ｉ）としては、分子内に２以上のエポキシ基を有する環状シロキサン、分子内に２以上のエポキシ基を有する直鎖状シリコーンが好ましい。

[0141] シロキサン誘導体（Ｉ）が分子内に２以上のエポキシ基を有する環状シロキサンである場合、当該シロキサン環を形成するＳｉ－Ｏ単位の数（シロキサン環を形成するケイ素原子の数に等しい）は、特に限定されないが、硬化物の耐熱性、耐光性を向上させる観点で、２～１２が好ましく、より好ましくは４～８である。

[0142] シロキサン誘導体（Ｉ）の重量平均分子量は、特に限定されないが、硬化物の耐熱性、耐光性を向上させる観点で、１００～３０００が好ましく、より好ましくは１８０～２０００である。なお、シロキサン誘導体（Ｉ）の上記重量平均分子量は、ＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）法により測定される標準ポリスチレン換算の分子量から算出される。

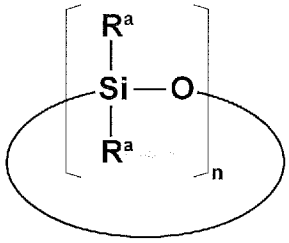
[0143] シロキサン誘導体（Ｉ）が分子内に有するエポキシ基の数は、２以上であればよく、特に限定されないが、硬化物の耐熱性、耐光性を向上させる観点で、２～４つ（２つ、３つ、又は４つ）が好ましい。

[0144] シロキサン誘導体（Ｉ）のエポキシ当量は、特に限定されないが、硬化物の耐熱性、耐光性を向上させる観点で、１８０～２０００が好ましく、より好ましくは１８０～１５００、さらに好ましくは１８０～１０００である。なお、上記エポキシ当量は、ＪＩＳ　Ｋ７２３６に準じて測定される値である。

[0145] シロキサン誘導体（Ｉ）が有するエポキシ基は、特に限定されないが、硬化物の耐熱性、耐光性を向上させる観点で、脂環を構成する隣接する２つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基（脂環式エポキシ基）であることが好ましく、中でも、シクロヘキセンオキシド基であることが特に好ましい。

[0146] シロキサン誘導体（Ｉ）としては、例えば、下記式（ＩＶ）で表されるシロキサン化合物等が挙げられる。

[化16]



（ＩＶ）

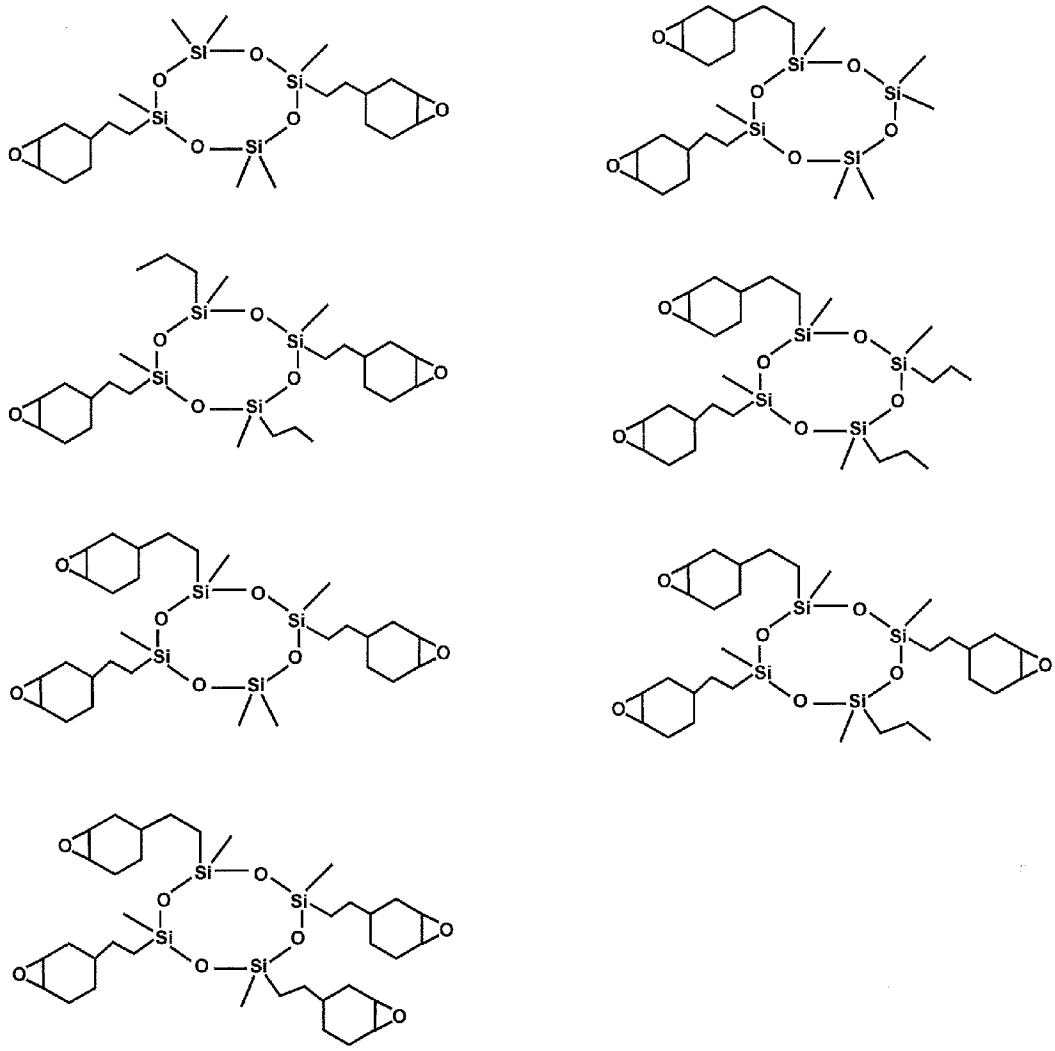
[0147] 式（ＩＶ）中、R^aは、同一又は異なって、エポキシ基を含有する基、又はアルキル基を示す。但し、式（ＩＶ）におけるR^aの少なくとも２つ（例えば２～４つ）はエポキシ基を含有する基である。上述のエポキシ基を含有する基は、エポキシ基（オキシラン環）を少なくとも１つ含む基であり、例えば、アルケニル基等の炭素－炭素不飽和二重結合を有する直鎖又は分岐鎖状の脂肪族炭化水素基が有する少なくとも１つの二重結合がエポキシ化された基や、炭素－炭素不飽和二重結合を有する環状の脂肪族炭化水素基（例えば、シクロアルケニル基；シクロヘキセニルエチル基等のシクロアルケニルアルキル基等）が有する少なくとも１つの二重結合がエポキシ化された基等が挙げられる。より具体的には、例えば、１，２－エポキシエチル基（エポキシ基）、１，２－エポキシプロピル基、２，３－エポキシプロピル基（グリシジル基）、２，３－エポキシ－２－メチルプロピル基（メチルグリシジル基）、３，４－エポキシブチル基、３－グリシジルオキシプロピル基、３，４－エポキシシクロヘキシルメチル基、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチル基等が挙げられる。中でも、炭素－炭素不飽和二重結合を有する

環状の脂肪族炭化水素基が有する少なくとも１つの二重結合がエポキシ化された基が好ましい。上記アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基、イソオクチル基、デシル基、ドデシル基等の炭素数１～２０の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基等が挙げられる。中でも、炭素数１～１０の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基が好ましい。

[0148] 式（ＩＶ）中、ｎは、２～１２の整数を示す。特に、硬化物の耐熱衝撃性、光半導体装置の耐リフロー性及び耐熱衝撃性の観点で、ｎとしては、４～８が好ましく、より好ましくは４又は５である。

[0149] シロキサン誘導体（Ｉ）としては、より具体的には、例えば、２，４－ジ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－２，４，６，６，８，８－ヘキサメチル－シクロテトラシロキサン、４，８－ジ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－２，２，４，６，６，８－ヘキサメチル－シクロテトラシロキサン、２，４－ジ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－６，８－ジプロピル－２，４，６，８－テトラメチル－シクロテトラシロキサン、４，８－ジ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－２，６－ジプロピル－２，４，６，８－テトラメチル－シクロテトラシロキサン、２，４，８－トリ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－２，４，６，６，８－ペンタメチル－シクロテトラシロキサン、２，４，８－トリ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－６－プロピル－２，４，６，８－テトラメチル－シクロテトラシロキサン、２，４，６，８－テトラ［２－（３－｛オキサビシクロ［４．１．０］ヘプチル｝）エチル］－２，４，６，８－テトラメチル－シクロテトラシロキサン、分子内に２以上のエポキシ基を有するシルセスキオキサン等が挙げられる。さらに具体的には、例えば、下記式で表される分子内に２以上のエポキシ基を有する環状シロキサン等が挙げられる。

[化17]



[0150] また、シロキサン誘導体（Ｉ）としては、例えば、特開２００８－２４８１６９号公報に記載の脂環式エポキシ基含有シリコーン樹脂や、特開２００８－１９４２２号公報に記載の１分子中に少なくとも２つのエポキシ官能性基を有するオルガノポリシルセスキオキサン樹脂等を用いることもできる。

[0151] なお、本発明の硬化性樹脂組成物においてシロキサン誘導体（Ｉ）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。

[0152] シロキサン誘導体（Ｉ）は、例えば、分子内に２以上のエポキシ基を有する環状シロキサンである商品名「Ｘ－４０－２６７８」、「Ｘ－４０－２６７０」、「Ｘ－４０－２７２０」（以上、信越化学工業（株）製）等の市販

品を入手可能である。また、シロキサン誘導体（Ｉ）は、公知乃至慣用の方法により製造することができる。

[0153] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるシロキサン誘導体（Ｉ）の含有量（配合量）は、硬化性樹脂組成物（１００重量％）に対して、０．１～３０重量％が好ましく、より好ましくは０．５～２０重量％、さらに好ましくは１．０～１０重量％である。シロキサン誘導体（Ｉ）の含有量を上記範囲に制御することにより、硬化性樹脂組成物のチクソ性が高くなり、硬化物の耐熱性、耐光性、及び光反射性がより向上する傾向がある。

[0154] 本発明の硬化性樹脂組成物におけるシロキサン誘導体（Ｉ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、５～９９重量部が好ましく、より好ましくは１０～９５重量部、さらに好ましくは２０～８０重量部である。シロキサン誘導体（Ｉ）の含有量を５重量部以上とすることにより、硬化性樹脂組成物のチクソ性が高くなり、硬化物の耐熱性、耐光性、及び光反射性がより向上する傾向がある。一方、シロキサン誘導体（Ｉ）の含有量を１５０重量部以下とすることにより、硬化物の耐熱衝撃性、及び接着性がより向上する傾向がある。

[0155] ［離型剤］

本発明の硬化性樹脂組成物は、さらに、離型剤を含んでいてもよい。離型剤を含むことにより、トランスファー成型等の金型を使用した成型法による連続成型が容易となり、高い生産性で硬化物（リフレクター）を製造することが可能となる。離型剤としては、公知乃至慣用の離型剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、フッ素系離型剤（フッ素原子含有化合物；例えば、フッ素オイル、ポリテトラフルオロエチレン等）、シリコーン系離型剤（シリコーン化合物；例えば、シリコーンオイル、シリコーンワックス、シリコーン樹脂、ポリオキシアルキレン単位を有するポリオルガノシロキサン等）、ワックス系離型剤（ワックス類；例えば、カルナウバワックス等の植物ロウ、羊毛ワックス等の動物ロウ、パラフィンワックス等のパラ

フィン類、ポリエチレンワックス、酸化ポリエチレンワックス等）、高級脂肪酸又はその塩（例えば、金属塩等）、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、鉱油等が挙げられる。

[0156] なお、本発明の硬化性樹脂組成物において離型剤は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。また、離型剤は、公知乃至慣用の方法によって製造することもできるし、市販品を使用することもできる。

[0157] 本発明の硬化性樹脂組成物が離型剤を含有する場合、離型剤の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、１～１２重量部が好ましく、より好ましくは２～１０重量部である。離型剤の含有量を１重量部以上とすることにより、硬化物（リフレクター）の離型性がより向上し、リフレクターの生産性がより向上する傾向がある。一方、離型剤の含有量を１２重量部以下とすることにより、光半導体素子搭載用基板におけるリフレクターのリードフレームに対する良好な密着性を確保できる傾向がある。

[0158] ［酸化防止剤］

本発明の硬化性樹脂組成物は、酸化防止剤を含んでいてもよい。酸化防止剤を含むことにより、いっそう耐熱性に優れた硬化物（リフレクター）を製造することが可能となる。酸化防止剤としては、公知乃至慣用の酸化防止剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、フェノール系酸化防止剤（フェノール系化合物）、ヒンダードアミン系酸化防止剤（ヒンダードアミン系化合物）、リン系酸化防止剤（リン系化合物）、イオウ系酸化防止剤（イオウ系化合物）等が挙げられる。

[0159] フェノール系酸化防止剤としては、例えば、２，６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－クレゾール、ブチル化ヒドロキシアニソール、２，６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－エチルフェノール、ステアリル－β－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート等のモノフェノール類；２，２’－メチレンビス（４－メチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビ

ス（４－エチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、４，４’－チオビス（３－メチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、４，４’－ブチリデンビス（３－メチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、３，９－ビス［１，１－ジメチル－２－｛β－（３－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオニルオキシ｝エチル］２，４，８，１０－テトラオキサスピロ［５．５］ウンデカン等のビスフェノール類；１，１，３－トリス（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－ｔ－ブチルフェニル）ブタン、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン、テトラキス－［メチレン－３－（３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４’－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン、ビス［３，３’－ビス－（４’－ヒドロキシ－３’－ｔ－ブチルフェニル）ブチリックアシッド］グリコールエステル、１，３，５－トリス（３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４’－ヒドロキシベンジル）－ｓ－トリアジン－２，４，６－（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）トリオン、トコフェノール等の高分子型フェノール類等が挙げられる。

[0160] ヒンダードアミン系酸化防止剤としては、例えば、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）［［３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシフェニル］メチル］ブチルマロネート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）セバケート、メチル－１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルセバケート、４－ベンゾイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン等が挙げられる。

[0161] リン系酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、ジイソデシルペンタエリスリトールホスファイト、トリス（２、４－ジ－ｔ－ブチルフェニル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（オクタデシル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（２，４－ジ－ｔ－ブチルフェニル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（２，４－ジ－ｔ

－ブチル－４－メチルフェニル）ホスファイト、ビス［２－ｔ－ブチル－６－メチル－４－｛２－（オクタデシルオキシカルボニル）エチル｝フェニル］ヒドロゲンホスファイト等のホスファイト類；９，１０－ジヒドロ－９－オキサ－１０－ホスファフェナントレン－１０－オキサイド、１０－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－９，１０－ジヒドロ－９－オキサ－１０－ホスファフェナントレン－１０－オキサイド等のオキサホスファフェナントレンオキサイド類等が挙げられる。

[0162] イオウ系酸化防止剤としては、例えば、ドデカンチオール、ジラウリル－３，３’－チオジプロピオネート、ジミリスチル－３，３’－チオジプロピオネート、ジステアリル－３，３’－チオジプロピオネート等が挙げられる。

[0163] 本発明の硬化性樹脂組成物において酸化防止剤は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせて使用することもできる。また、酸化防止剤は、公知乃至慣用の方法により製造することもできるし、例えば、商品名「Ｉｒｇａｎｏｘ１０１０」（ＢＡＳＦ製、フェノール系酸化防止剤）、商品名「ＡＯ－６０」、「ＡＯ－８０」（（株）ＡＤＥＫＡ製、フェノール系酸化防止剤）、商品名「Ｉｒｇａｆｏｓ１６８」（ＢＡＳＦ製、リン系酸化防止剤）、商品名「アデカスタブＨＰ－１０」、「アデカスタブＰＥＰ－３６」（（株）ＡＤＥＫＡ製、リン系酸化防止剤）、商品名「ＨＣＡ」（三光（株）製、リン系酸化防止剤）等の市販品を使用することもできる。

[0164] 本発明の硬化性樹脂組成物が酸化防止剤を含有する場合、酸化防止剤の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量１００重量部に対して、０．１～５重量部が好ましく、より好ましくは０．５～３重量部である。酸化防止剤の含有量を０．１重量部以上とすることにより、硬化物（リフレクター）の酸化が効率的に防止され、耐熱性、耐光性がより向上する傾向がある。一方、酸化防止剤の含有量を５重量部以下とすることにより、着色が抑制され、色相がより良好なリフレクターが得られやすい傾向がある。

[0165] ［添加剤］

本発明の硬化性樹脂組成物は、上述の成分以外にも、本発明の効果を損なわない範囲で各種添加剤を含有していてもよい。上記添加剤として、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン等のヒドロキシ基を有する化合物（特に、脂肪族多価アルコール）を含有させると、反応を緩やかに進行させることができる。その他にも、粘度や光反射性を損なわない範囲内で、消泡剤、レベリング剤、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランや３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤、界面活性剤、難燃剤、着色剤、イオン吸着体、紫外線吸収剤、光安定剤、白色顔料（Ｃ）以外の顔料等の慣用の添加剤を使用することができる。これら添加剤の含有量は特に限定されず、適宜選択可能である。

[0166] 本発明の硬化性樹脂組成物が、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）を含有する場合、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）からなる混合物の２５℃における粘度は、特に限定されないが、５０００ｍＰａ・ｓ以下であることが好ましい。なお、本発明の硬化性樹脂組成物は、エチレングリコール等の上述の脂肪族多価アルコールを含んでいてもよく、この場合、上述の混合物は、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、シロキサン誘導体（Ｉ）、及び脂肪族多価アルコールからなる混合物である。

[0167] 一方、本発明の硬化性樹脂組成物が、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、硬化触媒（Ｇ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）を含有する場合、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、硬化触媒（Ｇ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）からなる混合物の２５℃における粘度は、特に限定されないが、５０００ｍＰａ・ｓ以下であることが好

ましい。なお、本明細書において、上記の二種の混合物の２５℃における粘度を、総称して、「樹脂粘度」と称する場合がある。

[0168] 上記樹脂粘度は、常圧において２５℃で測定した粘度である。上記樹脂粘度は、５０００ｍＰａ・ｓ以下であることが好ましく、より好ましくは４０００ｍＰａ・ｓ以下、さらに好ましくは３５００ｍＰａ・ｓ以下、特に好ましくは３０００ｍＰａ・ｓ以下である。上記樹脂粘度が５０００ｍＰａ・ｓ以下であると、樹脂粘度が５０００ｍＰａ・ｓを超える場合よりも、硬化物の耐熱性、耐光性、及び耐クラック性（特に、優れた耐熱性）がさらに優れる傾向がある。また、上記樹脂粘度が比較的低いことにより、白色顔料（Ｃ）や無機充填剤（Ｄ）等の他の成分の含有量を増やすことが可能となり、硬化物の光反射性、耐熱性及び耐光性がよりいっそう向上する傾向がある。上記樹脂粘度の下限は、例えば１００ｍＰａ・ｓ以上である。なお、上記樹脂粘度は、例えば、デジタル粘度計（型番「ＤＶＵ－ＥＩＩ型」、（株）トキメック製）を用いて、ローター：標準１°３４′×Ｒ２４、温度：２５℃、回転数：０．５～１０ｒｐｍの条件で測定することができる。

[0169] 上記樹脂粘度は、例えば、用いる成分（例えば、脂環式エポキシ化合物（Ａ）、硬化剤（Ｅ）、硬化促進剤（Ｆ）、硬化触媒（Ｇ）、イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及びシロキサン誘導体（Ｉ）等）として、２５℃で液体の成分を用いることにより得やすくなる。なお、上記成分として２５℃で固体の成分を用いてもよいが、その含有量は、上記樹脂粘度が５０００ｍＰａ・ｓ以下となるように調整される。また、ゴム粒子（Ｂ）の含有量を、本発明の効果を損なわない範囲内で調整することによっても得やすくなる。

[0170] なお、本発明の硬化性樹脂組成物は、加熱して該硬化性樹脂組成物における脂環式エポキシ化合物（Ａ）及び硬化剤（Ｅ）の一部を反応させることによって得られる、Ｂステージ化させた硬化性樹脂組成物（Ｂステージ状態の硬化性樹脂組成物）であってもよい。

[0171] 上述のように、本発明の硬化性樹脂組成物は硬化後の光反射性、耐熱性及び耐光性に優れるため、特に、トランスファー成型用樹脂組成物やコンプレ

ッション成型用樹脂組成物として好ましく使用できる。中でも、本発明の硬化性樹脂組成物は、コンプレッション成型によって形成された硬化物（リフレクター）の光反射性、耐熱性及び耐光性に特に優れるため、コンプレッション成型用の樹脂組成物であることが特に好ましい。

[0172] 本発明の硬化性樹脂組成物は、特に限定されないが、上記の各成分を、必要に応じて加熱した状態で撹拌・混合することにより調製することができる。なお、本発明の硬化性樹脂組成物は、各成分があらかじめ混合されたものをそのまま使用する１液系の組成物として使用することもできるし、例えば、別々に保管しておいた２以上の成分を使用前に所定の割合で混合して使用する多液系（例えば、２液系）の組成物として使用することもできる。上記撹拌・混合の方法は、特に限定されず、例えば、ディゾルバー、ホモジナイザー等の各種ミキサー、ニーダー、ロール、ビーズミル、自公転式撹拌装置等の公知乃至慣用の撹拌・混合手段を使用できる。また、撹拌・混合後、真空下にて脱泡してもよい。

[0173] 特に限定されないが、ゴム粒子（Ｂ）は、あらかじめ脂環式エポキシ化合物（Ａ）中に分散させた組成物（当該組成物を「ゴム粒子分散エポキシ化合物」と称する場合がある）の状態で配合することが好ましい。即ち、本発明の硬化性樹脂組成物は、上記ゴム粒子分散エポキシ化合物と、白色顔料（Ｃ）と、無機充填剤（Ｄ）と、硬化剤（Ｅ）及び硬化促進剤（Ｆ）、又は、硬化触媒（Ｇ）と、必要に応じてその他の成分とを混合することにより調製することが好ましい。このような調製方法により、特に、硬化性樹脂組成物におけるゴム粒子（Ｂ）の分散性を向上させることができる。ただし、ゴム粒子（Ｂ）の配合方法は、上記方法に限定されず、それ単独で配合する方法であってもよい。

[0174] （ゴム粒子分散エポキシ化合物）

上記ゴム粒子分散エポキシ化合物は、ゴム粒子（Ｂ）を脂環式エポキシ化合物（Ａ）に分散させることによって得られる。なお、上記ゴム粒子分散エポキシ化合物における脂環式エポキシ化合物（Ａ）は、硬化性樹脂組成物を

構成する脂環式エポキシ化合物（Ａ）の全量であってもよいし、一部の量であってもよい。同様に、上記ゴム粒子分散エポキシ化合物におけるゴム粒子（Ｂ）は、硬化性樹脂組成物を構成するゴム粒子（Ｂ）の全量であってもよいし、一部の量であってもよい。

[0175] 上記ゴム粒子分散エポキシ化合物の粘度は、例えば、反応性希釈剤を併用することにより調整することができる（即ち、ゴム粒子分散エポキシ化合物は、さらに反応性希釈剤を含んでいてもよい）。上記反応性希釈剤としては、例えば、常温（２５℃）における粘度が２００ｍＰａ・ｓ以下の脂肪族ポリグリシジルエーテルを好ましく使用できる。粘度（２５℃）が２００ｍＰａ・ｓ以下の脂肪族ポリグリシジルエーテルとしては、例えば、シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル、シクロヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、１，６－ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル等が挙げられる。

[0176] 上記反応性希釈剤の使用量は、適宜調整することができ、特に限定されないが、上記ゴム粒子分散エポキシ化合物全量１００重量部に対して、３０重量部以下が好ましく、より好ましくは２５重量部以下（例えば、５～２５重量部）である。使用量が３０重量部以下であると、強靭性（耐クラック性）の向上等の所望の性能を得やすくなる傾向がある。

[0177] 上記ゴム粒子分散エポキシ化合物の製造方法は、特に限定されず、周知慣用の方法を使用することができる。例えば、ゴム粒子（Ｂ）を脱水乾燥して粉体とした後に、脂環式エポキシ化合物（Ａ）に混合し、分散させる方法や、ゴム粒子（Ｂ）のエマルジョンと脂環式エポキシ化合物（Ａ）とを直接混合し、続いて脱水する方法等が挙げられる。

[0178] 本発明の硬化性樹脂組成物の２５℃における粘度は、特に限定されないが、１００～１０００００ｍＰａ・ｓが好ましく、より好ましくは２００～８００００ｍＰａ・ｓ、さらに好ましくは３００～８００００ｍＰａ・

ｓである。２５℃における粘度を１００ｍＰａ・ｓ以上とすることにより、注型時の作業性が向上したり、硬化物の耐熱性及び耐光性がより向上する傾向がある。一方、２５℃における粘度を１０００００ｍＰａ・ｓ以下とすることにより、注型時の作業性が向上したり、硬化物に注型不良に由来する不具合が生じにくくなる傾向がある。

[0179] ＜硬化物＞

本発明の硬化性樹脂組成物を加熱によって硬化させることにより、光反射性に優れ、耐熱性、耐光性、及び耐クラック性に優れた硬化物を得ることができる。なお、本発明の硬化性樹脂組成物を硬化させた硬化物、即ち本発明の硬化性樹脂組成物の硬化物を「本発明の硬化物」と称する場合がある。硬化の際の加熱温度（硬化温度）は、特に限定されないが、５０～２００℃が好ましく、より好ましくは８０～１８０℃である。また、硬化の際に加熱する時間（硬化時間）は、特に限定されないが、６０～１８００秒が好ましく、より好ましくは９０～９００秒である。硬化温度と硬化時間が上記範囲の下限値より低い場合は硬化が不十分となり、逆に上記範囲の上限値より高い場合は熱分解による黄変が発生するので好ましくない。硬化条件は種々の条件に依存するが、例えば、硬化温度を高くした場合は硬化時間を短く、硬化温度を低くした場合は硬化時間を長くする等により、適宜調整することができる。また、硬化処理は一段階（例えば、コンプレッション成型のみ）で行ってもよいし、例えば、多段階（例えば、コンプレッション成型後にポストキュアー（二次硬化）としてオーブン等でさらに加熱する等）で行ってもよい。また、ポストキュアーを行う場合、この際の加熱温度は、５０～２００℃が好ましく、より好ましくは６０～１８０℃、より好ましくは硬化温度と同程度の温度である。また、ポストキュアーを行う時間は、０．５～１０時間が好ましく、より好ましくは１～８時間である。

[0180] 本発明の硬化物は、高い光反射性を有し、耐熱性及び耐光性に優れる。このため、上記硬化物は劣化しにくく、経時で反射率が低下しにくい。従って、本発明の硬化性樹脂組成物は、ＬＥＤパッケージ用途（ＬＥＤパッケージ

の構成材、例えば、光半導体装置におけるリフレクター材、ハウジング材等）、電子部品の接着用途、液晶ディスプレイ用途（例えば、反射板など）、白色基板用インク、シーラー等として好ましく使用することができる。中でも、ＬＥＤパッケージ用の硬化性樹脂組成物（特に、光半導体装置におけるリフレクター用の硬化性樹脂組成物（即ち、リフレクター形成用の硬化性樹脂組成物））として特に好ましく使用することができる。

[0181] 本発明の硬化物の反射率（初期反射率）は、特に限定されないが、例えば、波長４５０ｎｍの光の反射率が、９３％以上であることが好ましく、より好ましくは９４％以上、さらに好ましくは９５％以上である。特に、４５０～８００ｎｍの光の反射率が９３％以上であることが好ましく、より好ましくは９４％以上、さらに好ましくは９５％以上である。

[0182] 本発明の硬化物の、１２０℃で２５０時間加熱した後の波長４５０ｎｍの光の反射率（「加熱エージング後の反射率」と称する場合がある）の、初期反射率に対する保持率（［加熱エージング後の反射率］／［初期反射率］×１００）は、特に限定されないが、８０％以上であることが好ましく、より好ましくは８５％以上、さらに好ましくは９０％以上である。特に、４５０～８００ｎｍの光の場合の保持率が８０％以上であることが好ましく、より好ましくは８５％以上、さらに好ましくは９０％以上である。本発明の硬化性樹脂組成物によれば、コンプレッション成型により形成された硬化物は上記保持率を９０％以上とすることが可能である。

[0183] 本発明の硬化物の、強度１０ｍＷ／ｃｍ^{2}の紫外線を２５０時間照射した後の波長４５０ｎｍの光に対する反射率（「紫外線エージング後の反射率」と称する場合がある）の、初期反射率に対する保持率（［紫外線エージング後の反射率］／［初期反射率］×１００）は、特に限定されないが、８０％以上であることが好ましく、より好ましくは８５％以上、さらに好ましくは９０％以上である。特に、４５０～８００ｎｍの光の場合の保持率が８０％以上であることが好ましく、より好ましくは８５％以上、さらに好ましくは９０％以上である。

[0184] なお、上記反射率は、例えば、本発明の硬化物（厚み：３ｍｍ）を試験片とし、分光光度計（商品名「分光光度計　ＵＶ－２４５０」、（株）島津製作所製）を用いて測定することができる。

[0185] 本発明の硬化性樹脂組成物が光半導体装置におけるリフレクター用の硬化性樹脂組成物である場合、本発明の硬化性樹脂組成物は、光半導体装置における光半導体素子の基板（光半導体素子搭載用基板）が有するリフレクター（光反射部材）を形成する用途に用いられる成型材料（金型等で成型するのに使用する材料）である。従って、本発明の硬化性樹脂組成物を成型する（かつ硬化させる）ことによって、高い光反射性を有し、耐熱性及び耐光性に優れ、さらに耐クラック性に優れたリフレクターを有する高品質な（例えば、高耐久性の）光半導体素子搭載用基板を製造することができる。なお、リフレクターとは、光半導体装置において光半導体素子から発せられた光を反射させて、光の指向性及び輝度を高め、光の取り出し効率を向上させるための部材である。本発明の硬化物により形成されたリフレクターを少なくとも有する、光半導体素子搭載用に用いられる基板を、「本発明の光半導体素子搭載用基板」と称する場合がある。

[0186] ＜光半導体素子搭載用基板＞

本発明の光半導体素子搭載用基板は、本発明の硬化性樹脂組成物の硬化物（本発明の硬化性樹脂組成物を硬化させることにより得られる硬化物）により形成されたリフレクター（白色リフレクター）を少なくとも有する基板である。図１は、本発明の光半導体素子搭載用基板の一例を示す概略図であり、（ａ）は斜視図、（ｂ）は断面図を示す。図１における１００は白色リフレクター、１０１は金属配線（リードフレーム）、１０２は光半導体素子の搭載領域、１０３はパッケージ基板を示す。なお、パッケージ基板１０３には、金属配線１０１、さらに白色リフレクター１００が取り付けられており、その中央（光半導体素子の搭載領域１０２）に光半導体素子１０７が置かれてダイボンディングされ、光半導体素子１０７とパッケージ基板１０３上の金属配線１０１の間はワイヤボンディングで接続される。パッケージ基板

１０３の材質としては、樹脂、セラミックなどが使用されるが、白色リフレクターと同じものであってもよい。本発明の光半導体素子搭載用基板における上側の白色リフレクター１００は、光半導体素子の搭載領域１０２の周囲を環状に取り囲み、上方に向かってその環の径が拡大するように傾斜した凹状の形状を有している。本発明の光半導体素子搭載用基板は、上記凹状の形状の内側の表面が少なくとも本発明の硬化性樹脂組成物の硬化物により形成されていればよい。また、図１に示すように、金属配線１０１に囲まれた部分（１０２の下部）は、パッケージ基板１０３の場合もあるし、白色リフレクター１００の場合もある（即ち、図１における「１００／１０３」は、白色リフレクター１００であってもよいし、パッケージ基板１０３であってもよいことを意味する）。但し、本発明の光半導体素子搭載用基板は、図１に示す態様には限定されない。

[0187] 本発明の光半導体素子搭載用基板における白色リフレクターを形成する方法としては、公知乃至慣用の成型方法（例えば、コンプレッション成型等）を使用することができ、特に限定されないが、例えば、本発明の硬化性樹脂組成物を、トランスファー成型、コンプレッション成型、インジェクション成型、ＬＩＭ成型（インジェクション成型）、ディスペンスによるダム成型等の各種成型方法に付す方法等が挙げられる。リフレクターを形成する際の硬化の条件としては、例えば、上述の硬化物を形成する際の条件等から適宜選択することができる。本発明においては、中でも、急激な硬化反応による発泡を防ぎ、硬化による応力ひずみを緩和して靭性（耐クラック性）を向上させることができる点で、多段階に分けて加熱処理を施し、段階的に硬化させることが好ましい。

[0188] 本発明の光半導体素子搭載用基板を光半導体装置における基板として使用し、該基板に対して光半導体素子を搭載することによって、本発明の光半導体装置が得られる。

[0189] ＜光半導体装置＞

本発明の光半導体装置は、光源としての光半導体素子と、本発明の硬化性

樹脂組成物の硬化物からなるリフレクター（反射材）とを少なくとも備える光半導体装置である。より具体的には、本発明の光半導体装置は、本発明の光半導体素子搭載用基板と、該基板に搭載された光半導体素子とを少なくとも有する光半導体装置である。本発明の光半導体装置は、リフレクターとして本発明の硬化性樹脂組成物の硬化物により形成されたリフレクターを有するため、経時で光の輝度が低下しにくく、信頼性が高い。図２は、本発明の光半導体装置の一例を示す概略図（断面図）である。図２における１００は白色リフレクター、１０１は金属配線（リードフレーム）、１０３はパッケージ基板、１０４はボンディングワイヤ、１０５は封止材、１０６はダイボンディング、１０７は光半導体素子（ＬＥＤ素子）を示す。図２に示す光半導体装置においては、光半導体素子１０７から発せられた光が白色リフレクター１００の表面（反射面）で反射するため、高い効率で光半導体素子１０７からの光が取り出される。なお、図２に示すように、本発明の光半導体装置における光半導体素子は、通常、透明な封止材（図２における１０５）によって封止されている。

[0190] 図３、４は、本発明の光半導体装置の他の一例を示す図である。図３、４における１０８は、ヒートシンク（ケースヒートシンク）を示し、このようなヒートシンク１０８を有することにより、光半導体装置における放熱効率が向上する。図３は、ヒートシンクの放熱経路が光半導体素子の直下に位置する例であり、図４は、ヒートシンクの放熱経路が光半導体装置の横方向に位置する例である［（ａ）は上面図、（ｂ）は（ａ）におけるＡ－Ａ’断面図を示す］。図４における光半導体装置の側面に突出したヒートシンク１０８は、放熱フィンと称される場合がある。また、図４における１０９は、カソードマークを示す。但し、本発明の光半導体装置は、図２～４に示される態様に限定されない。

実施例

[0191] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。なお、表１～３における硬化性

樹脂組成物の各成分の配合量の単位は重量部である。また、表１～３における「－」は、当該成分の配合を行わなかったことを意味する。

[0192] 製造例１

（ゴム粒子の製造）

還流冷却器付きの１Ｌ重合容器に、イオン交換水５００ｇ、及びジオクチルスルホコハク酸ナトリウム０．６８ｇを仕込み、窒素気流下に撹拌しながら、８０℃に昇温した。ここに、ゴム粒子のコア部分を形成するために必要とする量の約５重量％分に該当するアクリル酸ブチル９．５ｇ、スチレン２．５７ｇ、及びジビニルベンゼン０．３９ｇからなる単量体混合物を一括添加し、２０分間撹拌して乳化させた後、ペルオキソ二硫酸カリウム９．５ｍｇを添加し、１時間撹拌して最初のシード重合を行った。続いて、ペルオキソ二硫酸カリウム１８０．５ｍｇを添加し、５分間撹拌した。ここに、コア部分を形成するために必要とする量の残り（約９５重量％分）のアクリル酸ブチル１８０．５ｇ、スチレン４８．８９ｇ、及びジビニルベンゼン７．３３ｇにジオクチルスルホコハク酸ナトリウム０．９５ｇを溶解させてなる単量体混合物を２時間かけて連続的に添加し、２度目のシード重合を行い、その後、１時間熟成してコア部分を得た。

次いで、ペルオキソ二硫酸カリウム６０ｍｇを添加して５分間撹拌し、ここに、メタクリル酸メチル６０ｇ、アクリル酸１．５ｇ、及びアリルメタクリレート０．３ｇにジオクチルスルホコハク酸ナトリウム０．３ｇを溶解させてなる単量体混合物を３０分かけて連続的に添加し、シード重合を行った。その後、１時間熟成し、コア部分を被覆するシェル層を形成した。

次いで、室温（２５℃）まで冷却し、目開き１２０μｍのプラスチック製網で濾過することにより、コアシェル構造を有するゴム粒子を含むラテックスを得た。得られたラテックスをマイナス３０℃で凍結し、吸引濾過器で脱水洗浄した後、６０℃で一昼夜送風乾燥してゴム粒子を得た。得られたゴム粒子の平均粒子径は１０８ｎｍ、最大粒子径は２８９ｎｍであった。

[0193] なお、ゴム粒子の平均粒子径、最大粒子径は、動的光散乱法を測定原理と

した「Ｎａｎｏｔｒａｃ™」形式のナノトラック粒度分布測定装置（商品名「ＵＰＡ－ＥＸ１５０」、日機装（株）製）を使用して試料を測定し、得られた粒度分布曲線において、累積カーブが５０％となる時点の粒子径である累積平均径を平均粒子径、粒度分布測定結果の頻度（％）が０．００％を超えた時点の最大の粒子径を最大粒子径とした。なお、上記試料としては、下記製造例２で得られたゴム粒子分散エポキシ化合物１重量部をテトラヒドロフラン２０重量部に分散させたものを用いた。

[0194] 製造例２

（ゴム粒子分散エポキシ化合物の製造）

製造例１で得られたゴム粒子５重量部を、窒素気流下、６０℃に加温した状態でディゾルバーを使用して、商品名「セロキサイド２０２１Ｐ」（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル（３，４－エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレート、（株）ダイセル製）１００重量部に分散させ（１０００ｒｐｍ、６０分間）、真空脱泡して、ゴム粒子分散エポキシ化合物（２５℃での粘度：１０３６ｍＰａ・ｓ）を得た。

なお、製造例２で得られたゴム粒子分散エポキシ化合物（５重量部のゴム粒子を１００重量部のセロキサイド２０２１Ｐに分散させたもの）の２５℃での粘度は、デジタル粘度計（商品名「ＤＶＵ－ＥＩＩ型」、（株）トキメック製）を使用して測定した。

[0195] 製造例３

表１及び表２に示す配合割合（単位：重量部）で、商品名「リカシッドＭＨ－７００」（新日本理化（株）製）、商品名「Ｕ－ＣＡＴ　１８Ｘ」（サンアプロ（株）製）、及びエチレングリコール（和光純薬工業（株）製）を、自公転式撹拌装置（商品名「あわとり練太郎　ＡＲ－２５０」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して硬化剤組成物を得た。

[0196] 実施例１

表１に示す配合割合（単位：重量部）に従って、製造例２で得たゴム粒子分散エポキシ化合物、イソシアヌル酸誘導体（モノアリルジグリシジルイソ

シアヌレート；商品名「ＭＡ－ＤＧＩＣ」、四国化成工業（株）製）、シロキサン誘導体（分子内に２つのエポキシ基を有するシロキサン誘導体；商品名「Ｘ－４０－２６７８」を、自公転式撹拌装置（商品名「あわとり練太郎ＡＲ－２５０」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して、混合物を作製した。なお、上記混合は、ＭＡ－ＤＧＩＣを溶解させるために、８０℃で１時間攪拌して実施した。

次に、表１に示す配合割合（単位：重量部）に従って、上記で得た混合物と、白色顔料（酸化チタン；商品名「ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０」、レジノカラー工業（株）製）、無機充填剤（シリカ；商品名「ＦＢ－９７０ＦＤ」、デンカ（株）製）を、ディゾルバーを使用して均一に混合し、ロールミルによって所定条件下（ロールピッチ：０．２ｍｍ、回転数：２５ヘルツ、３パス）で溶融混練して混練物を得た。

次に、表１に示す配合割合（単位：重量部）となるように上記で得た混練物と、製造例３で得た硬化剤組成物とを自公転式撹拌装置（商品名「あわとり練太郎ＡＲ－２５０」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し（２０００ｒｐｍ、５分間）、脱泡して、硬化性樹脂組成物を得た。

上記硬化性樹脂組成物をポリエステルからなる離型フィルムで挟み込み、１５０℃のコンプレッション成型用金型内に置き、３．０ＭＰａの圧力で６００秒間加熱及び加圧し、その後、ポストキュアー（１５０℃で５時間）を行うことによって、硬化物を得た。

[0197] 実施例２～１４、比較例１～１５

硬化性樹脂組成物の配合組成を表１又は表２に示すように変更したこと以外は、実施例１と同様にして硬化物を得た。なお、一部の実施例及び比較例においては、硬化性樹脂組成物の構成成分として、製造例２で得たゴム粒子分散エポキシ化合物に代えて又は合わせて、表１又は表２に示す脂環式エポキシ化合物を使用した。

[0198] 実施例１５

表１に示す配合割合（単位：重量部）に従って、製造例２で得たゴム粒子

分散エポキシ化合物、イソシアヌル酸誘導体（モノアリルジグリシジルイソシアヌレート；商品名「ＭＡ－ＤＧＩＣ」、四国化成工業（株）製）、シロキサン誘導体（分子内に２つのエポキシ基を有するシロキサン誘導体；商品名「Ｘ－４０－２６７８」、信越化学工業（株）製）を、自公転式撹拌装置（商品名「あわとり練太郎ＡＲ－２５０」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して、混合物を作製した。なお、上記混合は、ＭＡ－ＤＧＩＣを溶解させるために、８０℃で１時間攪拌して実施した。

次に、表１に示す配合割合（単位：重量部）に従って、上記で得た混合物と、白色顔料（酸化チタン；商品名「ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０」、レジノカラー工業（株）製）、無機充填剤（シリカ；商品名「ＦＢ－９７０ＦＤ」、デンカ（株）製）を、ディゾルバーを使用して均一に混合し、ロールミルによって所定条件下（ロールピッチ：０．２ｍｍ、回転数：２５ヘルツ、３パス）で溶融混練して混練物を得た。

次に、表１に示す配合割合（単位：重量部）となるように上記で得た混練物と、硬化触媒（商品名「サンエイド　ＳＩ－１００Ｌ」、三新化学工業（株）製）とを自公転式撹拌装置（商品名「あわとり練太郎ＡＲ－２５０」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し（２０００ｒｐｍ、５分間）、脱泡して、硬化性樹脂組成物を得た。

上記硬化性樹脂組成物をポリエステルからなる離型フィルムで挟み込み、１５０℃のコンプレッション成型用金型内に置き、３．０ＭＰａの圧力で６００秒間加熱及び加圧し、その後、ポストキュアー（１５０℃で５時間）を行うことによって、硬化物を得た。

[0199] 実施例１６、比較例１６～２４

硬化性樹脂組成物の配合組成を表１、表３に示すように変更したこと以外は、実施例１５と同様にして硬化物を得た。なお、一部の実施例及び比較例においては、硬化性樹脂組成物の構成成分として、製造例２で得たゴム粒子分散エポキシ化合物に代えて又は合わせて、表１又は表３に示す脂環式エポキシ化合物を使用した。

[0200] なお、実施例１～１６、比較例１～２４における硬化性樹脂組成物の、２５℃における性状（液状又は個体）を表１～３の「硬化性樹脂組成物の性状」に示す。

[0201] ＜評価＞

実施例及び比較例で得られた硬化物について、下記の評価を実施した。

[0202] ［初期反射率］

実施例及び比較例で得られた硬化物を切削加工して、長さ３０ｍｍ×幅３０ｍｍ×厚み３ｍｍの試験片を作製した。次いで、分光光度計（商品名「分光光度計　ＵＶ－２４５０」、（株）島津製作所製）を用いて、波長４５０ｎｍの光に対する各試験片の反射率（「初期反射率」とする）を測定した。結果を表１～３に示す。

なお、初期反射率が９５％以上であれば、光反射用材料として特に優れていると言える。

[0203] ［加熱エージング前後の反射率保持率］

初期反射率の評価を行った試験片（硬化物；長さ３０ｍｍ×幅３０ｍｍ×３ｍｍ厚）を用いて、当該試験片を１２０℃の乾燥機に入れて２５０時間放置する試験（耐熱試験）を行った後、波長４５０ｎｍの光の反射率を初期反射率と同様に測定した。そして、下記式により、反射率保持率（加熱エージング前後）を算出した。結果を表１～３に示す。

［反射率保持率（加熱エージング前後）］＝（［加熱エージング後の反射率］／［初期反射率］）×１００

この反射率保持率が高いほど、硬化物が耐熱性に優れることが示唆される。なお、１２０℃、２５０時間加熱後の反射率保持率が９０％以上であれば、光反射用材料として耐熱性に特に優れていると言える。

[0204] ［紫外線エージング前後の反射率保持率］

初期反射率の評価を行った試験片（硬化物；長さ３０ｍｍ×幅３０ｍｍ×３ｍｍ厚）を用いて、当該試験片に対し、強度１０ｍＷ／ｃｍ^{2}の紫外線を２５０時間照射する試験（耐光試験）を行った後、波長４５０ｎｍの光の反射

率を初期反射率と同様に測定した。そして、下記式により、反射率保持率（紫外線エージング前後）を算出した。結果を表１～３に示す。

［反射率保持率（紫外線エージング前後）］＝（［紫外線エージング後の反射率］／［初期反射率］）×１００

この反射率保持率が高いほど、硬化物が耐光性に優れることが示唆される。なお、強度１０ｍＷ／ｃｍ^2、２５０時間照射後の反射率保持率が９０％以上であれば、光反射用材料として耐光性に特に優れていると言える。

[0205] ［切削加工時のクラック有無評価（強靭性評価）］

実施例及び比較例で得られた硬化物を切削加工して、幅５ｍｍ×長さ５ｍｍ×厚さ３ｍｍの試験片を作製した。上記硬化物の切削加工には、マイクロ・カッティング・マシン（商品名「ＢＳ－３００ＣＬ」、メイワフォーシス（株）製）を使用し、切削加工の際に硬化物にクラックが生じたか否かを、デジタルマイクロスコープ（商品名「ＶＨＸ－９００」、（株）キーエンス製）を用いて観察し、確認した。表１～３には、１サンプルにつき１０個の試験片を作製し、そのうちクラックの発生が確認された試験片の個数［個／１０個］を評価結果として示す。

[0206] ［リフロー時のクラック有無評価（強靭性評価）］

上記切削加工により得られた試験片（幅５ｍｍ×長さ５ｍｍ×厚さ３ｍｍ）に対し、リフロー炉（商品名「ＵＮＩ－５０１６Ｆ」、日本アントム（株）製）を用いて、２６０℃を最高温度として５秒間、全リフロー時間を９０秒としてリフロー処理を施した。その後、当該リフロー処理により試験片にクラックが生じたか否かを、デジタルマイクロスコープ（商品名「ＶＨＸ－９００」、（株）キーエンス製）を用いて観察し、確認した。表１～３には、１サンプルにつき１０個の試験片のリフロー処理を行い、そのうちクラックの発生が確認された試験片の個数［個／１０個］を評価結果として示す。

[0207] ［総合判定］

各試験の結果、下記（１）～（５）をいずれも満たすものを〇（良好）と判定した。一方、下記（１）～（５）のいずれかを満たさない場合には×（

不良）と判定した。

（１）初期反射率：光反射率が９５％以上

（２）加熱エージング前後の反射率保持率：反射率保持率が９０％以上

（３）紫外線エージング前後の反射率保持率：反射率保持率が９０％以上

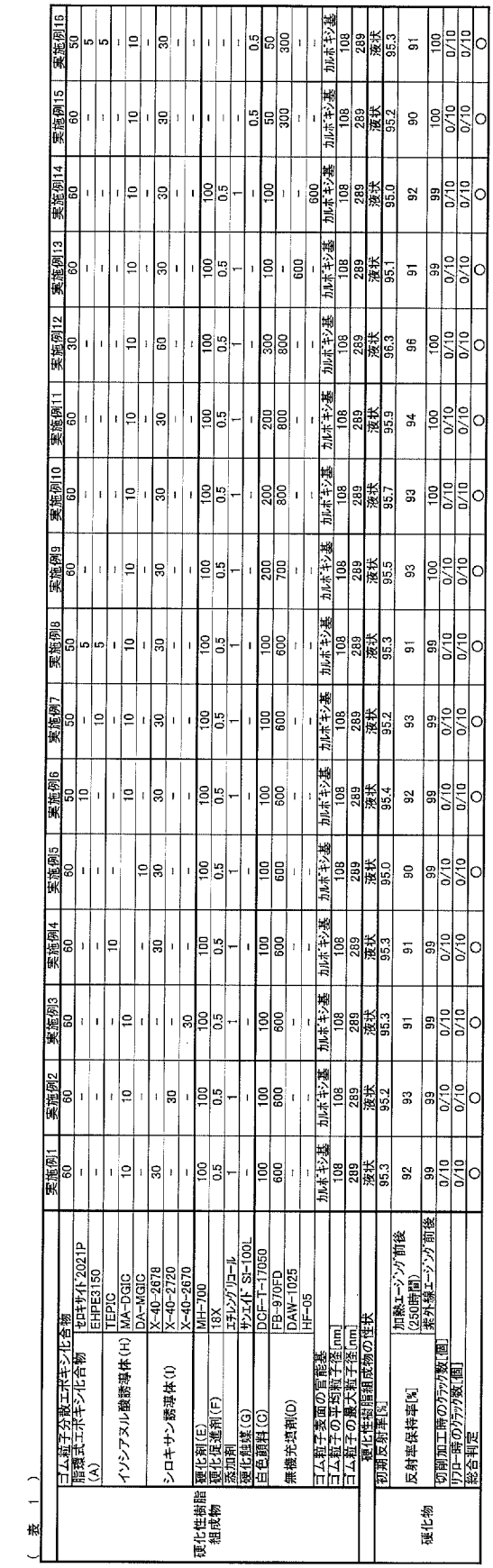
（４）切削加工時のクラック有無評価：クラックが発生した個数が０個

（５）リフロー時のクラック有無評価：クラックが発生した個数が０個

結果を表１～３の「総合判定」の欄に示す。

[0208]

[表1]



（表１）

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16
硬化性樹脂組成物	ゴム粒子分散エポキシ化合物		60	60	60	60	60	50	50	50	60	60	60	30	60	60	60	50
	脂環式エポキシ化合物(A)	セロキサイド2021P	–	–	–	–	–	10	–	5	–	–	–	–	–	–	–	5
		EHPE3150	–	–	–	–	–	–	10	5	–	–	–	–	–	–	–	5
	イソシアヌル酸誘導体(H)	TEPIC	–	–	–	10	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		MA-DGIC	10	10	10		10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
		DA-MGIC	–	–	–	–	10	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	シロキサン誘導体(I)	X-40-2678	30	–	–	30	30	30	30	30	30	30	30	60	30	30	30	30
		X-40-2720	–	30	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		X-40-2670	–	–	30	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	硬化剤(E)	MH-700	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	–	–
	硬化促進剤(F)	18X	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	–	–
	添加剤	エチレングリコール	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	–	–
	硬化触媒(G)	サンエイド SI-100L	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	0.5	0.5
	白色顔料(C)	DCF-T-17050	100	100	100	100	100	100	100	100	200	200	200	300	100	100	50	50
	無機充填剤(D)	FB-970FD	600	800	800	800	600	600	600	600	700	800	800	800	–	–	300	300
		DAW-1025	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	600	–	–	–
		HF-05	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	600	–	–
	ゴム粒子表面の官能基		加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基	加水ギン基
	ゴム粒子の平均粒子径[nm]		108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108	108
	ゴム粒子の最大粒子径[nm]		289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289	289
	硬化性樹脂組成物の性状		液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状
硬化物	初期反射率[%]		95.3	95.2	95.3	95.3	95.0	95.4	95.2	95.3	95.5	95.7	95.9	96.3	95.1	95.0	95.2	95.3
	反射率保持率[%]	加熱エージング前後(250時間)	92	93	91	91	90	92	93	91	93	93	94	96	91	92	90	91
		紫外線エージング前後	99	99	99	99	99	99	99	99	100	100	100	100	99	99	100	100
	切削加工時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	リフロー時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	総合判定		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

[0209] [表2]

（表 2）

			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12	比較例13	比較例14	比較例15
硬化性樹脂組成物	ゴム粒子分散エポキシ化合物		100	100	70	70	60	60	–	–	–	–	–	60	60	60	60
	脂環式エポキシ化合物(A)	セロキサイド2021P	–	–	30	–	–	–	100	–	50	100	60	10	30	40	–
		EHPE3150	–	–	–	30	–	–	–	100	50	–	–	–	–	–	–
	イソシアヌル酸誘導体(H)	TEPIC	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		MA-DGIC	–	–	–	–	10	10	–	–	–	–	10	–	10	–	10
		DA-MGIC	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	シロキサン誘導体(I)	X-40-2678	–	–	–	30	30	30	–	–	–	–	30	30	–	–	30
		X-40-2720	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		X-40-2670	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	硬化剤(E)	MH-700	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	硬化促進剤(F)	18X	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	添加剤	エチレングリコール	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	硬化触媒(G)	サンエイド SI-100L	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	白色顔料(C)	DCF-T-17050	150	300	150	150	150	300	150	150	150	100	100	100	100	100	–
	無機充填剤(D)	FB-970FD	–	–	–	–	–	–	–	–	–	300	300	600	600	600	600
		DAW-1025	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		HF-05	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	ゴム粒子表面の官能基		加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸	–	–	–	–	–	加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸	加水ギ酸
	ゴム粒子の平均粒子径[nm]		108	108	108	108	108	108	–	–	–	–	–	108	108	108	108
	ゴム粒子の最大粒子径[nm]		289	289	289	289	289	289	–	–	–	–	–	289	289	289	289
	硬化性樹脂組成物の性状		液状	固体	液状	液状	液状	固体	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状	液状
硬化物	初期反射率[%]		91.2	92.3	91.1	90.3	92.3	93.4	91.0	89.8	90.3	90.4	91.5	95.1	95.2	95.0	68.2
	反射率保持率[%]	加熱エージング前後(250時間)	79	71	78	73	89	90	78	72	73	76	90	87	85	82	84
		紫外線エージング前後	100	99	99	99	99	99	100	98	99	99	99	99	98	98	97
	切削加工時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	9/10	10/10	10/10	10/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	リフロー時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	実施せず(*1)				0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	総合判定		×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×

[0210] [表3]

（表 3）

			比較例16	比較例17	比較例18	比較例19	比較例20	比較例21	比較例22	比較例23	比較例24
硬化性樹脂組成物	ゴム粒子分散エポキシ化合物		100	70	60	–	–	60	60	60	60
	脂環式エポキシ化合物(A)	セロキサイド2021P	–	15	–	100	85	10	30	40	–
		EHPE3150	–	15	–	–	15	–	–	–	–
	イソシアヌル酸誘導体(H)	TEPIC	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		MA-DGIC	–	–	10	–	–	–	10	–	10
		DA-MGIC	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	シロキサン誘導体(I)	X-40-2678	–	–	30	–	–	30	–	–	30
		X-40-2720	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		X-40-2670	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	硬化剤(E)	MH-700	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	硬化促進剤(F)	18X	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	添加剤	エチレングリコール	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	硬化触媒(G)	サンエイド SI-100L	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	白色顔料(C)	DCF-T-17050	150	150	150	150	150	50	50	50	–
	無機充填剤(D)	FB-970FD	–	–	–	–	–	300	300	300	300
		DAW-1025	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		HF-05	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	ゴム粒子表面の官能基		カルボキシ基	カルボキシ基	カルボキシ基	–	–	カルボキシ基	カルボキシ基	カルボキシ基	カルボキシ基
	ゴム粒子の平均粒子径[nm]		108	108	108	–	–	108	108	108	108
	ゴム粒子の最大粒子径[nm]		289	289	289	–	–	289	289	289	289
硬化性樹脂組成物の性状			固体	固体	固体	固体	固体	液状	液状	液状	液状
硬化物	初期反射率[%]		90.7	90.0	92.5	90.6	89.9	95.2	95.1	94.9	65.3
	反射率保持率[%]	加熱エージング前後(250時間)	75	71	90	75	70	83	81	79	81
		紫外線エージング前後	99	99	99	99	99	99	98	99	97
	切削加工時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	リフロー時のクラック数[個]		0/10	0/10	0/10	実施せず(*1)		0/10	0/10	0/10	0/10
	総合判定		×	×	×	×	×	×	×	×	×

[0211] なお、表１～３に示す成分について、以下に説明する。

（ゴム粒子分散エポキシ化合物）

製造例２で得られたゴム粒子分散エポキシ化合物

（エポキシ化合物）

セロキサイド２０２１Ｐ：商品名「セロキサイド２０２１Ｐ」（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル（３，４－エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレート）、（株）ダイセル製

ＥＨＰＥ３１５０：商品名「ＥＨＰＥ３１５０」（２，２－ビス（ヒドロキシメチル）－１－ブタノールの１，２－エポキシ－４－（２－オキシラニル）シクロヘキサン付加物）、（株）ダイセル製

（イソシアヌル酸誘導体）

ＴＥＰＩＣ：商品名「ＴＥＰＩＣ」［トリグリシジルイソシアヌレート］、日産化学工業（株）製

ＭＡ－ＤＧＩＣ：商品名「ＭＡ－ＤＧＩＣ」［モノアリルジグリシジルイソシアヌレート］、四国化成工業（株）製

ＤＡ－ＭＧＩＣ：商品名「ＤＡ－ＭＧＩＣ」［ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート］、四国化成工業（株）製

（シロキサン誘導体）

Ｘ－４０－２６７８：商品名「Ｘ－４０－２６７８」（分子内に２つのエポキシ基を有するシロキサン誘導体）、信越化学工業（株）製

Ｘ－４０－２７２０：商品名「Ｘ－４０－２７２０」（分子内に３つのエポキシ基を有するシロキサン誘導体）、信越化学工業（株）製

Ｘ－４０－２６７０：商品名「Ｘ－４０－２６７０」（分子内に４つのエポキシ基を有するシロキサン誘導体）、信越化学工業（株）製

（硬化剤組成物）

ＭＨ－７００：商品名「リカシッドＭＨ－７００」（４－メチルヘキサヒドロ無水フタル酸／ヘキサヒドロ無水フタル酸）、新日本理化（株）製

１８Ｘ：商品名「Ｕ－ＣＡＴ　１８Ｘ」（硬化促進剤）、サンアプロ（株

）製

（添加剤）

エチレングリコール：商品名「エチレングリコール」、和光純薬工業（株）製

（硬化触媒）

サンエイド　ＳＩ－１００Ｌ：商品名「サンエイド　ＳＩ－１００Ｌ」、三新化学工業（株）製

（白色顔料）

ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０：商品名「ＤＣＦ－Ｔ－１７０５０」（酸化チタン、平均粒子径０．３μｍ、最大粒子径１μｍ以下）、レジノカラー工業（株）製

（無機充填剤）

ＦＢ－９７０ＦＤ：商品名「ＦＢ－９７０ＦＤ」（シリカ、表面処理なし、平均粒子径１６．７μｍ、最大粒子径７０μｍ）、デンカ（株）製

ＤＡＷ－１０２５：商品名「ＤＡＷ－１０２５」（アルミナ、平均粒子径７．９μｍ、最大粒子径３２μｍ）、デンカ（株）製

ＨＦ－０５：商品名「ＨＦ－０５」（窒化アルミナ、平均粒子径５μｍ、最大粒子径５μｍ）、デンカ（株）製

産業上の利用可能性

[0212] 本発明の硬化性樹脂組成物は上記構成を有するため、高い光反射性を有し、且つ、耐熱性及び耐光性に優れ、光反射性が経時で低下しにくい硬化物を形成することができ、特にコンプレッション成型により硬化物を形成した際に上記効果が顕著に発揮される。このため、経時で光の輝度が低下しにくく、信頼性の高い光半導体装置を提供することができる。

符号の説明

[0213] １００：白色リフレクター

１０１：金属配線（電極）

１０２：光半導体素子の搭載領域

１０３：パッケージ基板

１０４：ボンディングワイヤ

１０５：光半導体素子の封止材

１０６：ダイボンディング

１０７：光半導体素子

１０８：ヒートシンク

１０９：カソードマーク

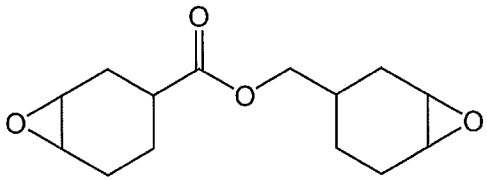
請求の範囲

[請求項1] 脂環式エポキシ化合物（Ａ）、ゴム粒子（Ｂ）、白色顔料（Ｃ）、無機充填剤（Ｄ）、分子内に１個以上のオキシラン環を有するイソシアヌル酸誘導体（Ｈ）、及び分子内に２以上のエポキシ基を有するシロキサン誘導体（Ｉ）を含有し、さらに、硬化剤（Ｅ）、及び硬化促進剤（Ｆ）、又は、硬化触媒（Ｇ）を含有し、２５℃において液状であることを特徴とする光反射用硬化性樹脂組成物。

[請求項2] 前記ゴム粒子（Ｂ）が、（メタ）アクリル酸エステルを必須のモノマー成分とするポリマーで構成され、表面にヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基を有し、前記ゴム粒子（Ｂ）の平均粒子径が１０～５００ｎｍであり、最大粒子径が５０～１０００ｎｍである請求項１に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

[請求項3] 前記脂環式エポキシ化合物（Ａ）が、下記式（Ｉ－１）

[化1]

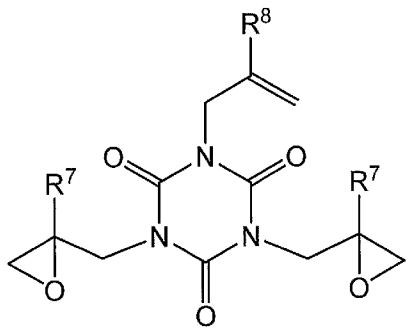


(I-1)

で表される化合物を含む請求項１又は２に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

[請求項4] 前記イソシアヌル酸誘導体（Ｈ）が、下記式（III－１）

[化2]



(III－1)

[式（III－１）中、R^7及びR^8は、同一又は異なって、水素原子又は

炭素数１～８のアルキル基を示す。］

で表される化合物である請求項１～３のいずれか１項に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［請求項5］ 前記白色顔料（Ｃ）が、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、及び硫酸バリウムからなる群より選択される少なくとも１種であり、

前記無機充填剤（Ｄ）が、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、及び窒化ホウ素からなる群より選択される少なくとも１種である請求項１～４のいずれか１項に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

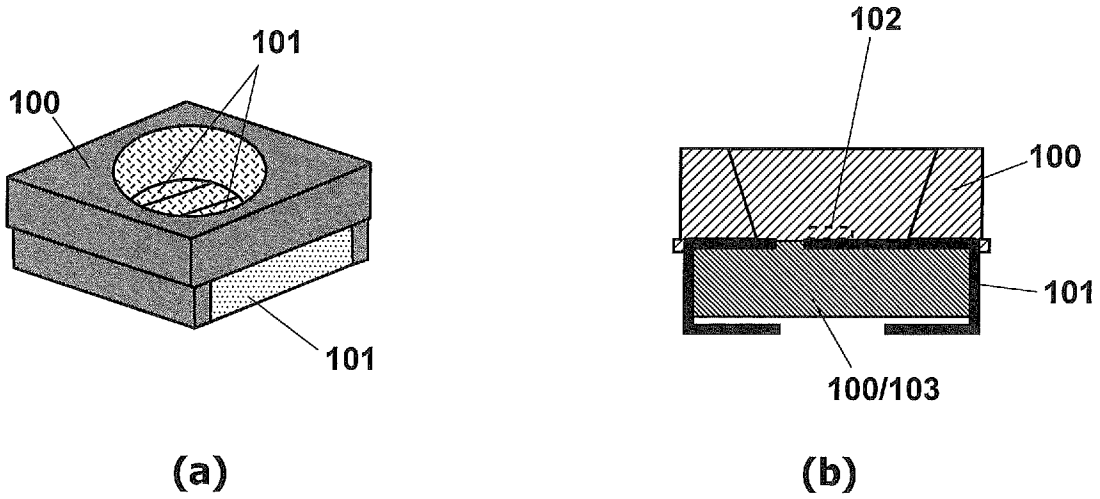
［請求項6］ トランスファー成型用又はコンプレッション成型用樹脂組成物である請求項１～５のいずれか１項に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

［請求項7］ リフレクター形成用樹脂組成物である請求項１～６のいずれか１項に記載の光反射用硬化性樹脂組成物。

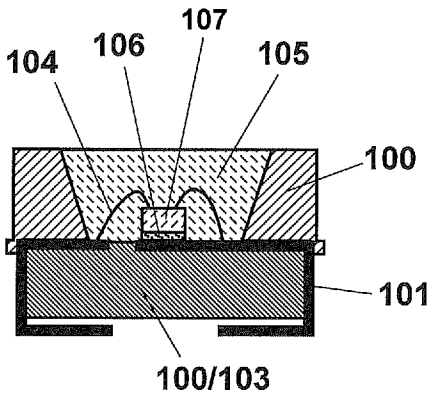
［請求項8］ 請求項１～７のいずれか１項に記載の光反射用硬化性樹脂組成物の硬化物。

［請求項9］ 光半導体素子と、請求項８に記載の光反射用硬化性樹脂組成物の硬化物からなるリフレクターとを少なくとも備えることを特徴とする光半導体装置。

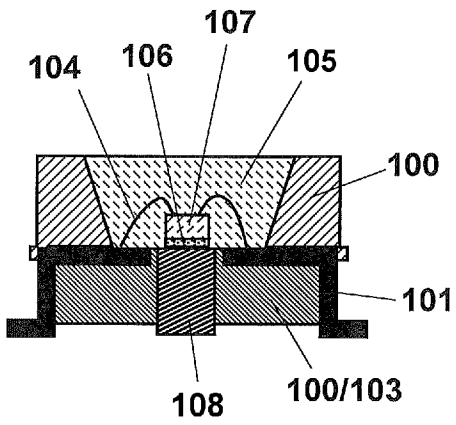
[図1]


101
100
101
102
100
101
100/103
(a)
(b)

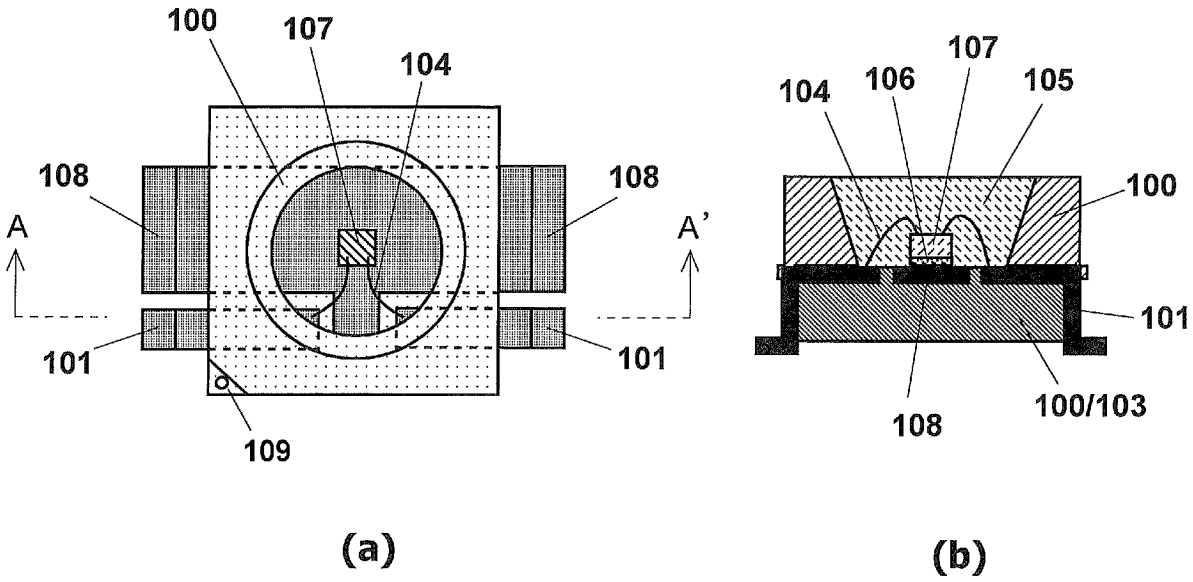
[図2]


107
104
106
105
100
101
100/103

[図3]


107
104
106
105
100
101
108
100/103

[図4]


100
107
104
108
108
A
A'
101
101
109
(a)
104
106
107
105
100
101
108
100/103
(b)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/004216

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L63/00(2006.01)i, *C08K3/00*(2006.01)i, *C08L21/00*(2006.01)i, *H01L33/60*(2010.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08L63/00, C08K3/00, C08L21/00, H01L33/60

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2013-129798 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 04 July 2013 (04.07.2013), claims; paragraphs [0049], [0072]; examples (Family: none)	1-9
Y	WO 2013/008680 A1 (Daicel Corp.), 17 January 2013 (17.01.2013), claims; paragraphs [0068], [0179] to [0191]; examples; comparative examples & CN 103649218 A & KR 10-2014-0034777 A & TW 201307423 A	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
10 March 2017 (10.03.17)	21 March 2017 (21.03.17)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/004216

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2013/002052 A1 (Daicel Corp.), 03 January 2013 (03.01.2013), paragraph [0087] & US 2014/0008686 A1 paragraph [0094] & EP 2725060 A1 & CN 103492482 A & KR 10-2014-0027111 A & TW 201305270 A	1-9
A	JP 2013-100410 A (Daicel Corp.), 23 May 2013 (23.05.2013), the entire specification (Family: none)	1-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／００４２１６

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L63/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L21/00(2006.01)i, H01L33/60(2010.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L63/00, C08K3/00, C08L21/00, H01L33/60

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	JP 2013-129798 A (日本ゼオン株式会社) 2013.07.04, 特許請求の範囲、[0049]、[0072]、実施例 ファミリーなし	1-9
Y	WO 2013/008680 A1 (株式会社ダイセル) 2013.01.17, 特許請求の範囲、[0068]、[0179]-[0191]、実施例、比較例 & CN 103649218 A & KR 10-2014-0034777 A & TW 201307423 A	1-9

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１０．０３．２０１７	２１．０３．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　９３４２
繁田　えい子
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	WO 2013/002052 A1（株式会社ダイセル）2013.01.03,[0087] & US 2014/0008686 A1, [0094] & EP 2725060 A1 & CN 103492482 A & KR 10-2014-0027111 A & TW 201305270 A	1-9
A	JP 2013-100410 A（株式会社ダイセル）2013.05.23, 明細書全体 ファミリーなし	1-9