



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201105581 A1

(43)公開日：中華民國 100 (2011) 年 02 月 16 日

(21)申請案號：099115926

(22)申請日：中華民國 99 (2010) 年 05 月 19 日

(51)Int. Cl.：

C01B33/18 (2006.01)

C01B33/12 (2006.01)

B01J2/06 (2006.01)

(30)優先權：2009/08/07

日本

2009-185014

(71)申請人：松下電工股份有限公司 (日本) PANASONIC ELECTRIC WORKS CO., LTD. (JP)

日本

國立大學法人東京大學 (日本) THE UNIVERSITY OF TOKYO (JP)

日本

(72)發明人：矢部裕城 YABE, HIROKI (JP)；山木健之 YAMAKI, TAKEYUKI (JP)；千川康人 HOSHIKAWA, YASUTO (JP)；大久保達也 OKUBO, TATSUYA (JP)；下嶋敦 SHIMOJIMA, ATSUSHI (JP)

(74)代理人：詹銘文；蕭錫清

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：16 項 圖式數：13 共 63 頁

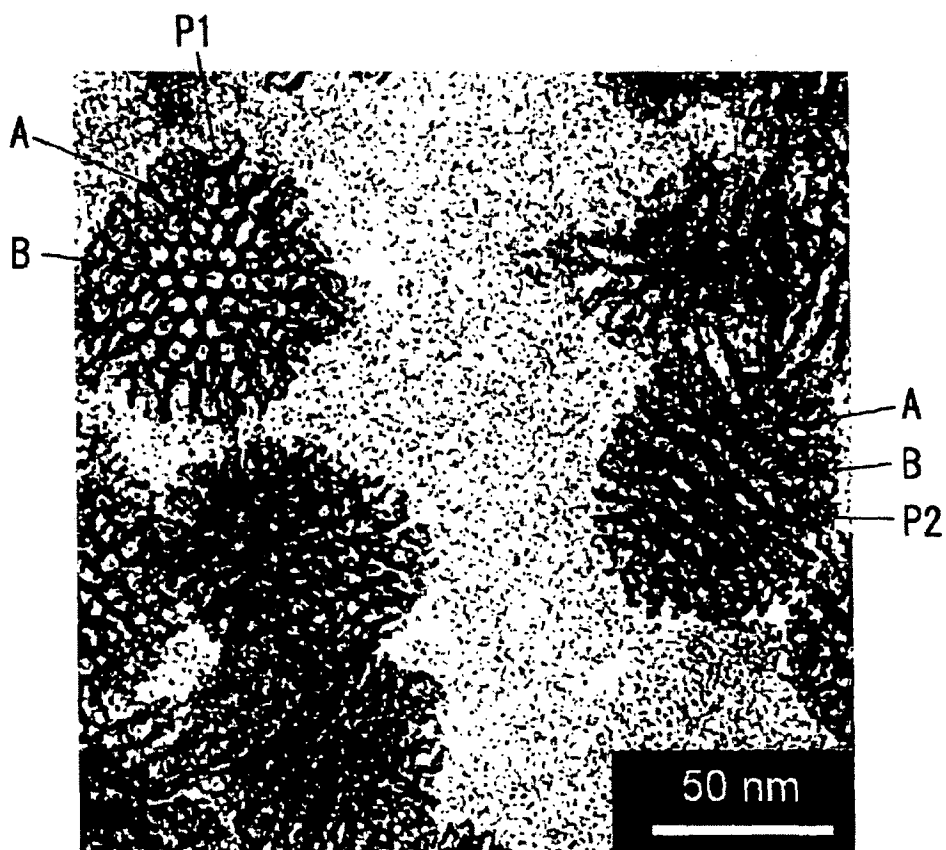
(54)名稱

微孔二氧化矽微粒子的製造方法、微孔二氧化矽微粒子、微孔二氧化矽微粒子分散液、含微孔二氧化矽微粒子組成物以及含微孔二氧化矽微粒子成型物

METHOD OF FACRICATING MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, DISPERSION LIQUID OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, COMPOSITION OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, AND MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE MOLDING

(57)摘要

提供可實現低反射率、低介電常數、低熱導率等功能與提高成型物強度的中孔二氧化矽微粒子。藉由包含界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟及中孔化步驟來製造中孔二氧化矽微粒子。二氧化矽微粒子製作步驟為混合界面活性劑、水、鹼、具備使微胞體積增大的疏水部的含疏水部添加物與二氧化矽源製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子。中孔化步驟為於其中混合酸及有機矽化合物，去除包含於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的界面活性劑及含疏水部添加物，對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。中孔二氧化矽微粒子於粒子內有中孔，表面有機官能基修飾。



A：凸狀部

B：中孔

P1：粒子

P2：粒子



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201105581 A1

(43)公開日：中華民國 100 (2011) 年 02 月 16 日

(21)申請案號：099115926

(22)申請日：中華民國 99 (2010) 年 05 月 19 日

(51)Int. Cl.：

C01B33/18 (2006.01)

C01B33/12 (2006.01)

B01J2/06 (2006.01)

(30)優先權：2009/08/07

日本

2009-185014

(71)申請人：松下電工股份有限公司 (日本) PANASONIC ELECTRIC WORKS CO., LTD. (JP)

日本

國立大學法人東京大學 (日本) THE UNIVERSITY OF TOKYO (JP)

日本

(72)發明人：矢部裕城 YABE, HIROKI (JP)；山木健之 YAMAKI, TAKEYUKI (JP)；千川康人 HOSHIKAWA, YASUTO (JP)；大久保達也 OKUBO, TATSUYA (JP)；下嶋敦 SHIMOJIMA, ATSUSHI (JP)

(74)代理人：詹銘文；蕭錫清

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：16 項 圖式數：13 共 63 頁

(54)名稱

微孔二氧化矽微粒子的製造方法、微孔二氧化矽微粒子、微孔二氧化矽微粒子分散液、含微孔二氧化矽微粒子組成物以及含微孔二氧化矽微粒子成型物

METHOD OF FACRICATING MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, DISPERSION LIQUID OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, COMPOSITION OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, AND MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE MOLDING

(57)摘要

提供可實現低反射率、低介電常數、低熱導率等功能與提高成型物強度的中孔二氧化矽微粒子。藉由包含界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟及中孔化步驟來製造中孔二氧化矽微粒子。二氧化矽微粒子製作步驟為混合界面活性劑、水、鹼、具備使微胞體積增大的疏水部的含疏水部添加物與二氧化矽源製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子。中孔化步驟為於其中混合酸及有機矽化合物，去除包含於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的界面活性劑及含疏水部添加物，對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。中孔二氧化矽微粒子於粒子內有中孔，表面有機官能基修飾。

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明是有關於一種中孔二氧化矽微粒子的製造方法、中孔二氧化矽微粒子以及中孔二氧化矽微粒子分散液、含中孔二氧化矽微粒子組成物、以及含中孔二氧化矽微粒子成型物。

【先前技術】

先前以來，實現了低反射率（Low-n）、低介電常數（Low-k）的微粒子已知有如專利文獻 1 的中空結構的二氧化矽微粒子。另外，近年來，要求進一步提高空隙率以提升性能。但是，中空二氧化矽微粒子難以將外側的殼薄化，若將該中空二氧化矽微粒子化成粒徑為 100 nm 以下，則會因其結構之關係而容易導致空隙率降低。

於如此之狀況下，中孔二氧化矽微粒子因其結構而具有即便微粒子化空隙率亦不易降低的特徵，作為下一代的高空隙微粒子而被期待應用於低反射率（Low-n）、低介電常數（Low-k）的材料，進一步應用於低熱導率材料。而且，藉由將中孔二氧化矽微粒子分散於樹脂等基質（matrix）形成材料中，可獲得具有上述功能的成型物（參照專利文獻 2～專利文獻 6）。

要製作具有中孔二氧化矽微粒子的優異功能的成型物，必須將高空隙率的中孔二氧化矽微粒子保持於成型物中。但是，先前的中孔二氧化矽微粒子存在下述問題：因空隙量少，故而若中孔二氧化矽的含量少，則成型物等無

法充分獲得如上所述的功能，反之，若中孔二氧化矽的含量增多，則成型物的強度下降。另外，亦在進行進一步提高中孔二氧化矽微粒子的空隙率的研究。例如，於非專利文獻 1 中，藉由添加苯乙烯（styrene）等來擴大中孔，提高粒子的空隙率。但是該方法中，中孔的形狀及配置不具有規則性，有可能會因粒子的強度而導致成型物的強度降低。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻 1]日本專利特開 2001-233611 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開 2009-040965 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開 2009-040966 號公報

[專利文獻 4]日本專利特開 2009-040967 號公報

[專利文獻 5]日本專利特開 2004-083307 號公報

[專利文獻 6]日本專利特開 2007-161518 號公報

[非專利文獻]

[非專利文獻 1]Microporous and Mesoporous Materials
120 (2009) 447-453

【發明內容】

本發明是鑒於上述問題研究而成，本發明之目的在於提供一種低反射率（Low-n）、低介電常數（Low-k）、低熱導率等優異的功能與成型物的高強度化並存的中孔二氧化矽微粒子的製造方法。另外，本發明之目的在於提供一種中孔二氧化矽微粒子以及含有該中孔二氧化矽微粒子的分

散液、組成物、成型物。

為了解決上述課題，本發明包含以下的構成。

中孔二氧化矽微粒子的製造方法的發明的特徵在於，其是藉由包含以下步驟的步驟來製造：界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟，將界面活性劑、水、鹼、具備使由上述界面活性劑所形成的微胞（micelle）的體積增大的疏水部的含疏水部添加物與二氧化矽源混合，來製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子；及中孔化步驟，藉由將上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子、酸及分子中含有矽氧烷鍵（siloxane bond）的有機矽化合物混合，而將包含於上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的上述界面活性劑及上述含疏水部的添加物除去，並對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。

於該發明中，上述中孔化步驟較佳為包含下述步驟：於含有由上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟所生成的上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的反應液中，混合酸、及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

另外，上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物較佳為分子中的矽氧烷鍵的數目為一個。

另外，上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物較佳為具有疏水性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予疏水性官能基。此時，更好的是包含六甲基二矽氧烷（hexamethyl disiloxane）作為上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

另外，上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物較佳為具有連結有兩個以上的碳的烷基鍵。

另外，上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物較佳為具有親水性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予親水基。

另外，上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物較佳為具有反應性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予反應性官能基。

中孔二氧化矽微粒子的發明的特徵在於：其是藉由上述中孔二氧化矽微粒子的製造方法而獲得。

或者，中孔二氧化矽微粒子的發明的特徵在於：其粒徑為 100 nm 以下，於粒子內部等間隔地配置有孔徑為 3.5 nm 以上的多個中孔，且表面經有機官能基修飾。

此時，較佳為於中孔二氧化矽微粒子的粒子表面具備多個凸狀部。

另外，較佳為上述凸狀部是以矽氧化物 (silicon oxide) 為主成分而形成。

另外，較佳為上述凸狀部的突出高度為 1 nm 以上、30 nm 以下。

中孔二氧化矽微粒子分散液的發明的特徵在於：其是將上述中孔二氧化矽微粒子分散於介質中而成。

含中孔二氧化矽微粒子組成物的發明的特徵在於：其是於基質形成材料中含有上述中孔二氧化矽微粒子而成。

含中孔二氧化矽微粒子成型物的發明的特徵在於：其

是將上述含中孔二氧化矽微粒子組成物成型而成。

[發明的效果]

根據本發明的中孔二氧化矽微粒子的製造方法，在界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟中，於鹼性條件下進行烷氧基矽烷（alkoxysilane）的水解反應而形成二氧化矽微粒子時，可在二氧化矽內藉由界面活性劑而形成作為中孔的起源的微胞，並且將含疏水部的添加物導入至由界面活性劑所形成的微胞中，使微胞直徑增大。繼而，在中孔化步驟中，酸可將形成二氧化矽內的微胞的界面活性劑及微胞內的含疏水部的添加物萃取而去除，且同時分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的矽氧烷鍵可利用酸而裂解從而活化，與存在於粒子表面的矽醇基（silanol group）縮合，藉此以有機官能基來對粒子表面予以修飾。因此，所獲得的粒子的中孔擴大，但粒徑不增大，故而，本發明的中孔二氧化矽微粒子的製造方法可製造高空隙率的中孔二氧化矽微粒子。此外，本發明的中孔二氧化矽微粒子的製造方法可保護粒子的表面不受水或酸的影響，從而可抑制中孔因矽氧烷骨架水解而遭到破壞，並且，由於中孔微粒子的表面被有機官能基被覆，故而可抑制微粒子彼此凝結，從而可顯著提高微粒子在介質中的分散性。而且，如上所述的高分散性且高空隙率的中孔二氧化矽微粒子以比先前少的添加量即可對成型物賦予功能，故而不容易降低成型物的強度。

根據本發明的中孔二氧化矽微粒子，利用上述製造方

法，本發明的中孔二氧化矽微粒子的粒徑減小，或者粒徑形成為 100 nm 以下的較小粒徑，藉此，可於 100 nm 左右的微小空間中高密度地填充微粒子，可用於半導體的層間絕緣膜或抗反射膜等要求高功能的薄膜，獲得高品質的薄膜成型品。另外，本發明的中孔二氧化矽微粒子藉由利用上述製造方法來獲得大的中孔，或者具備 3.5 nm 以上的較大中孔，而實現高空隙率，並且藉由等間隔地配置該中孔，而保持成型物強度，從而同時實現空隙率提高與強度維持。

根據本發明的中孔二氧化矽微粒子分散液，可容易地獲得具有低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的功能的添加劑。

根據本發明的含中孔二氧化矽微粒子組成物，藉由利用成膜或射出 (injection) 等將本發明的含中孔二氧化矽微粒子組成物成型，可獲得能夠容易地製造具有低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的功能的成型物的組成物。

根據本發明的含中孔二氧化矽微粒子成型物，本發明可獲得具有低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的功能的成型物。另外，由於成型物中的中孔二氧化矽微粒子的分散性良好，故而可不出現分散不均地均勻配置於基質中，從而可獲得性能不均較少的高品質的成型物，而且若基質為透明，則亦可使成型物形成為透明。

為讓本發明之上述和其他目的、特徵和優點能更明顯易懂，下文特舉較佳實施例，並配合所附圖式，作詳細說

明如下。

【實施方式】

以下，就用來實施本發明的形態進行說明。

[中孔二氧化矽微粒子的製造]

本發明的中孔二氧化矽微粒子的製造方法中，首先進行製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子的「界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟」：於該界面活性劑複合二氧化矽微粒子的中孔內部，存在內包含疏水部的添加物的界面活性劑微胞作為模板（template）。繼而，進行「中孔化步驟」：將界面活性劑複合二氧化矽微粒子所包含的界面活性劑及含疏水部的添加物去除，並對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。

於界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟中，首先製作包含界面活性劑、水、鹼、具備使由上述界面活性劑所形成的微胞的體積增大的疏水部的含疏水部的添加物及二氧化矽源的混合液。

作為二氧化矽源，只要是可形成中孔二氧化矽微粒子的二氧化矽源即可，可適宜地使用二氧化矽源（矽化合物）。此種二氧化矽源例如可列舉矽烷氧化物（silicon alkoxide），尤其可列舉作為四烷氧基矽烷（tetraalkoxysilane）的四甲氧基矽烷、四乙氧基矽烷、四丙氧基矽烷等。其中，較佳為使用四乙氧基矽烷（ $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ ），原因在於可簡便地製作出良好的中孔二氧化矽微粒子。

另外，二氧化矽源較佳為含有包含有機官能基的烷氧基矽烷。若使用此種烷氧基矽烷，則可藉由烷氧基矽烷而形成二氧化矽骨架，並且將有機官能基配置於微粒子表面。而且將微粒子與樹脂複合時，該有機官能基與樹脂反應而形成化學鍵，故而可容易地製造使成型物的強度提高的中孔二氧化矽微粒子。另外，若利用其他有機分子等對有機官能基進行化學修飾，則可對中孔二氧化矽微粒子賦予適宜的特性。

對於包含有機官能基的烷氧基矽烷，只要藉由將該烷氧基矽烷用作二氧化矽源的成分可獲得界面活性劑複合二氧化矽微粒子即可，並無特別限定，例如可列舉：包含烷基、芳基(aryl group)、胺基、環氧基、乙烯基(vinyl group)、異氰酸酯基(isocyanate group)、巰基、硫醚基、脲基(ureido group)、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、苯乙烯基等作為有機基的烷氧基矽烷。其中更佳為胺基，例如可較好地使用胺基丙基三乙氧基矽烷等矽烷偶合劑(silane coupling agent)。經由胺基的表面修飾例如可藉由與具有異氰酸酯基、環氧基、乙烯基、羰基、Si-H基等的修飾劑反應而實現。

界面活性劑可使用：陽離子(cation)系界面活性劑、陰離子(anion)系界面活性劑、非離子系界面活性劑、三嵌段共聚物(triblock copolymer)中的任一種界面活性劑，較佳為使用陽離子性界面活性劑。對陽離子性界面活性劑並無特別限定，特佳為十八烷基三甲基溴化銨、十六烷基

三甲基溴化銨、十四烷基三甲基溴化銨、十二烷基三甲基溴化銨、癸基三甲基溴化銨、辛基三甲基溴化銨、己基三甲基溴化銨等下述四級銨鹽陽離子性界面活性劑，原因在於可簡便地製作良好的中孔二氧化矽微粒子。

對二氧化矽源與界面活性劑的混合比率並無特別限制，以重量比計較佳為 1：10～10：1。若界面活性劑的量相對於二氧化矽源在該重量比的範圍之外，則產物結構的規則性容易降低，有可能難以獲得中孔按正確規則排列的中孔二氧化矽微粒子。

含疏水部的添加物是含有具有使由如上所述的界面活性劑所形成的微胞的體積增大的效果的疏水部的添加物。若含有含疏水部的添加物，則在進行烷氧基矽烷的水解反應時，該添加物被導入至界面活性劑微胞的疏水部，藉此使微胞的體積增大，因此可獲得中孔較大的中孔二氧化矽微粒子。對於含疏水部的添加物並無特別限定，分子整體為疏水性的化合物可例示烷基苯或長鏈烷烴、苯、萘、蒽（anthracene）、環己烷等，分子的一部分具備疏水部的化合物可例示嵌段聚合物等，特別是甲基苯、乙基苯、異丙基苯等烷基苯容易被導入至微胞中，故中孔容易增大，因此較佳。另外，若使用甲基苯，則如後文所述般可容易地於微粒子的表面形成凸狀部。

另外，製作中孔材料時添加疏水性的添加物來擴大中孔的方法於先前文獻 J. Am. Chem. Soc. 1992, 114, 10834-10843、Chem. Mater. 2008, 20, 4777-4782 中有所揭

示。但是，於本發明的製造方法中，是藉由使用如上所述的方法，保持為可適用於微小元件（device）的分散良好的微粒子的狀態而擴大中孔，獲得空隙率提高的中孔二氧化矽微粒子。

混合液中的含疏水部的添加物的量較佳為，相對於界面活性劑以物質量比（莫耳比）計為3倍以上。藉此，可使中孔形成為充分的大小，可更容易地製作高空隙的微粒子。若含疏水部的添加物的量相對於界面活性劑未達3倍，則有可能無法獲得充分大小的中孔。即便含有過剩量的含疏水部的添加物，過剩的含疏水部的添加物亦不會被導入至微胞中，難以對微粒子的反應產生大的影響，故而儘管對含疏水部的添加物的量的上限並無特別限定，但考慮到提高水解反應的效率，含疏水部的添加物較佳為100倍以內。該含疏水部的添加物的量更好的是3倍以上～50倍以內。

混合液中較佳為含有醇。若混合液中含有醇，則於二氧化矽源聚合時，可控制聚合物的大小及形狀，可使所獲得的微粒子接近於大小一致的球狀微粒子。特別是當使用包含有機官能基的烷氧基矽烷來作為二氧化矽源時，粒子的大小及形狀容易變得不規則，但若含有醇，則可防止因有機官能基而引起形狀等混亂，可使粒子的大小及形狀變得整齊。

且說，於先前文獻 Microporous and Mesoporous Materials 93 (2006) 190-198 中，揭示有使用各種醇來製作

形狀不同的中孔二氧化矽微粒子的內容。但是，利用該文獻的方法時中孔的大小不充分，無法製作形成高空隙的微粒子。另一方面，於本發明中，在如上所述的混合物中添加醇時，儘管會抑制粒子成長，但可進一步獲得中孔較大的微粒子。

對醇並無特別限定，較佳為具有兩個以上的羥基的多元醇，原因在於此種多元醇可良好地控制粒子成長。多元醇可使用適宜的醇，例如較佳為使用：乙二醇、丙三醇（glycerin）、1,3-丁二醇、丙二醇、聚乙二醇等。對醇的混合量並無特別限制，較佳為相對於二氧化矽源為 1000 wt%（重量百分比）～10000 wt% 左右。

其次，於界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟中，繼而混合攪拌上述混合液，來製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子。藉由該混合及攪拌，二氧化矽源利用鹼產生水解反應而聚合。另外，在製備上述混合液時，可藉由向包含界面活性劑、水、鹼及含疏水部的添加物的混合液中添加二氧化矽源，而製備上述混合液。

對於反應所使用的鹼，可適宜地使用界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成反應能夠使用的無機及有機的鹼。其中，較佳為使用作為氮系鹼的銨或胺系的鹼，更好的是使用高反應性的氮（ammonia）。而且，使用氮時，就安全性的觀點而言，較佳為使用氨水。

另外，混合液中二氧化矽源與包含水、及根據需要的醇的分散溶劑的混合比率較佳為，相對於由二氧化矽源進

行水解反應而得的縮合物 1 重量份，分散溶劑為 5 重量份～1000 重量份。若分散溶劑的量少於上述量，則二氧化矽源的濃度過高而使反應速度加快，有可能無法穩定地形成規則正確的微結構。另一方面，若分散溶劑的量多於該範圍，則中孔二氧化矽微粒子的產量極低，有可能難以成為實用的製造方法。

於界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟中製成界面活性劑複合二氧化矽微粒子後，藉由中孔化步驟而同時進行下述操作：將界面活性劑複合二氧化矽微粒子所包含的界面活性劑及含疏水部的添加物去除，及對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。另外，所謂同時，是指以一次處理來進行。藉由將界面活性劑及含疏水部的添加物去除，可獲得中孔變成空隙而形成的中孔二氧化矽微粒子。為了自界面活性劑複合二氧化矽微粒子中除去作為模板的界面活性劑及含疏水部的添加物，亦可於模板分解的溫度下焙燒界面活性劑複合二氧化矽微粒子，但於本發明的中孔化步驟中，是利用酸進行萃取而去除模板。繼而，將酸與分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合，藉此使有機矽化合物的矽氧烷鍵產生裂解反應而活化，且去除模板後於二氧化矽表面露出的反應性的矽醇基與有機矽化合物的活化體鍵結，從而可以有機官能基修飾二氧化矽微粒子表面。亦即是經由矽氧烷鍵而將包含有機官能基的矽導入至二氧化矽微粒子的表面，且是藉由矽烷化（silylation）而導入有機官能基。藉由導入該有機官能基將粒子表面被覆

等，可保護粒子的表面不受酸的影響，可抑制中孔受到酸的破壞，而且可抑制有可能因粒子間矽醇基縮合而產生的粒子凝結。

分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物只要分子中的矽氧烷鍵可利用酸而裂解即可，並無特別限定。另外，較佳為有機官能基部分不會因酸而分解的有機矽化合物。此種含有矽氧烷鍵的有機矽化合物可列舉：導入有甲基作為有機基的聚矽氧油（silicone oil）、或導入有甲基以外的有機基的改質聚矽氧油等。甲基以外的官能基可列舉：連結有兩個以上的碳原子的烷基、芳基、羧基、甲醇基（carbinol group）、胺基、環氧基、伸烷基（alkylene）、巯基、硫醚基、脲基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、苯乙烯基、羥基烷基、聚醚基或將上述官能基中的氫的氫取代成氟所得的官能基（氟化的有機基）等。

分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的一較佳形態為具有疏水性官能基。此時，藉由中孔化步驟，可對二氧化矽微粒子表面賦予疏水性官能基。亦即，所謂疏水性官能基，是指電子偏壓少而極性小的官能基、或將有機官能基氟化所得的官能基等對水的親和性低的官能基，藉由有機矽化合物所具有的疏水性官能基，可於粒子表面配置疏水性官能基，結果可提高粒子在疏水性分散介質或樹脂中的分散性。疏水性官能基只要是疏水性有機官能基等官能基內的電子偏壓小的官能基或將有機官能基氟化所得的官能基，則並無特別限定，可列舉烷基、芳基、苯乙烯基、氟

烷基 (fluoroalkyl) 等。

另外，分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有親水性官能基亦為較佳形態之一。此時，藉由中孔化步驟，可對二氧化矽微粒子表面賦予親水基。亦即，所謂親水性官能基，是指電子偏壓大而極性高的官能基等對水的親和性高的官能基，藉由有機矽化合物所具有的親水性官能基，可於粒子表面配置親水性官能基，結果可提高粒子在親水性分散介質或樹脂中的分散性。親水性官能基只要是官能基內的電子偏壓大而極性高的官能基等對水的親和性高的官能基，則並無特別限定，可列舉：羧基、甲醇基、胺基、環氧基、伸烷基、巰基、硫醚基、脲基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、羥基烷基、聚醚基或將極性低的官能基的一部分取代成上述極性高的官能基所得的官能基等。

於分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物中，矽氧烷鍵的數目較佳為一個。此時，即便矽氧烷鍵利用酸產生裂解而活化，裂解的活化體中亦僅有一個活性部位，使存在多個活性部位時有可能發生的有機矽化合物彼此聚合的情況發生的可能性降低，從而更可使有機官能基均勻地被覆粒子表面。

另外，分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物亦可包含六甲基二矽氧烷。此時，可利用六甲基二矽氧烷而將甲基配置於粒子表面。六甲基二矽氧烷的附加於粒子表面的三甲基矽烷基的位阻 (steric hindrance) 較小，故而可高效率地於粒子表面導入甲基。

另外，分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物亦可具有連結有兩個以上的碳的烷基鏈。此時，可將連結有兩個以上的碳原子的烷基鏈導入至粒子表面，故而藉由在粒子間產生的烷基鏈的排斥，可提高粒子在分散介質或樹脂中的分散性。另外，對碳的連結數目的上限並無特別限制，較佳為碳的連結數目為 30 個以下，以容易用於反應體系。

另外，分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物亦可具有反應性官能基。此時，可於粒子表面配置反應性官能基，該反應性官能基與樹脂材料形成化學鍵，從而可製作堅固的成型體。對反應性官能基並無特別限定，可列舉：羧基、甲醇基、胺基、環氧基、伸烷基、巰基、硫醚基、脲基、甲基丙烯鹽氧基、丙烯鹽氧基、羥基烷基等。

另外，亦可使用有機官能基不同的多種分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物來實施中孔化步驟。藉由將不同性質的有機官能基混合，可將多種有機官能基導入至微粒子表面，從而可對中孔二氧化矽微粒子的表面的反應性、在介質中的分散性等狀態進行控制。另外，藉由將親水性的有機官能基與疏水性的有機官能基導入至微粒子表面，可形成兩親媒性的微粒子，從而可將微粒子分散於多種介質中。

作為與分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合的酸，只要具有使分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物裂解的效果即可，例如可使用鹽酸、硝酸、硫酸、溴化氫等。為了使界面活性劑的萃取及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽

化合物的裂解迅速地進行，較佳為以使反應液的 pH 值未達 7 的方式來調整酸的調配。

將酸與分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合時，較佳為使用適宜的溶劑。藉由使用溶劑，可使混合變得容易進行。溶劑較佳為使用可適應親水性的二氧化矽奈米微粒子與疏水性的分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的具有兩親媒性的醇。例如，可列舉異丙醇。

對於酸與分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的反應，可直接使用進行界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成反應的液體，在該反應液中實施。此時，合成界面活性劑複合二氧化矽微粒子後無需自液體中分離回收粒子，可省去分離回收步驟，從而可使製造步驟簡略化。而且，可使用反應後的混合液來進行界面活性劑及含疏水部的添加物的去除、以及利用有機官能基的修飾，故而可使中孔二氧化矽微粒子的製造簡略化，顯著提高中孔二氧化矽微粒子的製造效率。另外，由於不包含分離回收步驟，故而可使界面活性劑複合二氧化矽微粒子不產生凝結地均勻地反應，可以微粒子的狀態獲得中孔二氧化矽微粒子。

中孔化步驟中，例如，將酸及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的反應液中，於 40℃～150℃左右的加溫條件下攪拌 1 分鐘～50 小時左右，藉此，酸自中孔中萃取出界面活性劑，且同時分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物利用酸產生裂解反應而活化，從而可以有機官能基修飾修飾中孔或粒子表面。

此處，界面活性劑複合二氧化矽微粒子於表面具有不會藉由酸及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的混合而矽烷化的官能基亦較佳。藉此，於中孔二氧化矽微粒子的表面殘留有不會矽烷化的官能基，故而可利用與該官能基反應的物質而容易地對中孔二氧化矽微粒子的表面進行處理，或者形成表面的化學鍵。因此，可簡單地進行使中孔二氧化矽微粒子與形成基質的樹脂的官能基反應而形成化學鍵等表面處理反應。此種官能基可藉由於界面活性劑複合二氧化矽粒子製作步驟中含於二氧化矽源中而形成。

不會藉由酸及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的混合而矽烷化的官能基並無特別限定，較佳為：胺基、環氧基、乙烯基、異氰酸酯基、巰基、硫醚基、脲基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、苯乙烯基等。

對藉由中孔化步驟而製作的中孔微粒子進行離心分離或過濾等加以回收後，分散於介質中，或者藉由透析等進行介質交換，藉此可將上述中孔微粒子用於分散液、組成物、成型物。

[中孔二氧化矽微粒子]

中孔二氧化矽微粒子是藉由上述方法而獲得的，該中孔二氧化矽微粒子的粒徑較佳為 100 nm 以下。藉此，可容易地將該中孔二氧化矽微粒子組入於要求低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的元件結構中，可將微粒子高密度地填充於元件內。若中孔二氧化矽微粒子的粒徑大於該範圍，則有可能無法高密度地填充。中孔

二氧化矽微粒子的粒徑的下限實質上為 10 nm。粒徑較佳為 20 nm~70 nm。

中孔的孔徑較佳為 3.5 nm 以上，並且，較佳為於中孔微粒子中，多個中孔等間隔地配置於粒子內部。藉此，將含有中孔微粒子的組成物成型時，由於中孔等間隔地配置，因此不會如中孔不均勻分布時般使成型物的強度降低，從而可將強度維持均勻，並且充分地提高空隙率。若中孔的孔徑未達 3.5 nm，則有可能無法獲得充分的空隙。另外，中孔的孔徑較佳為 10 nm 以下。若中孔的孔徑大於 10 nm，則空隙過大導致粒子容易碎裂，有可能使成型物的強度降低。中孔的孔徑較佳為 4.0 nm 以上。另外，所謂等間隔，並非必須完全地等間隔，只要進行穿透式電子顯微鏡（transmission electron microscope, TEM）觀察等時可認為實質上等間隔即可。

另外，中孔二氧化矽微粒子較佳為於粒子內部具備中孔，並且於粒子表面具備多個凸狀部。中孔是中孔二氧化矽微粒子通常具備的細孔，藉此二氧化矽微粒子形成為多孔質的粒子，獲得發揮出低折射率、低介電常數的材料，但藉由除中孔以外亦具備凸狀部，可進一步提高密度及提高空隙率。

凸狀部是粒子成分的一部分突出至粒子的表面而形成的，凸狀部的側面是由與形成中孔的壁面不同的壁面所形成。凸狀部的形狀可為前端呈面狀而突出的形狀，亦可為前端呈點狀或線狀而突出的形狀。亦即，只要於粒子表面

突出，則凸狀部的形狀可為圓柱狀、稜柱狀、圓錐狀、稜錐狀等適宜的形狀。為了提高空隙率，較佳為存在多個凸狀部。多個凸狀部可形成於粒子表面的一部分，亦可形成於整個表面，為了提高空隙率，較佳為形成於整個表面。更佳為凸狀部等間隔地形成於整個表面。其中，凸狀部的壁面與朝外部開口的中孔的壁面可為連續的壁面，亦可不連續。當為連續的壁面時，較佳為可根據壁面的傾斜角度變化、或者材料特性變化等來判別中孔與凸狀部的分界。藉此，可獲得僅藉由擴大中孔的孔徑、或者加深中孔的深度所無法獲得的空隙率提升效果。

凸狀部的突出高度較佳為 1 nm 以上、30 nm 以下。藉由使凸狀部的突出高度在該範圍內，可使凸狀部容易地產生纏結，將微粒子高密度地填充於成型物中後可使凸狀部彼此接觸，從而可提高空隙率，並且可提高強度。若凸狀部的突出高度未達 1 nm，則有可能凸狀部彼此難以產生纏結。另一方面，若凸狀部的突出高度超過 30 nm，則凸狀部有可能會結構性地妨礙微粒子的填充，導致無法高密度地填充微粒子。特別是若粒徑為 100 nm 以下的粒子的凸狀部的突出高度在上述範圍內，則可進一步提高空隙率及提高強度。

凸狀部較佳為由有機化合物、無機氧化物、金屬化合物或該些化合物的複合物形成，特佳為以矽氧化物作為主成分而形成。中孔二氧化矽微粒子是以二氧化矽（silica）（二氧化矽（silicon dioxide）等矽氧化物）作為主成分而

形成的，藉由使凸狀部主要包含矽氧化物，可使凸狀部的材質強度接近於中孔二氧化矽微粒子主體的材質強度。因此，於成型時中孔二氧化矽微粒子的凸狀部產生纏結時，亦可抑制凸狀部被壓碎等結構破壞，成型後容易表現出高空隙性。

如上所述，藉由使中孔微粒子形成為如下結構，即除了於微粒子內部具備中孔以外，還於微粒子的表面具備與中孔具有不同壁面的凸狀部的結構，將中孔二氧化矽微粒子與作為基質成分的樹脂高密度地複合時，亦即如將中孔二氧化矽微粒子高密度地配置於基質中時，中孔二氧化矽微粒子的凸狀部會與相鄰的中孔二氧化矽微粒子的凸狀部纏結。此時，凸狀部與凸狀部接觸，於粒子間新形成與中孔的空隙不同的微細的孔隙。另外，該凸狀部與凸狀部的接觸使多個中孔二氧化矽微粒子接觸而連結。藉此，可提高成型物的空隙率，並且可提高成型物的強度。

於中孔二氧化矽微粒子上形成凸狀部的方法並無特別限定，可藉由於上述的中孔二氧化矽微粒子的製造方法中，使用三甲苯（trimethylbenzene）等來作為含疏水部的添加物，而於粒子表面形成凸狀結構。推測其原因在於，三甲苯可容易地被導入至微胞中有效地使微胞體積增大，並且於水解反應時，粒子最外層的二氧化矽的中孔壁藉由擴大的微胞的作用而裂解，藉此於粒子表面形成凸狀結構。

中孔二氧化矽微粒子的表面經有機官能基修飾。該有機官能基是自上述中孔化步驟中使用的有機矽化合物導入

的官能基。藉由導入有機官能基，可提高分散性或反應性等功能性。

修飾中孔二氧化矽微粒子表面的有機官能基較佳為疏水性的官能基。藉此，可提高分散液中微粒子在溶劑中的分散性，而且可提高於組成物中微粒子在樹脂中的分散性。因此，可獲得粒子均勻分散的成型物。另外，當如上所述般中孔二氧化矽微粒子具備凸狀部時，粒子的表面積增大，故而若微粒子於分散液等中纏結，則容易使矽醇基（ Si-OH ）彼此縮合而產生凝結。但是，藉由使粒子表面疏水化，則可抑制凝結，提高分散性。另外，當高密度地成型時，於成型時或成型後，有可能水分滲入至中孔或孔隙中而導致品質變差。但是，疏水性的官能基可防止水分吸附，故而可獲得高品質的成型物。

對疏水性的官能基並無特別限定，可列舉：甲基、乙基、丁基等烷基，苯基等芳香族基等疏水性的有機基，或者該些有機基的氟取代物等。較佳為遍及中孔與凸狀部的表面而配置該些疏水性的官能基。藉此，可有效果地提高疏水性，從而提高分散性。

另外，修飾中孔二氧化矽微粒子表面的有機官能基亦可為親水性官能基。此時，可提高微粒子在高極性的溶劑中的分散性，從而可使用高極性的溶劑或樹脂獲得粒子均勻分散的組成物或成型物。

另外，中孔二氧化矽微粒子較佳為於粒子表面具備反應性官能基。所謂反應性官能基，主要指與基質形成樹脂

反應的官能基。藉此，形成基質的樹脂與微粒子的官能基可反應而形成化學鍵，提高成型物的強度。另外，當中孔二氧化矽微粒子具有凸狀部時，中孔二氧化矽微粒子的表面積因凸狀部而增大，較多的樹脂與該表面積增大的中孔二氧化矽微粒子接觸而形成化學鍵。因此，化學鍵的量增大，樹脂與粒子更堅固地密接，從而可提高強度。

對反應性官能基並無特別限定，較佳為：胺基、環氧基、乙烯基、異氰酸酯基、巰基、硫醚基、脲基、甲基丙烯酸酯基、丙烯酸酯基、苯乙烯基等。若使用該些官能基，則可與樹脂形成化學鍵而提高密接性。

[分散液、組成物、成型物]

中孔二氧化矽微粒子分散液可藉由將上述中孔二氧化矽微粒子分散於介質中來製備。該中孔二氧化矽微粒子分散液中，由於中孔二氧化矽微粒子均勻地分散於介質中，故而可容易地獲得具有低折射率（Low-n）、低介電常數（Low-k）、低熱導率的功能的添加劑。

分散液所使用的介質並無特別限定，例如可列舉：甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、正丁醇、異丁醇、第三丁醇等醇類；二乙醚、二丁醚、四氫呋喃（tetrahydrofuran）、二噁烷（dioxane）等醚類；己烷、庚烷、辛烷等脂肪族烴類；苯、甲苯（toluene）、二甲苯（xylene）等芳香族烴類；乙酸乙酯、乙酸丁酯等酯類；甲基乙基酮（methyl ethyl ketone）、甲基異丁基酮（methyl isobutyl ketone）等酮類；二氯甲烷（methylene chloride）、氯仿（chloroform）等鹵

化碳類等。

含中孔二氧化矽微粒子組成物可藉由於基質形成材料中含有上述中孔二氧化矽微粒子而獲得。該含中孔二氧化矽微粒子組成物可容易地製造具有低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的功能的成型物。而且，由於組成物中中孔二氧化矽微粒子在基質形成材料中均勻地分散，故而可製造均勻的成型物。

對於基質形成材料，只要不會損及中孔二氧化矽微粒子的分散性則無特別限定，例如可列舉：聚酯樹脂、丙烯酸系樹脂、胺基甲酸酯樹脂 (urethane resin)、氯乙烯樹脂 (vinyl chloride resin)、環氧樹脂、三聚氰胺樹脂 (melamine resin)、氟樹脂 (fluorine resin)、聚矽氧樹脂 (silicone resin)、丁醛樹脂、酚樹脂 (phenol resin)、乙酸乙烯酯樹脂；該些樹脂可為紫外線硬化樹脂、熱硬化樹脂、電子束硬化樹脂、乳液樹脂 (emulsion resin)、水溶性樹脂、親水性樹脂、該些樹脂的混合物、該些樹脂的共聚物或改質物、以及烷氧基矽烷等的水解性有機矽化合物等。亦可根據需要於組成物中加入添加物。添加物可列舉：發光材料、導電材料、顯色材料、螢光材料、黏度調整材料、樹脂硬化劑、樹脂硬化促進劑等。

含中孔二氧化矽微粒子成型物可使用上述含中孔二氧化矽微粒子組成物進行成型而獲得。藉此，可獲得具有低折射率 (Low-n)、低介電常數 (Low-k)、低熱導率的功能的成型物。另外，由於中孔二氧化矽微粒子的分散性良好，

故而成型物中的中孔二氧化矽微粒子在基質中均勻地配置，可獲得性能不均較少的成型物。

製作含有中孔二氧化矽微粒子的成型物的方法只要可將含有中孔二氧化矽微粒子的組成物加工成任意形狀即可，對加工方法並無特別限定，可採用：印刷或塗佈、擠出成型、真空成型、射出成型、積層成型、轉移成型、發泡成型等。

另外，塗佈基板的表面時，對塗佈方法並無特別限定，例如可選擇以下各種通常的塗覆方法：刷塗、噴塗 (spray coating)、浸塗 (dipping, dip coating)、輥塗 (roll coating)、淋塗 (flow coating)、簾塗 (curtain coating)、刮刀塗佈 (knife coating)、旋塗 (spin coating)、板塗 (table coating)、片材塗佈 (sheet coating)、單片塗佈、模塗 (die coating)、棒塗 (bar coating)、刮片塗佈 (doctor blade coating) 等。另外，為了將固體加工成任意的形狀，可使用切削或蝕刻 (etching) 等方法。

成型物中，較佳為中孔二氧化矽微粒子與基質形成材料具有化學鍵。藉此，可使中孔二氧化矽微粒子與樹脂更堅固地密接。此外，若中孔二氧化矽微粒子上具有凸狀部，則可於表面積增大的微粒子的表面形成大量化學鍵而將中孔二氧化矽配置於基質中，因而可使中孔二氧化矽微粒子與樹脂更堅固地密接，可進一步提高成型物的強度。

對於化學鍵的結構，只要是如使中孔二氧化矽微粒子與基質形成材料在兩者的表面化學鍵結的官能基則無特別

限定，若其中一者具有胺基，則另一者較佳為具有異氰酸酯基、環氧基、乙烯基、羰基、Si-H 基等，此時可容易地產生化學反應形成化學鍵。

另外，當中孔二氧化矽微粒子具有凸狀部時，較佳為於成型物中，中孔二氧化矽微粒子連結。亦即，較佳為如多個中孔二氧化矽微粒子以表面接觸而連結的狀態。藉此，可於粒子間藉由凸狀部的纏結而形成孔隙，並且可維持強度，因而可提高成型物的空隙率。此時，若成型物中含有 10 vol%（體積百分比）以上的微粒子，則凸狀部容易纏結，故而較佳。但是，若微粒子所占的體積率超過 80 vol%，則基質形成材料的量變得極少，因此有可能難以藉由樹脂與微粒子的鍵結使樹脂與微粒子充分地複合，導致成型物的強度下降，故而微粒子的體積率較佳為 80 vol% 以下。

中孔二氧化矽微粒子較佳為經由化學鍵而連結。藉此，可藉由凸狀部的纏結而於粒子間形成孔隙，並且可藉由化學鍵而提高成型物的強度，故而可獲得同時實現空隙率提高與強度提高的成型物。此時，可藉由微粒子表面的官能基的化學反應而形成化學鍵。對官能基的種類或反應的種類並無特別限定，可使用如上所述的反應性官能基。

成型物較佳為表現出高透明性、低介電性、低折射性、低熱導性中的任一種或兩種以上的功能。藉由使成型物表現出高透明性、低介電性、低折射性、低熱導性，可製造高品質的元件。另外，若表現出該些性能中的兩種以上，

則可獲得具有多功能性的成型物，故而可製造要求多功能性的元件。亦即，含中孔二氧化矽微粒子成型物的均勻性優異，且具有高透明性，低折射率（Low-n）、低介電常數（Low-k）、低熱導率的性能。

[實例]

以下，藉由實例來具體地說明本發明。

[中孔二氧化矽微粒子的製作]

（實例 1）

界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成：

於安裝有冷卻管、攪拌機、溫度計的可分離式燒瓶（separable flask）中，將 H_2O ：120 g、25% NH_3 水溶液：5.4 g、乙二醇：20 g、十六烷基三甲基溴化銨（CTAB）：1.2 g、1,3,5-三異丙基苯（TIPB）：13.43 g（物質質量比 TIPB/CTAB = 20）、四乙氧基矽烷（tetraethoxysilane，TEOS）：1.29 g、 γ -胺基丙基三乙氧基矽烷：0.23 g 混合，於 60℃ 下攪拌 4 小時，製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子。

中孔化步驟及分散液的製作：

將異丙醇：30 g、5 N-HCl：60 g、六甲基二矽氧烷：26 g 混合，於 72℃ 下加以攪拌，並添加上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成反應液，攪拌、回流 30 分鐘。藉由以上的操作，自界面活性劑複合二氧化矽微粒子中萃取出界面活性劑及含疏水部的添加物，獲得粒子表面三甲基矽烷化的中孔二氧化矽微粒子。

對三甲基矽烷化後的溶液以 20,000 rpm 離心分離 20 分鐘後，去除液體。於沈澱的固相中添加乙醇，使用振盪機於乙醇中對粒子進行振盪，藉此清洗中孔二氧化矽微粒子。以 20,000 rpm 離心分離 20 分鐘，去除液體後獲得中孔二氧化矽微粒子。

於所製作的中孔二氧化矽微粒子 0.2 g 中添加異丙醇 3.8 g，使用振盪機進行再次分散，獲得分散於異丙醇中的中孔二氧化矽微粒子。根據 TEM 觀察，中孔二氧化矽微粒子的粒徑約為 60 nm。確認該分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 2)

除了將 1,3,5-三異丙基苯 (TIPB): 13.43 g (物質質量比 TIPB/CTAB=20) 更換為 1,3,5-三甲苯 (TMB): 1.58 g (物質質量比 TMB/CTAB=4) 以外，於與實例 1 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子，萃取出模板 (界面活性劑及含疏水部的添加物)，獲得表面經三甲基矽烷化的中孔二氧化矽微粒子。繼而，於與實例 1 相同的條件下清洗粒子，然後分散於異丙醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。根據 TEM 觀察，中孔二氧化矽微粒子的粒徑約為 50 nm。

(實例 3)

除了不混合乙二醇以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板 (界面活性劑及含疏水部的添加物)，獲得粒子表面三甲

基矽烷化的中孔二氧化矽微粒子。繼而，於與實例 1 相同的條件下清洗粒子，然後分散於異丙醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。根據 TEM 觀察，中孔二氧化矽微粒子的粒徑約為 60 nm。

(實例 4)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用六乙基二矽氧烷 39.3 g 以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，除了將異丙醇更換為 1-丁醇以外，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於 1-丁醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 5)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用 1,3-正辛基四甲基二矽氧烷：57.4 g 以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，除了將異丙醇更換為 1-丁醇以外，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於 1-丁醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 6)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用 1,3-雙(3-羧基丙基)四甲基二矽氧烷：24.5 g 與六甲基二矽氧烷：13 g 的混合物以外，於與實例 2 相同的條件下製

作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於異丙醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 7)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用雙(十三氟-1,1,2,2-四氫辛基)四甲基二矽氧烷：66.2 g 與六甲基二矽氧烷：13 g 的混合物以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於異丙醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 8)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用 1,3-二乙基四甲基二矽氧烷：29.8 g 以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於 1-丁醇中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

(實例 9)

除了於中孔化步驟中代替六甲基二矽氧烷：26 g 而使用 1,3-二苯基四甲基二矽氧烷：45.9 g 以外，於與實例 2

相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板，獲得中孔二氧化矽微粒子。繼而，除了將異丙醇更換為鄰二甲苯（ortho-xylene）以外，於與實例 1 相同的條件下清洗中孔二氧化矽微粒子，然後分散於鄰二甲苯中，結果確認分散液經過三個月後亦保持分散性而不沈降。

（比較例 1）

除了於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成中不混合 1,3,5-三甲苯以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液。繼而，除了不添加六甲基二矽氧烷以外，於與實例 2 相同的條件下萃取出模板，然後清洗粒子，獲得中孔二氧化矽微粒子。將該中孔二氧化矽微粒子分散於異丙醇中。確認該分散液經過三天後於液體底面觀察到沈降物，粒子產生凝結，分散性降低。另外，該中孔二氧化矽微粒子的粒徑約為 80 nm。

（比較例 2）

除了於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的合成中不混合 1,3,5-三甲苯以外，於與實例 2 相同的條件下製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子合成液，然後萃取出模板後，清洗粒子，獲得表面三甲基矽烷化的中孔二氧化矽微粒子。將該中孔二氧化矽微粒子分散於異丙醇中。中孔二氧化矽微粒子的粒徑約為 80 nm。

[中孔二氧化矽微粒子結構的比較]

於 150℃ 下，對實例 1～實例 9、比較例 1 及比較例 2

的中孔二氧化矽微粒子進行 2 小時加熱處理，獲得乾燥粉末，實施氮吸附測定、X 射線繞射測定及傅立葉轉換紅外光譜（Fourier transform infrared spectroscopy, FT-IR）測定。

（氮吸附測定）

使用 Autosorb-3（Quantachrome 公司製造）來測量等溫吸附線。利用 BJH 分析法獲得細孔徑分布。將實例 1～實例 3、比較例 1 及比較例 2 的結果示於圖 5。將根據曲線的分布所求出的細孔徑示於表 1。

實例 1 的粒子的細孔徑的峰值約為 3.6 nm，實例 2 及實例 3 的粒子的細孔徑的峰值約為 5 nm。另一方面，比較例 1 及比較例 2 的粒子的細孔徑的峰值約為 2.5 nm。因此，確認實例的粒子的細孔徑與比較例相比擴大。關於細孔容積，與比較例 1 及比較例 2 的中孔二氧化矽微粒子的總細孔容積相比，實例 1～實例 3 的中孔二氧化矽微粒子的總細孔容積並未與細孔徑擴大相應地增大，確認粒子的空隙率提高。

另外，於實例 2、實例 3 中，細孔徑分布的波峰形狀的左右的對稱性較低，特別是波峰的右側部分（細孔徑較大側）的細孔容積大於波峰的左側部分（細孔徑較小側）。形成為如此的非均勻分布（左右對稱）的細孔分布，表示存在多種細孔，可確認於中孔二氧化矽微粒子的乾燥粉末中，存在除了粒子內部的均勻中孔以外的細孔。該所謂中孔以外的細孔，是形成於中孔二氧化矽微粒子間的細孔，

是藉由形成於微粒子表面的凸狀部纏結而產生的。另外，
實例 4～實例 9 的結果與實例 2 大致相同。

表 1

	細孔徑 (nm)	細孔容積 (cc/g)
實例 1	3.6	1.5
實例 2	5.0	1.9
實例 3	4.9	1.9
比較例 1	2.5	1.2
比較例 2	2.6	1.3

(X 射線繞射測定)

使用 AXS M03X-HF (Bruker 公司製造)，對實例及比較例的各中孔二氧化矽微粒子進行 X 射線繞射測定。圖 6 為實例 1、實例 2 以及比較例 2 的中孔二氧化矽微粒子的測定結果。於實例 1～實例 9、比較例 1 及比較例 2 的中孔二氧化矽微粒子中，均確認到緣於中孔的規則結構的波峰。而且，與比較例 1 及比較例 2 相比，實例 1～實例 9 中波峰朝低角度側偏移，確認面間隔隨著中孔擴大而增大。另外，實例 4～實例 9 的測定結果與實例 2 大致相同。

(TEM 觀察)

使用 JEM 2000EXII (JEOL 公司製造)，對實例 2 及比較例 2 的中孔二氧化矽微粒子的微細結構進行 TEM 觀察。實例 2 的 TEM 像示於圖 1，比較例 2 的 TEM 像示於圖 3。於實例 2 及比較例 2 中均確認到二維六方結構 (two-dimensional hexagonal construction)，且確認實例 2 的中孔 B 與比較例 2 相比增大。另外，於實例 2 的 TEM 像中，確認到於中孔二氧化矽微粒子的表面存在形成為凸

狀結構的凸狀部 A。

圖 2 (a) 及圖 2 (b) 是實例 2 中所觀測的中孔二氧化矽微粒子的示意圖。圖 2 (a) 表示自中孔的開口方向所觀察到的粒子狀態，相當於圖 1 的粒子 P1。圖 2 (b) 是自與中孔的開口方向垂直的方向觀察粒子的圖，表示將圖 2 (a) 以縱方向為軸朝橫方向旋轉 90°後的狀態，相當於圖 1 的粒子 P2。因使用的是穿透式顯微鏡，故亦可觀察到粒子內部的中孔結構，獲得如圖示的示意圖。該示意圖中，中孔 B 貫通粒子內，凸狀部 A 自粒子的表面朝向外部突出。另外，中孔 B 規則地排列於粒子內。實例 2 的中孔二氧化矽微粒子的中孔 B 由於是以圓柱狀貫通粒子，故而於圖 1 的 TEM 像中，根據粒子內的中孔 B 的開口方向不同，粒子的圖像看上去亦不同。另外，圖 4 (a) 及圖 4 (b) 中，表示圖 3 的粒子 Q1 及 Q2 的示意圖。

於實例 2 中，確認到該凸狀部的突出高度約為 5 nm，且凸狀部為面狀或線狀，厚度約為 2 nm。因此，若多個中孔二氧化矽微粒子重合，則凸狀部纏結，可確認到形成了與中孔不同的新的細孔。

(FT-IR 測定)

使用 FT/IR-670 Plus (日本分光公司製造) 測定裝置，來測定實例 1~實例 9 的紅外線吸收光譜，確認粒子表面的官能基。圖 7~圖 12 表示實例 2 及實例 4~實例 9 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。為了能夠與導入有三甲基矽烷基的實例 2 進行比較，而將各光譜與

實例 2 並列表示，各光譜中記載了特徵性的吸收。另外，實例 1、實例 3 獲得的光譜與實例 2 大致相同。如光譜所示，實例 2 中確認到三甲基矽烷基，實例 4 中確認到乙基，實例 5 中確認到 CH_2 的波峰增大，實例 6 中確認到 $\text{C}=\text{O}$ 增大，實例 7 中確認到 $\text{C}-\text{F}$ ，實例 8 中確認到乙烯基，實例 9 中確認到苯基，如此，於分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的有機官能基確認到特徵性的吸收光譜。藉此，利用分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物，確認到形成有表面具有各種有機官能基的中孔二氧化矽微粒子。

[抗反射膜的製作]

(實例 A1)

將實例 2 中製作的中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液與二氧化矽基質前驅物混合而複合，並於玻璃基板上成膜，藉此製作抗反射膜。

二氧化矽基質前驅物使用矽酸甲酯寡聚物 (MS51 (三菱化學公司製造))。於該溶液中，以中孔二氧化矽微粒子/二氧化矽 (縮合物換算) 以固體成分基準計為 30/70 的重量比的方式，添加上述中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液，然後以總固體成分達到 2.3 wt% 的方式，用異丙醇與微量的丁基賽路蘇 (butyl cellosolve) 及乙酸丁酯加以稀釋，獲得被膜形成用塗佈液。

使用棒塗機，將該被膜形成用塗佈液塗佈於最小反射率為 4.34 的玻璃基板上，於 120°C 下乾燥 5 分鐘，藉此形成厚度約為 100 nm 的被膜 (抗反射膜)。

(實例 A2)

使用實例 7 中製作的中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液，於與實例 A1 的抗反射膜的製作相同的條件下與二氧化矽基質前驅物混合而複合，並於玻璃基板上成膜，藉此製作被膜（抗反射膜）。

(比較例 A1)

使用比較例 1 中製作的中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液，於與實例 A1 的抗反射膜的製作相同的條件下與二氧化矽基質前驅物複合，並於玻璃基板上成膜，藉此製作被膜。

(比較例 A2)

使用比較例 2 中製作的中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液，於與實例 A1 的抗反射膜的製作相同的條件下與二氧化矽基質前驅物複合，並於玻璃基板上成膜，藉此製作被膜。

(比較例 A3)

於實例 A1 的抗反射膜的製作中，代替中孔二氧化矽微粒子的異丙醇分散液而使用中空二氧化矽的異丙醇分散溶膠（固體成分為 20%，平均一次粒徑約為 60 nm，外圍厚度約為 10 nm，觸媒化成工業公司製造），於與實例 A1 的抗反射膜的製作相同的條件下與二氧化矽基質前驅物複合，並於玻璃基板上成膜，藉此製作被膜。

[抗反射膜的比較]

對實例 A1 以及比較例 A1～比較例 A3 中獲得的被膜

(複合薄膜) 進行霧度、反射率以及機械強度測定，評價被膜的性能。圖 13 是表示實例 A1、比較例 A2、比較例 A3 的結果的圖。另外，亦將未調配有中孔二氧化矽微粒子的被膜、玻璃基板的反射率的結果一併表示以作比較。此外，將其他結果歸納於表 2。

(5°相對反射率)

使用分光光度計 (日立製作所製造的「U-4100」)，測定波長 380 nm~800 nm 下的反射率，將其中的極小值作為最低反射率。

(霧度)

使用霧度計 (日本電色工業公司製造的「NDH2000」) 進行測定。

(機械強度)

使用鋼絲絨 (steel wool) #0000，於 250 g 的負載下對抗反射膜的表面往返摩擦 10 次，將抗反射膜上產生的擦痕的條數為 51 條以上的情況評價為「×」，11 條~50 條的情況評價為「△」，0 條~10 條的情況評價為「○」。

表 2

	霧度	最低反射率 (%)	機械強度
實例 A1	0.47	1.65	○
實例 A2	0.35	1.55	○
比較例 A1	1.96	2.18	×
比較例 A2	0.69	2.26	○
比較例 A3	0.72	1.91	×

根據圖 13 可確認，實例 A1 及實例 A2 遍及整個可見光區域反射率均較低，低反射性能優異。另外，如表 2 所示，實例 A1 及實例 A2 與以相同重量比率而調配有中孔二氧化矽微粒子的比較例 A1～比較例 A3 相比，霧度及反射率最小，表面強度更高。該結果表示，藉由調配中孔二氧化矽微粒子，抗反射膜中的空隙量增加，降低了折射率。而且，儘管空隙量較多但未見機械強度變差是因為粒子間凸狀部的纏結。另外，實例 A1 於霧度方面顯示出最優異的效果是因為，於中孔二氧化矽微粒子的表面充分實施了三甲基矽烷化而使分散性提高，分散液中及薄膜中的凝結得到抑制，中孔二氧化矽微粒子在被膜內分散配置。實例 A2 具有與實例 A1 同等的霧度是因為，由於粒子表面存在具有十三氟辛基的矽烷基，故而分散性提高，分散液中及薄膜中的凝結得到抑制，中孔二氧化矽微粒子在被膜內分散配置。實例 A2 的反射率及霧度稍低於實例 A1 的反射率的原因在於，十三氟辛基使塗膜中的折射率降低。

雖然本發明已以較佳實施例揭露如上，然其並非用以限定本發明，任何熟習此技藝者，在不脫離本發明之精神和範圍內，當可作些許之更動與潤飾，因此本發明之保護範圍當視後附之申請專利範圍所界定者為準。

【圖式簡單說明】

圖 1 是表示本發明的中孔二氧化矽微粒子的外觀的一例，且是表示實例 2 中獲得的中孔二氧化矽微粒子的 TEM 像的照片。

圖 2 (a) 及圖 2 (b) 是以示意方式表示本發明的中孔二氧化矽微粒子的一例的圖，且是實例 2 中獲得的中孔二氧化矽微粒子的示意圖。

圖 3 是表示比較例 2 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的 TEM 像的照片。

圖 4 (a) 及圖 4 (b) 是比較例 2 中所觀測到的中孔二氧化矽微粒子的示意圖。

圖 5 是表示實例 1～實例 3 以及比較例 1 及比較例 2 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的細孔徑分布的曲線圖。

圖 6 是表示實例 1、實例 2 以及比較例 2 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的 X 射線繞射測定結果的圖。

圖 7 是實例 2、實例 4 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 8 是實例 2、實例 5 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 9 是實例 2、實例 6 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 10 是實例 2、實例 7 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 11 是實例 2、實例 8 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 12 是實例 2、實例 9 中所獲得的中孔二氧化矽微粒子的紅外線吸收光譜。

圖 13 是表示實例 A1 及實例 A2、以及比較例 A2 及比

較例 A3 中所獲得的抗反射膜的反射特性的圖。

【主要元件符號說明】

A：凸狀部

B：中孔

P1、P2、Q1、Q2：粒子

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號： 99115926 CIB 1/8 (2006.01)

※申請日期： 99. 5. 19 ※IPC 分類： CIB 1/8 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文) B1J 3/6 (2006.01)

微孔二氧化矽微粒子的製造方法、微孔二氧化矽微粒
子、微孔二氧化矽微粒子分散液、含微孔二氧化矽微
粒子組成物以及含微孔二氧化矽微粒子成型物

METHOD OF FACRICATING MESOPOROUS SILICA
NANO PARTICLE, MESOPOROUS SILICA NANO
PARTICLE, DISPERSION LIQUID OF MESOPOROUS
SILICA NANO PARTICLE, COMPOSITION OF
MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, AND
MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE MOLDING

二、中文發明摘要：

提供可實現低反射率、低介電常數、低熱導率等功能
與提高成型物強度的中孔二氧化矽微粒子。藉由包含界面
活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟及中孔化步驟來製造
中孔二氧化矽微粒子。二氧化矽微粒子製作步驟為混合界
面活性劑、水、鹼、具備使微胞體積增大的疏水部的含疏
水部添加物與二氧化矽源製作界面活性劑複合二氧化矽微
粒子。中孔化步驟為於其中混合酸及有機矽化合物，去除
包含於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的界面活性劑及含

疏水部添加物，對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。
中孔二氧化矽微粒子於粒子內有中孔，表面有機官能基修飾。

三、英文發明摘要：

A mesoporous silica nano particle realizing properties of low reflectivity (low-n), low dielectric constant (low-k), low heat conductivity, and enhancing strength of molding is provided. The mesoporous silica nano particle is fabricated by including a step of fabricating a surface-active agent compounding silica nano particle and a step of meso-perforation. The step of fabricating silica nano particle is fabricating a surface-active agent compounding silica nano particle by mixing a surface-active agent, water, an alkali, a hydrophobic portion containing additive into a silica source, wherein the hydrophobic portion containing additive has a hydrophobic portion to enlarge the micelle volume. The step of meso-perforation is removing the surface-active agent and the hydrophobic portion containing additive contained in the surface-active agent compounding silica nano particle by mixing an acid and an organosilicon compound, and then giving organic functional group on the surface of the silica nano particle. The mesoporous silica nano particle has mesoporous inside the particle, and is modified by an organic functional group on its surface.

七、申請專利範圍：

1. 一種中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其特徵包括：

界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟，將界面活性劑、水、鹼、具備使由上述界面活性劑所形成的微胞的體積增大的疏水部的含疏水部的添加物與二氧化矽源混合，來製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子；以及

中孔化步驟，藉由將上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子、酸及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合，而將包含於上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的上述界面活性劑及上述含疏水部的添加物去除，並對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。

2. 如申請專利範圍第1項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述中孔化步驟包含：

於含有由上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟所生成的上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的反應液中，混合酸、及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

3. 如申請專利範圍第1項或第2項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的分子中的矽氧烷鍵的數目為一個。

4. 如申請專利範圍第1項至第3項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有疏水性官能基，並且藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予疏水性官能基。

5. 如申請專利範圍第4項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中包含六甲基二矽氧烷來作為上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

6. 如申請專利範圍第4項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有連結有兩個以上的碳的烷基鏈。

7. 如申請專利範圍第1項至第3項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有親水性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予親水基。

8. 如申請專利範圍第1項至第3項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有反應性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予反應性官能基。

9. 一種中孔二氧化矽微粒子，其特徵在於：其是藉由如申請專利範圍第1項至第8項中任一項所述之方法而獲得。

10. 一種中孔二氧化矽微粒子，其特徵包括：

粒徑為 100 nm 以下，於粒子內部等間隔地配置有孔徑為 3.5 nm 以上的多個中孔，且表面經有機官能基修飾。

11. 如申請專利範圍第10項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中於中孔二氧化矽微粒子的粒子表面具備多個凸狀部。

12. 如申請專利範圍第11項所述之中孔二氧化矽微粒

子，其中上述凸狀部是以矽氧化物為主成分而構成。

13. 如申請專利範圍第 11 項或第 12 項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中上述凸狀部的突出高度為 1 nm 以上、30 nm 以下。

14. 一種中孔二氧化矽微粒子分散液，其特徵在於：其是將如申請專利範圍第 9 項至第 13 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子分散於介質中而成。

15. 一種含中孔二氧化矽微粒子組成物，其特徵在於：其是於基質形成材料中含有如申請專利範圍第 9 項至第 13 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子而成。

16. 一種含中孔二氧化矽微粒子成型物，其特徵在於：其是將如申請專利範圍第 15 項所述之含中孔二氧化矽微粒子組成物成型而成。

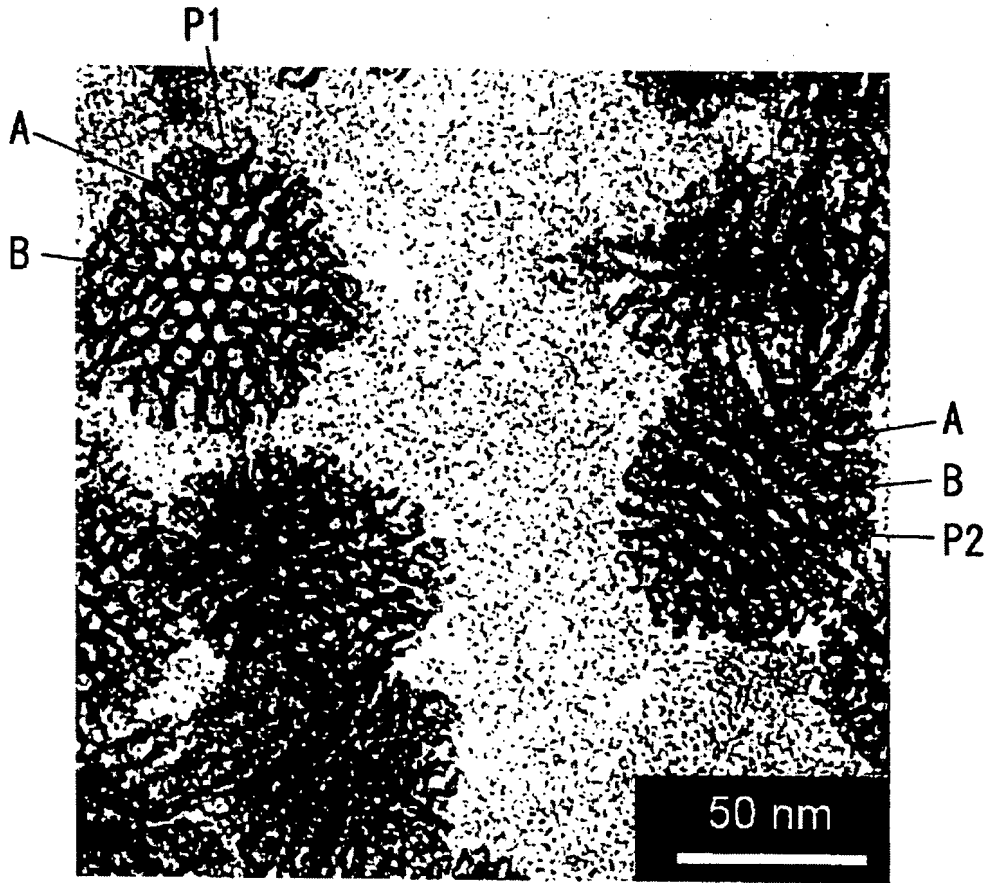


圖 1

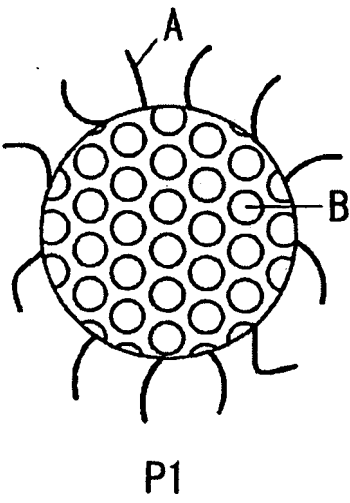


圖 2(a)

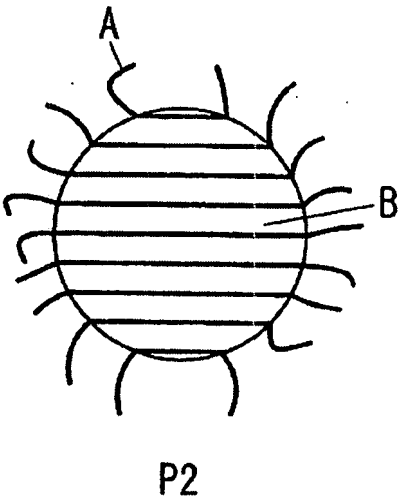


圖 2(b)

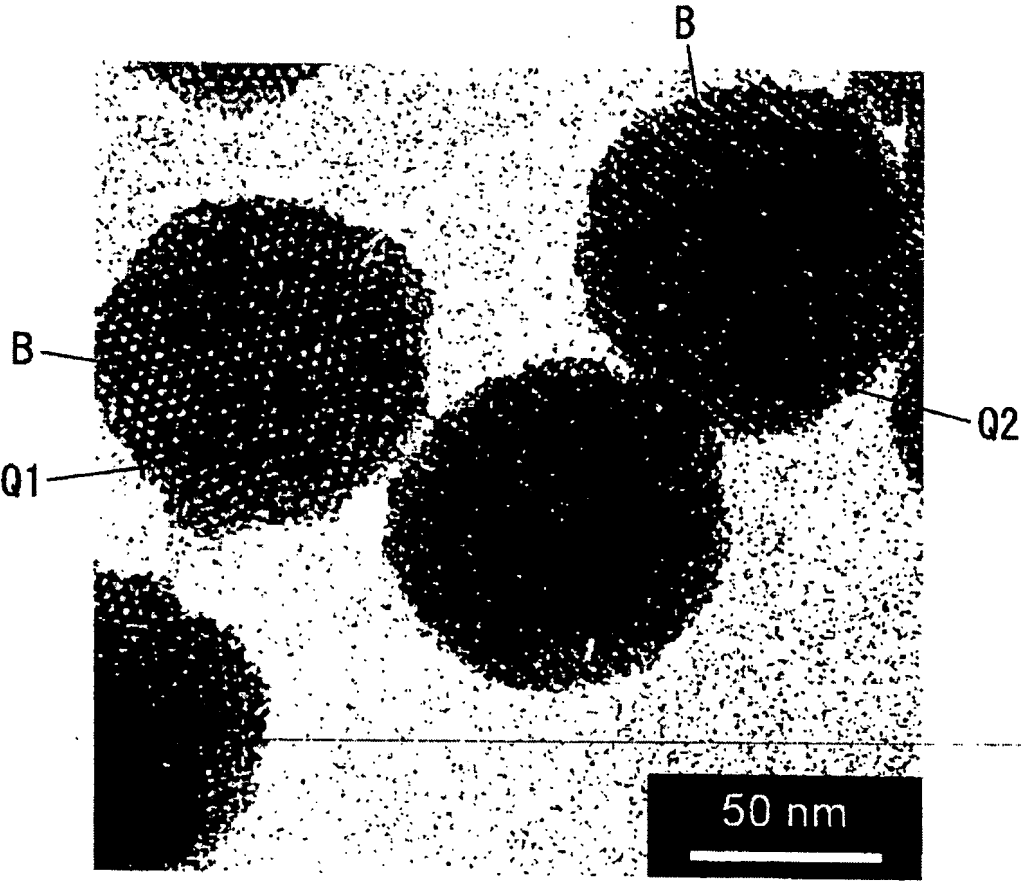
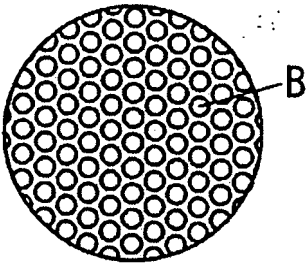
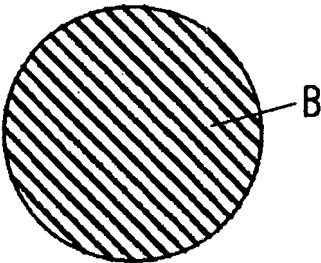


圖 3



Q1

圖 4(a)



Q2

圖 4(b)

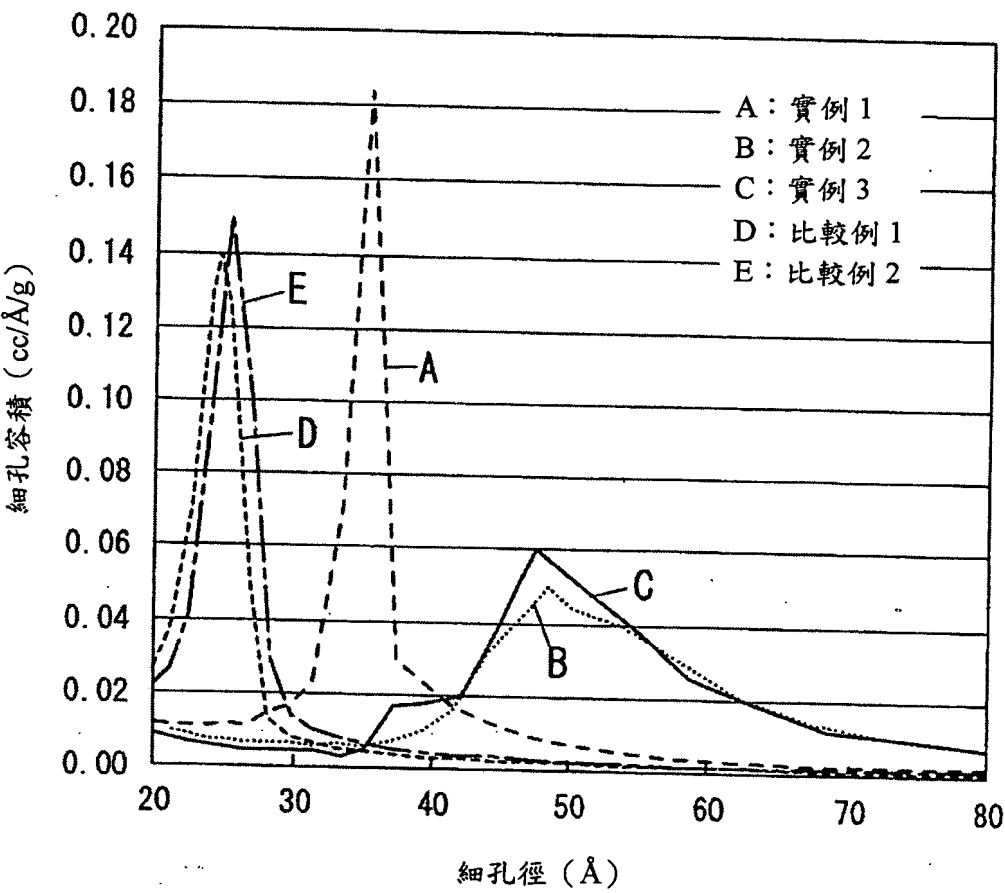


圖 5

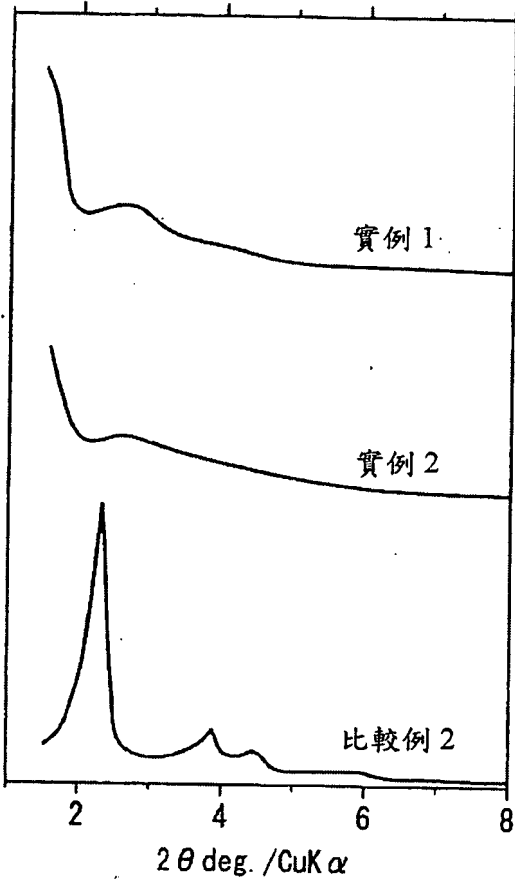


圖 6

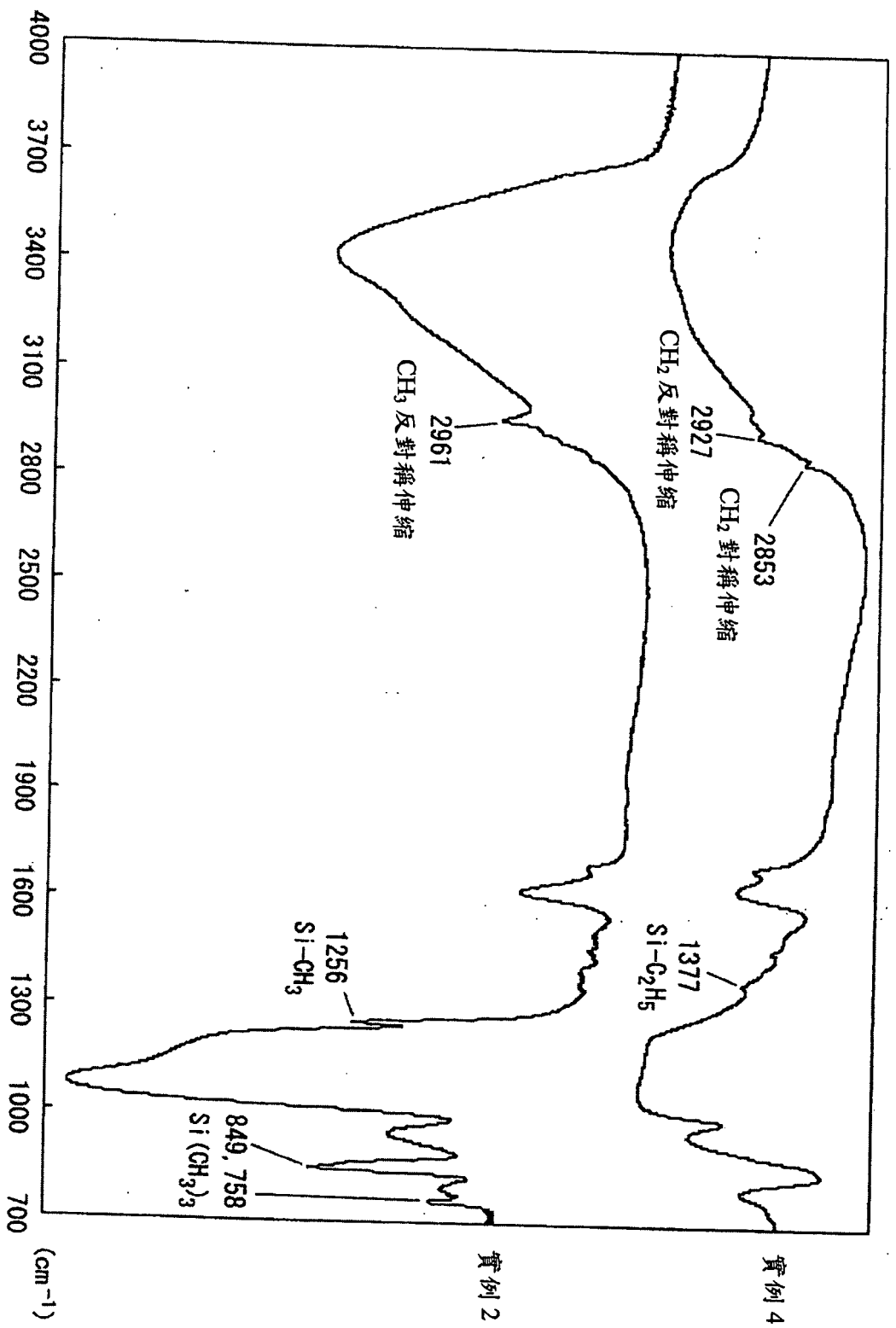


圖 7

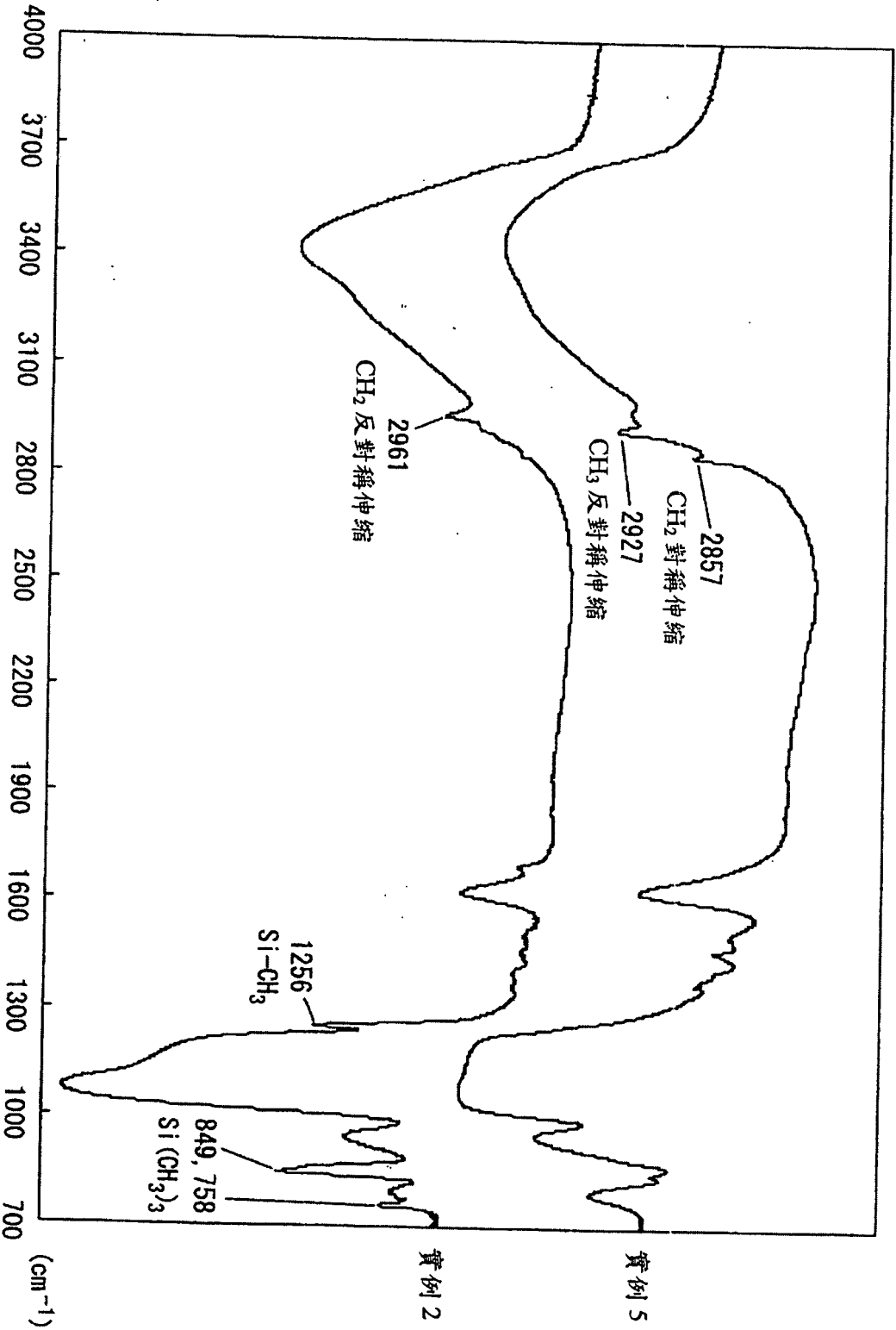


圖 8

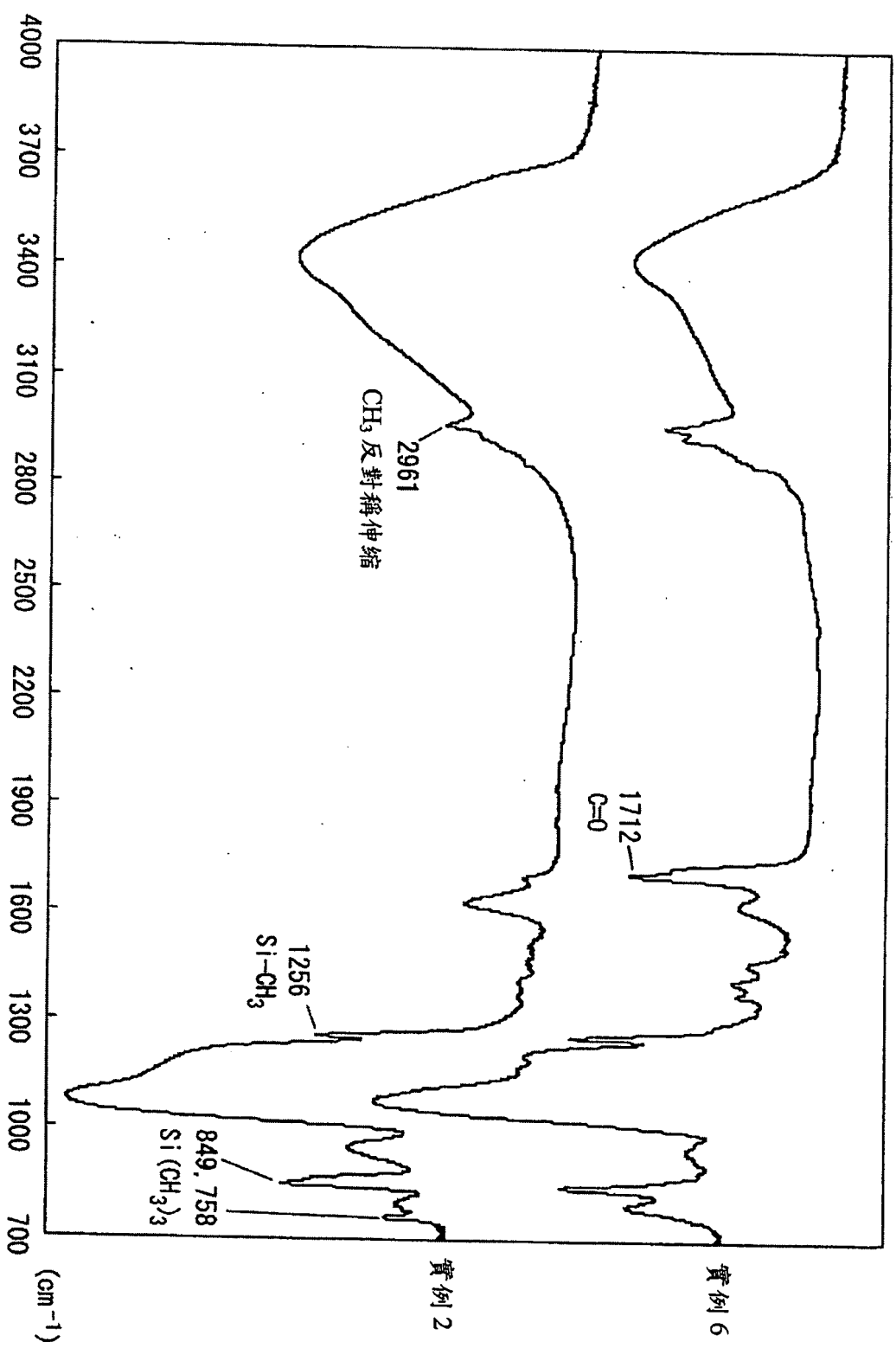


圖 9

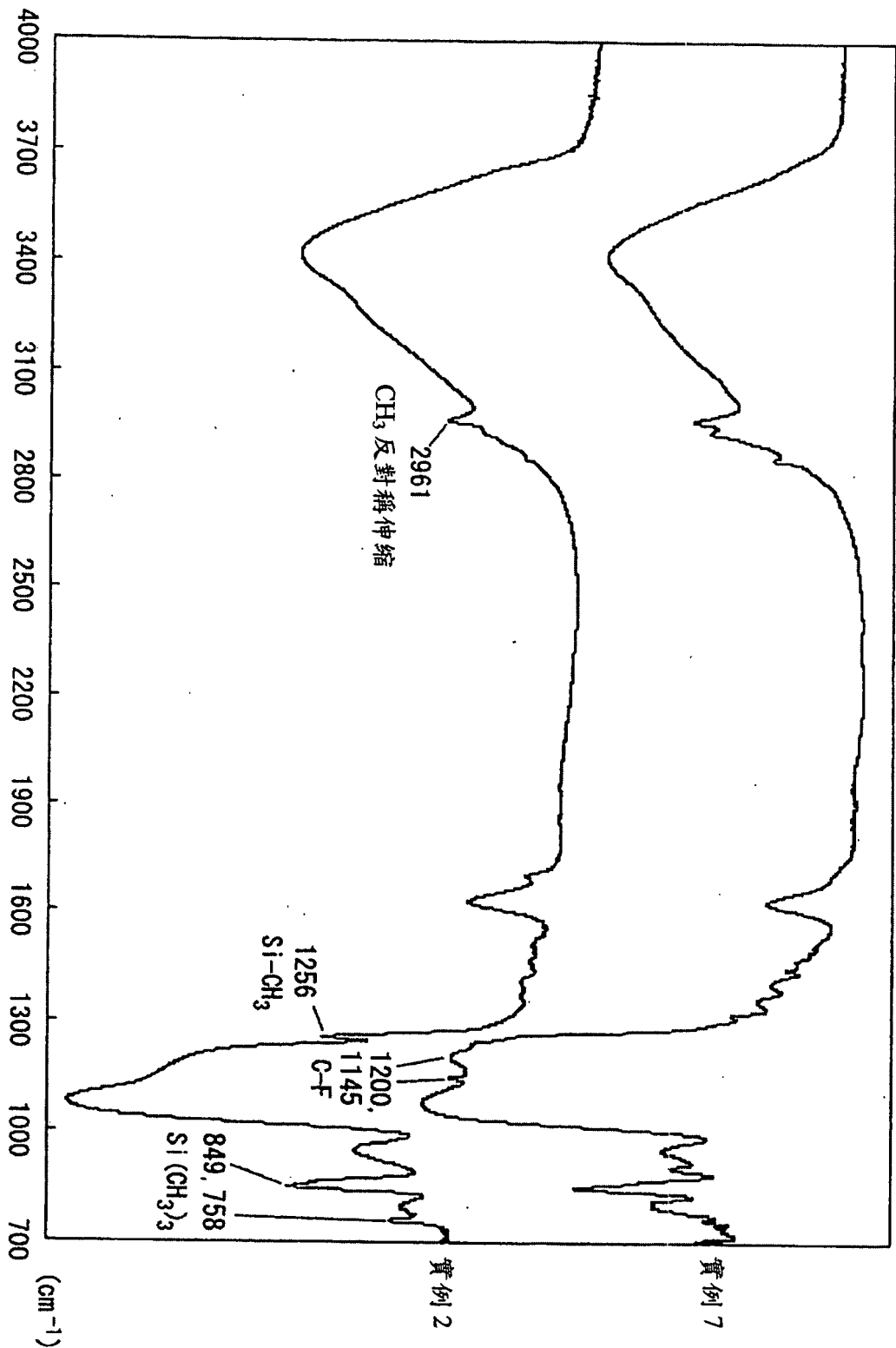


圖 10

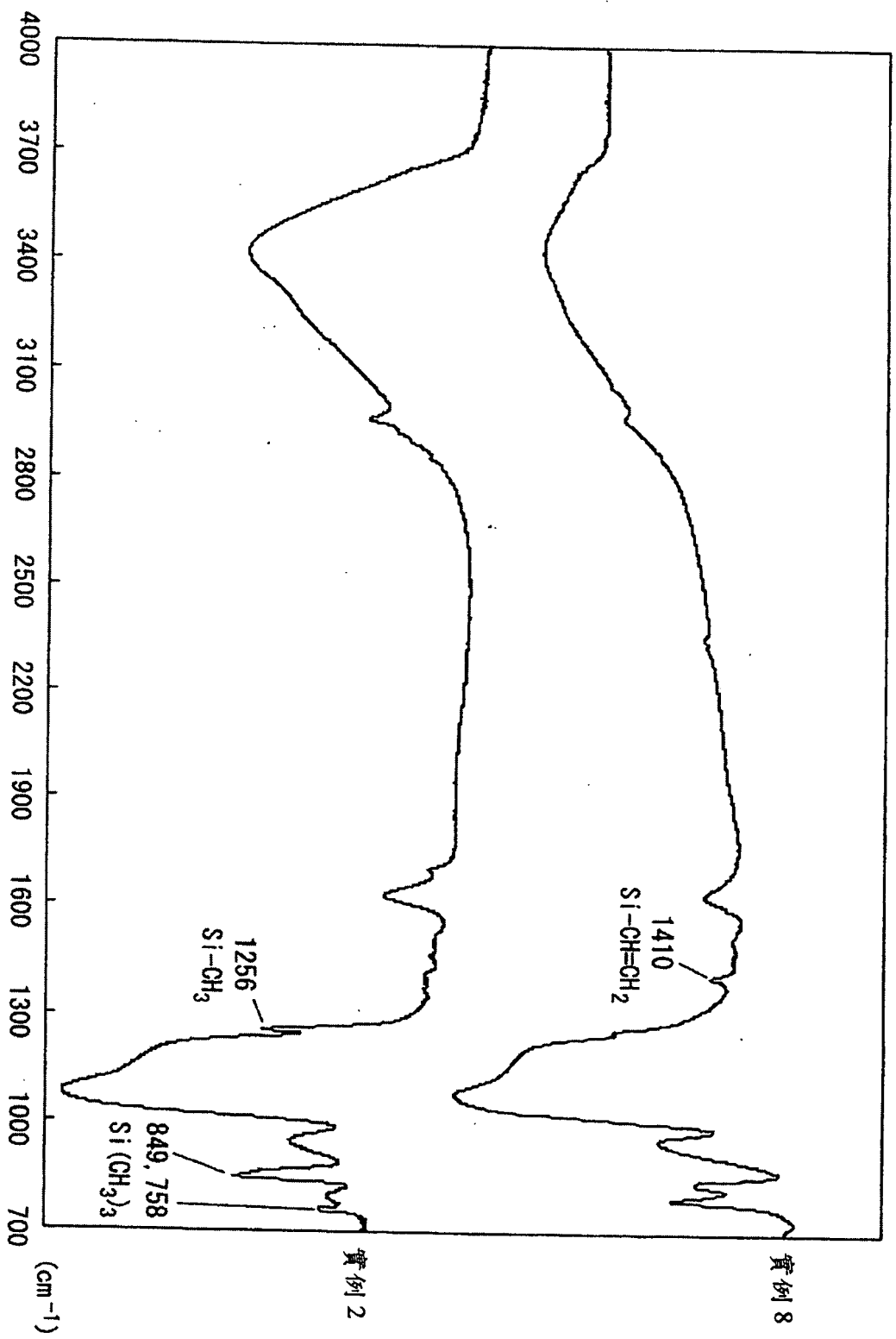


圖 11

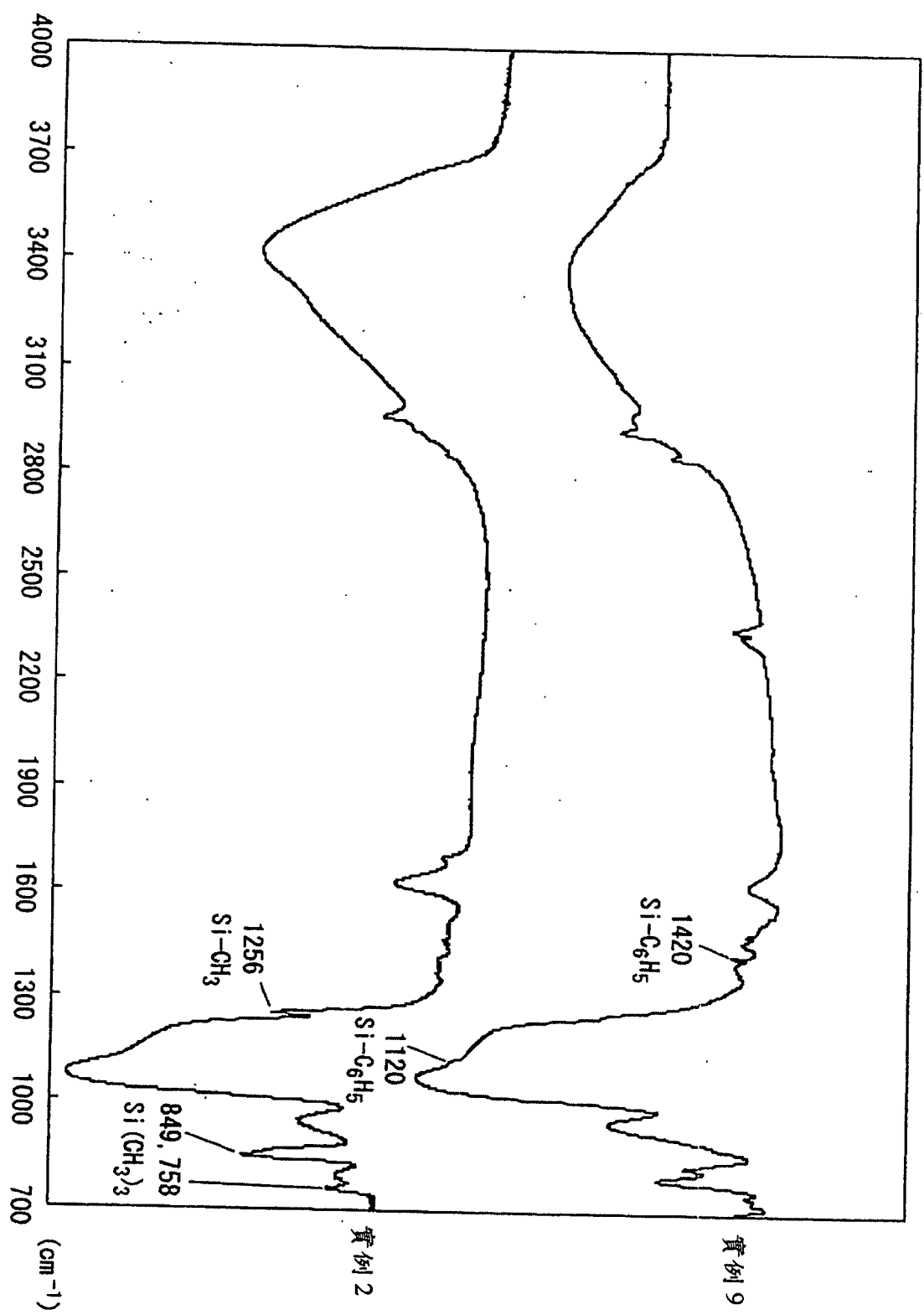


圖 12

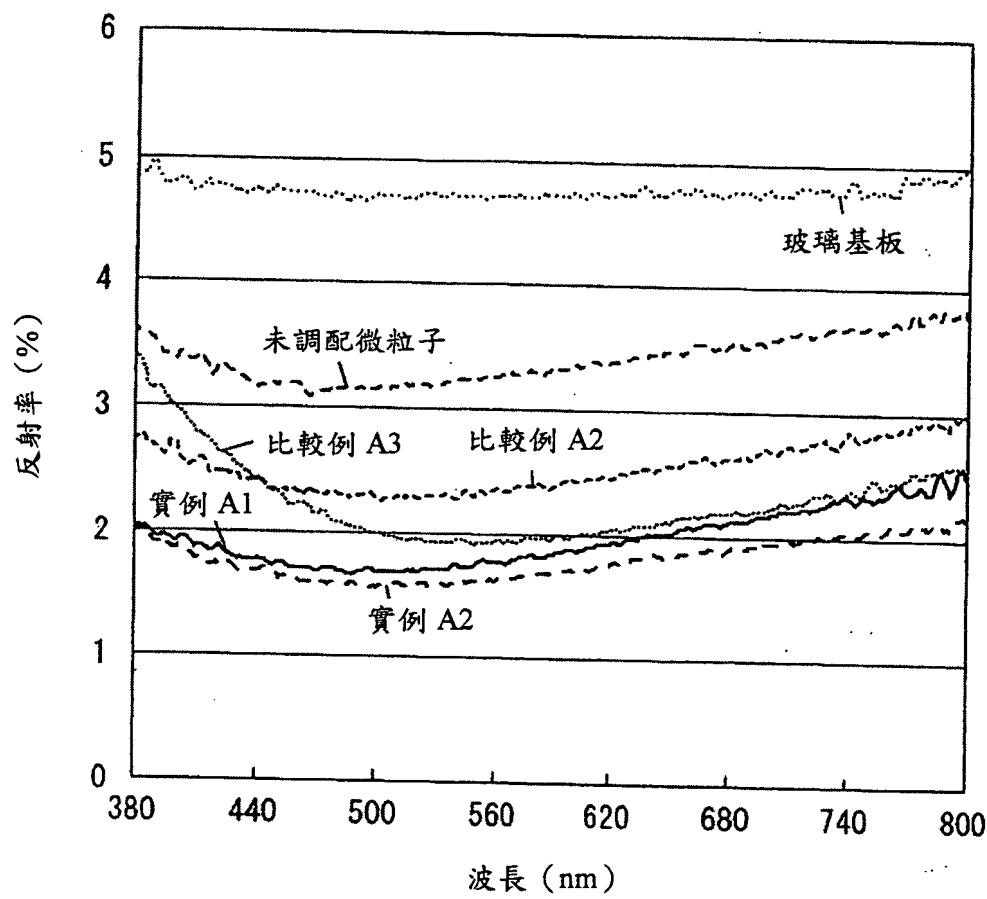


圖 13

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：圖 1

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

A：凸狀部

B：中孔

P1、P2：粒子

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 99115926

C1B 3/00

(2006.01)

※ 申請日期：

※IPC 分類：C1B 3/00

(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

B01J 36/00

(2006.01)

中孔二氧化矽微粒子的製造方法、中孔二氧化矽微粒子、中孔二氧化矽微粒子分散液、含中孔二氧化矽微粒子組成物以及含中孔二氧化矽微粒子成型物

METHOD OF FACRICATING MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, DISPERSION LIQUID OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, COMPOSITION OF MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, AND MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE MOLDING

二、中文發明摘要：

提供可實現低反射率、低介電常數、低熱導率等功能與提高成型物強度的中孔二氧化矽微粒子。藉由包含界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟及中孔化步驟來製造中孔二氧化矽微粒子。二氧化矽微粒子製作步驟為混合界面活性劑、水、鹼、具備使微胞體積增大的疏水部的含疏水部添加物與二氧化矽源製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子。中孔化步驟為於其中混合酸及有機矽化合物，去除包含於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的界面活性劑及含

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 99115926

(C1B 3/00)

(2006.01)

※ 申請日期：

※IPC 分類：(C1B 3/00)

(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

(B01 3/00)

(2006.01)

中孔二氧化矽微粒子的製造方法、中孔二氧化矽微粒
子、中孔二氧化矽微粒子分散液、含中孔二氧化矽微
粒子組成物以及含中孔二氧化矽微粒子成型物

METHOD OF FACRICATING MESOPOROUS SILICA
NANO PARTICLE, MESOPOROUS SILICA NANO
PARTICLE, DISPERSION LIQUID OF MESOPOROUS
SILICA NANO PARTICLE, COMPOSITION OF
MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE, AND
MESOPOROUS SILICA NANO PARTICLE MOLDING

二、中文發明摘要：

提供可實現低反射率、低介電常數、低熱導率等功能
與提高成型物強度的中孔二氧化矽微粒子。藉由包含界面
活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟及中孔化步驟來製造
中孔二氧化矽微粒子。二氧化矽微粒子製作步驟為混合界
面活性劑、水、鹼、具備使微胞體積增大的疏水部的含疏
水部添加物與二氧化矽源製作界面活性劑複合二氧化矽微
粒子。中孔化步驟為於其中混合酸及有機矽化合物，去除
包含於界面活性劑複合二氧化矽微粒子的界面活性劑及含

疏水部添加物，對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。
中孔二氧化矽微粒子於粒子內有中孔，表面有機官能基修飾。

七、申請專利範圍：

1. 一種中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其特徵包括：

界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟，將界面活性劑、水、鹼、具備使由上述界面活性劑所形成的微胞的體積增大的疏水部的含疏水部的添加物與二氧化矽源混合，來製作界面活性劑複合二氧化矽微粒子；以及

中孔化步驟，藉由將上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子、酸及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物混合，而將包含於上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的上述界面活性劑及上述含疏水部的添加物去除，並對二氧化矽微粒子表面賦予有機官能基。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述中孔化步驟包含：

於含有由上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子製作步驟所生成的上述界面活性劑複合二氧化矽微粒子的反應液中，混合酸、及分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

3. 如申請專利範圍第 1 項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的分子中的矽氧烷鍵的數目為一個。

4. 如申請專利範圍第 2 項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物的分子中的矽氧烷鍵的數目為一個。

5. 如申請專利範圍第 1 項至第 4 項中任一項所述之中

孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有疏水性官能基，並且藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予疏水性官能基。

6. 如申請專利範圍第 5 項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中包含六甲基二矽氧烷來作為上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物。

7. 如申請專利範圍第 5 項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有連結有兩個以上的碳的烷基鏈。

8. 如申請專利範圍第 1 項至第 4 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有親水性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予親水基。

9. 如申請專利範圍第 1 項至第 4 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子的製造方法，其中上述分子中含有矽氧烷鍵的有機矽化合物具有反應性官能基，並藉由上述中孔化步驟，對二氧化矽微粒子表面賦予反應性官能基。

10. 一種中孔二氧化矽微粒子，其特徵在於：其是藉由如申請專利範圍第 1 項所述之方法而獲得。

11. 一種中孔二氧化矽微粒子，其特徵包括：

粒徑為 100 nm 以下，於粒子內部等間隔地配置有孔徑為 3.5 nm 以上的多個中孔，且表面經有機官能基修飾。

12. 如申請專利範圍第 11 項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中於中孔二氧化矽微粒子的粒子表面具備多個凸狀

部。

13. 如申請專利範圍第 12 項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中上述凸狀部是以矽氧化物為主成分而構成。

14. 如申請專利範圍第 12 項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中上述凸狀部的突出高度為 1 nm 以上、30 nm 以下。

15. 如申請專利範圍第 13 項所述之中孔二氧化矽微粒子，其中上述凸狀部的突出高度為 1 nm 以上、30 nm 以下。

16. 一種中孔二氧化矽微粒子分散液，其特徵在於：其是將如申請專利範圍第 10 項至第 15 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子分散於介質中而成。

17. 一種含中孔二氧化矽微粒子組成物，其特徵在於：其是於基質形成材料中含有如申請專利範圍第 10 項至第 15 項中任一項所述之中孔二氧化矽微粒子而成。

18. 一種含中孔二氧化矽微粒子成型物，其特徵在於：其是將如申請專利範圍第 17 項所述之含中孔二氧化矽微粒子組成物成型而成。