

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-214716

(P2013-214716A)

(43) 公開日 平成25年10月17日(2013.10.17)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 L 33/50 (2010.01)	HO 1 L 33/00 4 1 O	4 M 1 0 9
HO 1 L 23/29 (2006.01)	HO 1 L 23/30 F	5 F 1 4 2
HO 1 L 23/31 (2006.01)	HO 1 L 23/30 B	

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 32 頁)

(21) 出願番号	特願2013-3080 (P2013-3080)	(71) 出願人	000003964 日東電工株式会社
(22) 出願日	平成25年1月11日 (2013.1.11)		大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
(31) 優先権主張番号	特願2012-49007 (P2012-49007)	(74) 代理人	100103517 弁理士 岡本 寛之
(32) 優先日	平成24年3月6日 (2012.3.6)	(74) 代理人	100149607 弁理士 宇田 新一
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	江部 悠紀 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
		(72) 発明者	大藪 恭也 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内

最終頁に続く

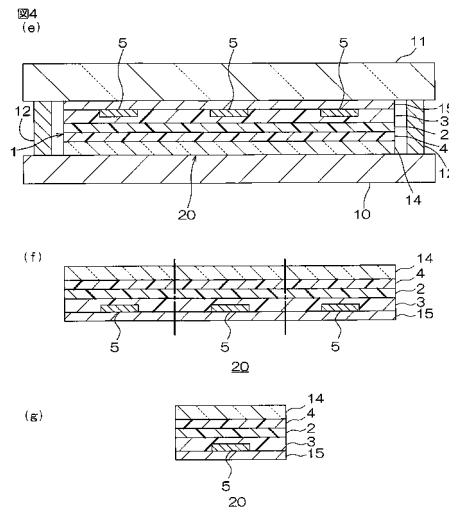
(54) 【発明の名称】 蛍光封止シート、発光ダイオード装置およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 蛍光層を接着層によってカバー層へ接着して、機械強度の向上を簡便に図りつつ、蛍光層を発光ダイオード素子に対して対向させることができながら、封止層によって発光ダイオード素子を簡便に封止することのできる蛍光封止シート、それを用いる発光ダイオード装置の製造方法およびそれにより得られる発光ダイオード装置を提供すること。

【解決手段】 発光ダイオード素子5を封止するための蛍光封止シート1であって、蛍光層2と、蛍光層2の厚み方向一方側に形成される封止層3と、蛍光層2の厚み方向他方側に形成され、カバー層14に接着するための接着層4とを備える。

【選択図】 図4



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

発光ダイオード素子を封止するための蛍光封止シートであって、
 蛍光層と、
 前記蛍光層の厚み方向一方側に形成される封止層と、
 前記蛍光層の前記厚み方向他方側に形成され、カバー層に接着するための接着層と
 を備えることを特徴とする、蛍光封止シート。

【請求項 2】

下記式 (A) を満足する周波数 1 Hz、25 での貯蔵剪断弾性率 G' を有する前記蛍光層および前記封止層を積層することにより得られることを特徴とする、請求項 1 に記載の蛍光封止シート。

$$\left(\text{前記蛍光層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) / \left(\text{前記封止層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) \geq 2.0 \quad (A)$$

【請求項 3】

下記式 (B) を満足する周波数 1 Hz、25 での貯蔵剪断弾性率 G' を有する前記蛍光層および前記封止層を積層することにより得られることを特徴とする、請求項 1 に記載の蛍光封止シート。

$$\left(\text{前記蛍光層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) / \left(\text{前記封止層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) < 2.0 \quad (B)$$

【請求項 4】

前記封止層および前記接着層が、シリコン樹脂を含有することを特徴とする、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の蛍光封止シート。

【請求項 5】

前記シリコン樹脂が、B ステージであることを特徴とする、請求項 4 に記載の蛍光封止シート。

【請求項 6】

前記蛍光層が、B ステージのシリコン樹脂、C ステージのシリコン樹脂、および、セラミックプレートからなる群から選択される少なくとも 1 種から形成されていることを特徴とする、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の蛍光封止シート。

【請求項 7】

発光ダイオード素子が実装された基板を用意する工程、
 請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の蛍光封止シートの前記接着層を介して、前記蛍光層を前記カバー層に貼着する第 1 貼着工程、および、
 前記封止層を、前記発光ダイオード素子を被覆するように前記基板に貼着する第 2 貼着工程
 を備えることを特徴とする、発光ダイオード装置の製造方法。

【請求項 8】

前記封止層および前記接着層が、B ステージのシリコン樹脂を含有し、
 前記第 1 貼着工程および前記第 2 貼着工程のうち、まず、一方を実施し、その後、他方を実施するか、または、両方を同時に実施しており、
 前記他方を実施する工程または前記両方を実施する工程において、加熱により、前記封止層および前記接着層のシリコン樹脂を C ステージにすることを特徴とする、請求項 7 に記載の発光ダイオード装置の製造方法。

【請求項 9】

請求項 7 または 8 に記載される発光ダイオード装置の製造方法により製造されることを特徴とする、発光ダイオード装置。

【請求項 10】

前記蛍光層が、前記厚み方向に直交する方向に沿う平板形状に形成されていることを特徴とする、請求項 9 に記載の発光ダイオード装置。

【請求項 11】

10

20

30

40

50

前記蛍光層が、前記発光ダイオード素子の形状に対応して、形成されていることを特徴とする、請求項 9 に記載の発光ダイオード装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、蛍光封止シート、発光ダイオード装置およびその製造方法、詳しくは、蛍光封止シート、それを用いる発光ダイオード装置の製造方法およびそれにより得られる発光ダイオード装置を提供することにある。

【背景技術】

【0002】

10

発光ダイオード装置は、例えば、基板と、その上面に実装され、青色光を発光する LED (発光ダイオード素子) と、青色光を黄色光に変換でき、LED の上に設けられる蛍光体層と、蛍光体層の上面に積層されるレンズ層 (カバー層) とを備えている。そのような発光ダイオード装置は、基板から電力が供給される LED から発光され、蛍光体層を透過した青色光と、蛍光体層において青色光の一部が波長変換された黄色光との混色によって、高エネルギーの白色光をレンズ層を介して発光する。

【0003】

そのような発光ダイオード装置として、例えば、上面に反射枠が設けられた基体と、反射枠に囲まれる凹部の底面 (基体の上面) に実装される LED 素子と、凹部内に充填され、LED 素子を封止するモールド樹脂と、モールド樹脂の上に積層される波長変換物質層と、波長変換物質層の上に形成される透光性シート基板とを備える発光装置が提案されている (例えば、下記特許文献 1 参照。)。

20

【0004】

特許文献 1 の発光装置を得るには、まず、LED 素子が実装された基体を用意し、次いで、モールド樹脂を凹部内に充填し、続いて、波長変換物質層をモールド樹脂の上に積層し、その後、透光性シート基板を積層する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】特開 2005 - 93681 号公報

30

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかし、特許文献 1 の製造方法では、LED 素子の上に、モールド樹脂と、波長変換物質層と、透光性シート基板とを順次形成する必要がある。

【0007】

そのため、製造工数が増加して、作業が繁雑となり、製造コストが増大するという不具合がある。

【0008】

40

本発明の目的は、蛍光層を接着層によってカバー層へ接着して、機械強度の向上を簡便に図りつつ、蛍光層を発光ダイオード素子に対して対向させることができながら、封止層によって発光ダイオード素子を簡便に封止することのできる蛍光封止シート、それを用いる発光ダイオード装置の製造方法およびそれにより得られる発光ダイオード装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記目的を達成するために、本発明の蛍光封止シートは、発光ダイオード素子を封止するための蛍光封止シートであって、蛍光層と、前記蛍光層の厚み方向一方側に形成される封止層と、前記蛍光層の前記厚み方向他方側に形成され、カバー層に接着するための接着層とを備えることを特徴としている。

50

【 0 0 1 0 】

また、本発明の蛍光封止シートでは、下記式 (A) を満足する周波数 1 H z、2 5 での貯蔵剪断弾性率 G' を有する前記蛍光層および前記封止層を積層することにより得られることが好適である。

$$\left(\text{前記蛍光層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) / \left(\text{前記封止層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) \geq 2.0 \quad (A)$$

また、本発明の蛍光封止シートでは、下記式 (B) を満足する周波数 1 H z、2 5 での貯蔵剪断弾性率 G' を有する前記蛍光層および前記封止層を積層することにより得られることが好適である。

$$\left(\text{前記蛍光層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) / \left(\text{前記封止層の貯蔵剪断弾性率 } G' \right) < 2.0 \quad (B)$$

また、本発明の蛍光封止シートでは、前記封止層および前記接着層が、シリコン樹脂を含有することが好適である。

【 0 0 1 1 】

また、本発明の蛍光封止シートでは、前記シリコン樹脂が、B ステージであることが好適である。

【 0 0 1 2 】

また、本発明の蛍光封止シートでは、前記蛍光層が、B ステージのシリコン樹脂、C ステージのシリコン樹脂、および、セラミックプレートからなる群から選択される少なくとも 1 種から形成されていることが好適である。

【 0 0 1 3 】

また、本発明の発光ダイオード装置の製造方法は、発光ダイオード素子が実装された基板を用意する工程、上記した蛍光封止シートの前記接着層を介して、前記蛍光層を前記カバー層に貼着する第 1 貼着工程、および、前記封止層を、前記発光ダイオード素子を被覆するように前記基板に貼着する第 2 貼着工程を備えることを特徴としている。

【 0 0 1 4 】

また、本発明の発光ダイオード装置の製造方法では、記封止層および前記接着層が、B ステージのシリコン樹脂を含有し、前記第 1 貼着工程および前記第 2 貼着工程のうち、まず、一方を実施し、その後、他方を実施するか、または、両方を同時に実施しており、前記他方を実施する工程または前記両方を実施する工程において、加熱により、前記封止層および前記接着層のシリコン樹脂を C ステージにすることが好適である。

【 0 0 1 5 】

また、本発明の発光ダイオード装置は、上記した発光ダイオード装置の製造方法により製造されることを特徴としている。

【 0 0 1 6 】

また、本発明の発光ダイオード装置では、前記蛍光層が、前記厚み方向に直交する方向に沿う平板形状に形成されていることが好適である。

【 0 0 1 7 】

また、本発明の発光ダイオード装置では、前記蛍光層が、前記発光ダイオード素子の形状に対応して、形成されていることが好適である。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 8 】

本発明の蛍光封止シートによれば、蛍光層を接着層を介してカバー層に接着するとともに、封止層によって発光ダイオード素子を封止することができる。

【 0 0 1 9 】

しかも、本発明の蛍光封止シートには、蛍光層の厚み方向両面に封止層および接着層が予め設けられているので、本発明の発光ダイオード装置の製造方法によれば、接着層を介して蛍光層をカバー層に貼着し、かつ、封止層を発光ダイオード素子を被覆するように基板に貼着することにより、接着層によって蛍光層をカバー層に接着しながら、封止層によって発光ダイオード素子を簡易に封止することができる。

10

20

30

40

50

【0020】

そのため、発光ダイオード素子が蛍光封止シートによって封止された本発明の発光ダイオード装置は、封止層によって信頼性を向上させながら、蛍光層によって発光ダイオード素子から発光される光を変換することにより、高エネルギーの光を発光でき、さらに、かかる光をカバー層を介して発光することができる。

【図面の簡単な説明】

【0021】

【図1】図1は、本発明の蛍光封止シートの一実施形態の断面図を示す。

【図2】図2は、図1に示す蛍光封止シートの製造方法を説明する断面図を示す。

【図3】図3は、図1に示す蛍光封止シートを用いる、本発明の発光ダイオード装置の一実施形態を製造する方法を説明する工程図であり、(a)は、第2基材を接着層から引き剥がす工程、(b)は、カバー層を接着層に貼着する工程、(c)は、第1基材を封止層から引き剥がす工程、(d)は、基板および蛍光封止シートをプレス機に設置する工程を示す。

【図4】図4は、図3に引き続き、図1に示す蛍光封止シートを用いる、本発明の発光ダイオード装置の一実施形態を製造する方法を説明する工程図であり、(e)は、封止層を基板に貼着する工程、(f)は、蛍光封止シートおよび基板を熱圧着する工程、(g)は、発光ダイオード装置をダイシングする工程を示す。

【図5】図5は、本発明の発光ダイオード装置の他の実施形態(蛍光層が発光ダイオード素子の形状に対応する態様)の断面図を示す。

【発明を実施するための形態】

【0022】

図1は、本発明の蛍光封止シートの一実施形態の断面図、図2は、図1に示す蛍光封止シートの製造方法を説明する断面図、図3および図4は、図1に示す蛍光封止シートを用いる、本発明の発光ダイオード装置の一実施形態を製造する方法を説明する工程図を示す。

【0023】

図1において、蛍光封止シート1は、発光ダイオード素子5(図3(d)参照)を封止するための封止シートであって、具体的には、蛍光層2と、蛍光層2の上(厚み方向一方側)に形成される封止層3と、蛍光層2の下(厚み方向他方側)に形成される接着層4とを備えている。

【0024】

蛍光層2は、シート状またはプレート状をなし、例えば、蛍光体と樹脂とを必須成分として含有する蛍光組成物から形成され、あるいは、例えば、蛍光体のセラミックスから、蛍光体セラミックプレートとして形成されている。蛍光層2は、好ましくは、蛍光組成物から形成されている。

【0025】

蛍光体としては、例えば、青色光を黄色光に変換することができる黄色蛍光体、例えば、青色光を赤色光に変換することができる赤色蛍光体、例えば、青色光を緑色光に変換することができる緑色蛍光体などが挙げられる。

【0026】

黄色蛍光体としては、例えば、 $(Sr, Ba)_2SiO_4:Eu$ (バリウムオルソシリケート(BOS))などのシリケート型蛍光体、例えば、 $Ca-SiAlON:Eu$ などの-サイアロン型蛍光体、例えば、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ (YAG:Ce)、 $Tb_3Al_3O_{12}:Ce$ (TAG:Ce)などのガーネット型蛍光体が挙げられる。

【0027】

赤色蛍光体としては、例えば、 $CaAlSiN_3:Eu$ などの窒化物蛍光体が挙げられる。

【0028】

緑色蛍光体としては、例えば、 $LaPO_4:Ce$ 、 Tb などのリン化物蛍光体などが挙

10

20

30

40

50

げられる。

【0029】

蛍光体としては、好ましくは、黄色蛍光体、さらに好ましくは、ガーネット型蛍光体、とりわけ好ましくは、YAG：Ceが挙げられる。

【0030】

蛍光体は、例えば、粒子状であり、レーザー回折散乱式粒度分布測定法により測定して得られる平均粒子径（最大長さの平均）が、例えば、0.1～100μm、好ましくは、0.2～30μmである。

【0031】

また、蛍光体の配合割合は、樹脂100質量部に対して、例えば、1～50質量部、好ましくは、3～35質量部である。

10

【0032】

樹脂としては、例えば、シリコン樹脂、エポキシ樹脂、スチレン樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ウレタン樹脂、ポリオレフィン樹脂などの光を透過する樹脂が挙げられる。

【0033】

樹脂は、単独（1種類のみ）で用いることもでき、あるいは、2種以上併用することもできる。

【0034】

好ましくは、透明性・耐久性の観点から、シリコン樹脂が挙げられる。

20

【0035】

シリコン樹脂としては、例えば、縮合反応・付加反応型シリコン樹脂組成物などのシリコン樹脂組成物が挙げられる。

【0036】

縮合反応・付加反応型シリコン樹脂組成物は、加熱によって、縮合反応および付加反応（具体的には、ヒドロキシル化反応）することができるシリコン樹脂組成物であって、より具体的には、加熱によって、縮合反応して、Bステージ（半硬化状態、以下同様。）となることができ、次いで、さらなる加熱によって、付加反応（具体的には、例えば、ヒドロシリル化反応）して、Cステージ（完全硬化状態、以下同様。）となることができるシリコン樹脂組成物である。

30

【0037】

このような縮合反応・付加反応型シリコン樹脂組成物としては、例えば、シラノール両末端ポリシロキサン、アルケニル基含有アルコキシシランおよびオルガノヒドロジェンシロキサンを含有する第1の熱硬化性シリコン樹脂組成物、例えば、シラノール基両末端ポリシロキサン、エチレン系不飽和炭化水素基含有ケイ素化合物、エポキシ基含有ケイ素化合物およびオルガノヒドロジェンシロキサンを含有する第2の熱硬化性シリコン樹脂組成物、例えば、少なくとも2個のアルケニルシリル基を1分子中に有する第1オルガノポリシロキサン、少なくとも2個のヒドロシリル基を1分子中に有する第2オルガノポリシロキサン、ヒドロシリル化触媒、および、硬化遅延剤を含有する第3の熱硬化性シリコン樹脂組成物、例えば、少なくとも2つのエチレン系不飽和炭化水素基と少なくとも2つのヒドロシリル基とを1分子中に併有する第1オルガノポリシロキサン、エチレン系不飽和炭化水素基を含まず、少なくとも2つのヒドロシリル基を1分子中に有する第2オルガノポリシロキサン、ヒドロシリル化触媒、および、ヒドロシリル化抑制剤を含有する第4の熱硬化性シリコン樹脂組成物、例えば、少なくとも2つのエチレン系不飽和炭化水素基と少なくとも2つのシラノール基とを1分子中に併有する第1オルガノポリシロキサン、エチレン系不飽和炭化水素基を含まず、少なくとも2つのヒドロシリル基を1分子中に有する第2オルガノポリシロキサン、および、ヒドロシリル化触媒を含有する第5の熱硬化性シリコン樹脂組成物などが挙げられる。

40

【0038】

これら縮合反応・付加反応型シリコン樹脂組成物は、単独使用または2種類以上併用

50

することができる。

【0039】

縮合反応・付加反応型シリコーン樹脂組成物として、好ましくは、第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物が挙げられる。

【0040】

第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物において、シラノール基両末端ポリシロキサン、エチレン系不飽和炭化水素基含有ケイ素化合物（以下、エチレン系ケイ素化合物とする。））、エポキシ基含有ケイ素化合物およびオルガノヒドロジェンシロキサンのうち、シラノール基両末端ポリシロキサン、エチレン系ケイ素化合物およびエポキシ基含有ケイ素化合物は、縮合原料（縮合反応に供される原料）であり、エチレン系ケイ素化合物およびオルガノヒドロジェンシロキサンは、付加原料（付加反応に供される原料）である。

10

【0041】

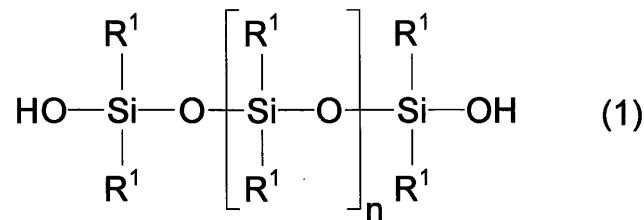
シラノール基両末端ポリシロキサンは、分子の両末端にシラノール基（SiOH基）を含有するオルガノシロキサンであって、具体的には、下記一般式（1）で示される。

一般式（1）：

【0042】

【化1】

【化1】



20

【0043】

（一般式（1）中、R¹は、飽和炭化水素基および芳香族炭化水素基から選択される1価の炭化水素基を示す。また、nは、1以上の整数を示す。）

30

上記一般式（1）中、R¹で示される1価の炭化水素基において、飽和炭化水素基としては、例えば、炭素数1～6の直鎖状または分岐状のアルキル基（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、ペンチル基、ヘキシル基など）、例えば、炭素数3～6のシクロアルキル基（シクロペンチル基、シクロヘキシル基など）などが挙げられる。

【0044】

また、上記一般式（1）中、R¹で示される1価の炭化水素基において、芳香族炭化水素基としては、例えば、炭素数6～10のアリール基（フェニル基、ナフチル基）などが挙げられる。

40

【0045】

上記一般式（1）において、R¹は、同一または互いに異なっていてもよく、好ましくは、同一である。

【0046】

1価の炭化水素基としては、好ましくは、炭素数1～6のアルキル基、および炭素数6～10のアリール基が挙げられ、透明性、熱安定性および耐光性の観点から、さらに好ましくは、メチル基が挙げられる。

【0047】

上記一般式（1）において、nは、好ましくは、安定性および/または取り扱い性の観点から、1～10,000の整数、さらに好ましくは、1～1,000の整数である。

50

【 0 0 4 8 】

なお、上記一般式(1)におけるnは、平均値として算出される。

【 0 0 4 9 】

シラノール基両末端ポリシロキサンとしては、具体的には、シラノール基両末端ポリジメチルシロキサン、シラノール基両末端ポリメチルフェニルシロキサン、シラノール基両末端ポリジフェニルシロキサンなどが挙げられる。

【 0 0 5 0 】

このようなシラノール基両末端ポリシロキサンは、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【 0 0 5 1 】

また、このようなシラノール基両末端ポリシロキサンのなかでは、好ましくは、シラノール基両末端ポリジメチルシロキサンが挙げられる。

【 0 0 5 2 】

シラノール基両末端ポリシロキサンの数平均分子量は、安定性および/または取り扱い性の観点から、例えば、100~1,000,000、好ましくは、200~100,000である。数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、標準ポリスチレンで換算されて算出される。後述するシラノール基両末端ポリシロキサン以外の原料の数平均分子量についても、上記と同様にして算出される。

【 0 0 5 3 】

このようなシラノール基両末端ポリシロキサンにおける、シラノール基当量は、例えば、0.002~25mmol/g、好ましくは、0.02~25mmol/gである。

【 0 0 5 4 】

シラノール基両末端ポリシロキサンの配合割合は、縮合原料100質量部に対して、例えば、1~99.99質量部、好ましくは、50~99.9質量部、さらに好ましくは、80~99.5質量部である。

【 0 0 5 5 】

エチレン系ケイ素化合物は、エチレン系不飽和炭化水素基、および、シラノール縮合反応における脱離基を併有するシラン化合物であって、具体的には、下記一般式(2)で示される。

一般式(2)：



(一般式(2)中、 R^2 は、1価のエチレン系不飽和炭化水素基を示し、 X^1 は、ハロゲン原子、アルコキシ基、フェノキシ基、またはアセトキシ基を示す。但し、 X^1 は、同一または互いに相異なってもよい。)

上記一般式(2)において、 R^2 で示されるエチレン系不飽和炭化水素基としては、置換または非置換のエチレン系不飽和炭化水素基が挙げられ、例えば、アルケニル基、シクロアルケニル基などが挙げられる。

【 0 0 5 6 】

アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基などの炭素数2~10のアルケニル基が挙げられる。

【 0 0 5 7 】

シクロアルケニル基としては、例えば、シクロヘキセニル基、ノルボルネニル基などの炭素数3~10のシクロアルケニル基が挙げられる。

【 0 0 5 8 】

エチレン系不飽和炭化水素基としては、ヒドロシリル基との反応性の観点から、好ましくは、アルケニル基、さらに好ましくは、炭素数2~5のアルケニル基、とりわけ好ましくは、ビニル基が挙げられる。

【 0 0 5 9 】

上記一般式(2)における X^1 は、シラノール縮合反応における脱離基であり、上記一

10

20

30

40

50

般式(2)におけるSiX¹基は、シラノール縮合反応における反応性官能基である。

【0060】

上記一般式(2)において、X¹で示されるハロゲン原子としては、例えば、臭素、塩素、フッ素、ヨウ素などが挙げられる。

【0061】

上記一般式(2)において、X¹で示されるアルコキシ基としては、例えば、炭素数1~6の直鎖状または分岐状のアルキル基を有するアルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基など)、例えば、炭素数3~6のシクロアルキル基を有するアルコキシ基(シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基など)などが挙げられる。

10

【0062】

上記一般式(2)において、X¹は、同一または互いに異なっていてもよく、好ましくは、同一である。

【0063】

このような上記一般式(2)のX¹のなかでは、好ましくは、アルコキシ基が挙げられ、さらに好ましくは、メトキシ基が挙げられる。

【0064】

このようなエチレン系ケイ素化合物としては、例えば、エチレン系不飽和炭化水素基含有トリアルコキシシラン、エチレン系不飽和炭化水素基含有トリハロゲン化シラン、エチレン系不飽和炭化水素基含有トリフェノキシシラン、エチレン系不飽和炭化水素基含有トリアセトキシシランなどが挙げられる。

20

【0065】

このようなエチレン系ケイ素化合物は、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【0066】

このようなエチレン系ケイ素化合物のなかでは、好ましくは、エチレン系不飽和炭化水素基含有トリアルコキシシランが挙げられる。

【0067】

エチレン系不飽和炭化水素基含有トリアルコキシシランとしては、具体的には、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリプロポキシシランなどのビニルトリアルコキシシラン、例えば、アリルトリメトキシシラン、プロペニルトリメトキシシラン、ブテニルトリメトキシシラン、シクロヘキセニルトリメトキシシランなどが挙げられる。

30

【0068】

また、このようなエチレン系不飽和炭化水素基含有トリアルコキシシランのなかでは、好ましくは、ビニルトリアルコキシシラン、さらに好ましくは、ビニルトリメトキシシランが挙げられる。

【0069】

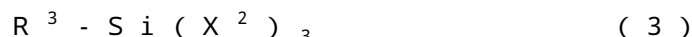
エチレン系ケイ素化合物の配合割合は、縮合原料100質量部に対して、例えば、0.01~90質量部、好ましくは、0.01~50質量部、さらに好ましくは、0.01~10質量部である。

40

【0070】

エポキシ基含有ケイ素化合物は、エポキシ基、および、シラノール縮合反応における脱離基を併有するシラン化合物あって、具体的には、下記一般式(3)で示される。

一般式(3)：



(一般式(3)中、R³は、エポキシ構造含有基を示し、X²は、ハロゲン原子、アルコキシ基、フェノキシ基、またはアセトキシ基を示す。但し、X²は、同一または互いに相異なっていてもよい。)

一般式(3)において、R³で示されるエポキシ構造含有基としては、例えば、エポキ

50

シ基、例えば、グリシジルエーテル基、例えば、エポキシシクロヘキシル基などのエポキシシクロアルキル基などが挙げられる。

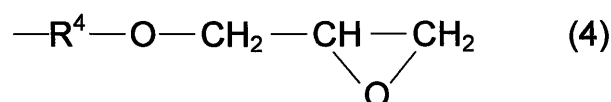
【0071】

このようなエポキシ構造含有基のなかでは、好ましくは、グリシジルエーテル基が挙げられる。グリシジルエーテル基は、具体的には、下記一般式(4)で示されるグリシドキシアルキル基である。

一般式(4)：

【0072】

【化2】



【0073】

(一般式(4)中、R⁴は、飽和炭化水素基および芳香族炭化水素基から選択される2価の炭化水素基を示す。)

上記一般式(4)中、R⁴で示される2価の炭化水素基において、飽和炭化水素基としては、例えば、炭素数1~6のアルキレン基(メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基など)、例えば、炭素数3~8のシクロアルキレン基(シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基など)などが挙げられる。

【0074】

また、上記一般式(4)中、R⁴で示される2価の炭化水素基において、芳香族炭化水素基としては、例えば、炭素数6~10のアリーレン基(フェニレン基、ナフチレン基など)などが挙げられる。

【0075】

このような2価の炭化水素基としては、好ましくは、炭素数1~6のアルキレン基、さらに好ましくは、プロピレン基が挙げられる。

【0076】

グリシジルエーテル基としては、具体的には、グリシドキシメチル基、グリシドキシエチル基、グリシドキシプロピル基、グリシドキシシクロヘキシル基、グリシドキシフェニル基などが挙げられる。

【0077】

このようなグリシジルエーテル基のなかでは、好ましくは、グリシドキシプロピル基が挙げられる。

【0078】

上記一般式(3)におけるX²は、シラノール縮合反応における脱離基であり、上記一般式(3)におけるSiX²基は、シラノール縮合反応における反応性官能基である。

【0079】

上記一般式(3)において、X²で示されるハロゲン原子としては、上記一般式(2)のX¹で示されるハロゲン原子と同様のものが挙げられる。

【0080】

上記一般式(3)において、X²で示されるアルコキシ基としては、上記一般式(2)のX¹で示されるアルコキシ基と同様のものが挙げられる。

【0081】

上記一般式(3)において、X²は、同一または互いに異なっていてもよく、好ましくは、同一である。

10

20

30

40

50

【0082】

このような上記一般式(3)の X^2 としては、好ましくは、アルコキシ基が挙げられ、さらに好ましくは、メトキシ基が挙げられる。

【0083】

このようなエポキシ基含有ケイ素化合物としては、例えば、エポキシ基含有トリアルコキシシラン、エポキシ基含有トリハロゲン化シラン、エポキシ基含有トリフェノキシシラン、エポキシ基含有トリアセトキシシランなどが挙げられる。

【0084】

このようなエポキシ基含有ケイ素化合物は、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【0085】

また、このようなエチレン系ケイ素化合物のなかでは、好ましくは、エポキシ基含有トリアルコキシシランが挙げられる。

【0086】

エポキシ基含有トリアルコキシシランとしては、具体的には、グリシドキシメチルトリメトキシシラン、(2-グリシドキシエチル)トリメトキシシラン、(3-グリシドキシプロピル)トリメトキシシランなどのグリシドキシアルキルトリメトキシシラン、例えば、(3-グリシドキシプロピル)トリエトキシシラン、(3-グリシドキシプロピル)トリプロポキシシラン、(3-グリシドキシプロピル)トリイソプロポキシシランなどが挙げられる。

【0087】

また、このようなエポキシ基含有トリアルコキシシランのなかでは、好ましくは、グリシドキシアルキルトリアルコキシシラン、さらに好ましくは、(3-グリシドキシプロピル)トリメトキシシランが挙げられる。

【0088】

エポキシ基含有ケイ素化合物の配合割合は、縮合原料100質量部に対して、例えば、0.01~90質量部、好ましくは、0.01~50質量部、さらに好ましくは、0.01~1質量部である。

【0089】

エチレン系ケイ素化合物およびエポキシ基含有ケイ素化合物の反応性官能基(SiX^1 基および SiX^2 基)に対する、シラノール基両末端ポリシロキサン(シラノール基($SiOH$ 基)のモル比($SiOH / (SiX^1 + SiX^2)$)は、例えば、20/1~0.2/1、好ましくは、10/1~0.5/1、さらに好ましくは、実質的に1/1である。

【0090】

エポキシ基含有ケイ素化合物に対する、エチレン系ケイ素化合物のモル比は、例えば、10/90~99/1、好ましくは、50/50~97/3、さらに好ましくは、80/20~95/5である。

【0091】

モル比が上記した範囲内であれば、硬化物の強度を確保しつつ、接着性を向上できる利点がある。

【0092】

オルガノヒドロジェンシロキサンは、エチレン系不飽和炭化水素基を含まず、少なくとも2つのヒドロシル基を1分子中に有するオルガノシロキサンである。

【0093】

オルガノヒドロジェンシロキサンは、具体的には、水素側鎖含有オルガノポリシロキサン、水素両末端オルガノポリシロキサンなどが挙げられる。

【0094】

水素側鎖含有オルガノポリシロキサンは、主鎖から分岐する側鎖として水素原子を有するオルガノヒドロジェンシロキサンであって、例えば、メチルヒドロジェンポリシロ

10

20

30

40

50

キサン、ジメチルポリシロキサン - c o - メチルヒドロジェンポリシロキサン、エチルヒドロジェンポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン - c o - メチルフェニルポリシロキサンなどが挙げられる。

【 0 0 9 5 】

水素側鎖含有オルガノポリシロキサンの数平均分子量は、例えば、100 ~ 1,000,000である。

【 0 0 9 6 】

また、水素両末端オルガノポリシロキサンは、主鎖の両末端に水素原子を有するオルガノヒドロジェンシロキサンであって、例えば、ヒドロシリル基両末端ポリジメチルシロキサン、ヒドロシリル基両末端ポリメチルフェニルシロキサン、ヒドロシリル基両末端ポリジフェニルシロキサンなどが挙げられる。

10

【 0 0 9 7 】

水素両末端オルガノポリシロキサンの数平均分子量は、安定性および/または取り扱い性の観点から、例えば100 ~ 1,000,000、さらに好ましくは、100 ~ 100,000である。

【 0 0 9 8 】

このようなオルガノヒドロジェンシロキサンは、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【 0 0 9 9 】

また、このようなオルガノヒドロジェンシロキサンのなかでは、好ましくは、水素側鎖含有オルガノポリシロキサンが挙げられ、さらに好ましくは、ジメチルポリシロキサン - c o - メチルヒドロジェンポリシロキサンが挙げられる。

20

【 0 1 0 0 】

オルガノヒドロジェンシロキサンの配合割合は、エチレン系ケイ素化合物のエチレン系不飽和炭化水素基（上記一般式（2）の R^2 ）とオルガノヒドロジェンシロキサンのヒドロシリル基（SiH基）とのモル比にもよるが、例えば、エチレン系ケイ素化合物100質量部に対して、例えば、10 ~ 10,000質量部、好ましくは、100 ~ 1,000質量部である。

【 0 1 0 1 】

また、オルガノヒドロジェンシロキサンのヒドロシリル基（SiH基）に対する、エチレン系ケイ素化合物のエチレン系不飽和炭化水素基（上記一般式（2）の R^2 ）のモル比（ R^2 / SiH ）は、例えば、20 / 1 ~ 0.05 / 1、好ましくは、20 / 1 ~ 0.1 / 1、さらに好ましくは、10 / 1 ~ 0.1 / 1、とりわけ好ましくは、10 / 1 ~ 0.2 / 1、もっとも好ましくは、5 / 1 ~ 0.2 / 1である。また、例えば、1 / 1未満、0.05 / 1以上に設定することもできる。

30

【 0 1 0 2 】

第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物は、上記したシラノール基両末端ポリシロキサン、エチレン系ケイ素化合物、エポキシ基含有ケイ素化合物およびオルガノヒドロジェンシロキサンを、触媒とともに、配合して、攪拌混合することにより調製される。

【 0 1 0 3 】

触媒としては、例えば、縮合触媒および付加触媒（ヒドロシリル化触媒）などが挙げられる。

40

【 0 1 0 4 】

縮合触媒は、縮合反応、つまり、シラノール基と反応性官能基（上記一般式（2）の SiX^1 基および上記一般式（3）の SiX^2 基）とのシラノール縮合反応の反応速度を向上させる物質であれば特に限定されず、例えば、塩酸、酢酸、ギ酸、硫酸などの酸、例えば、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化テトラメチルアンモニウムなどの塩基、例えば、アルミニウム、チタン、亜鉛、スズなどの金属などが挙げられる。

【 0 1 0 5 】

50

このような縮合触媒は、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【0106】

また、このような縮合触媒のなかでは、相溶性および熱分解性の観点から、好ましくは、塩基、さらに好ましくは、水酸化テトラメチルアンモニウムが挙げられる。

【0107】

このような縮合触媒の配合割合は、シラノール基両末端ポリシロキサン100モルに対して、例えば、0.1~50モル、好ましくは、0.5~5モルである。

【0108】

付加触媒は、付加反応、つまり、エチレン系不飽和炭化水素基とSiHとのヒドロシリル化反応の反応速度を向上させる物質であれば、特に限定されず、例えば、白金黒、塩化白金、塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-カルボニル錯体、白金-アセチルアセテートなどの白金触媒、例えば、パラジウム触媒、ロジウム触媒などの金属触媒が挙げられる。

10

【0109】

このような付加触媒は、単独で使用してもよく、あるいは、併用することもできる。

【0110】

また、このような付加触媒のなかでは、相溶性、透明性および触媒活性の観点から、好ましくは、白金触媒、さらに好ましくは、白金-カルボニル錯体が挙げられる。

【0111】

付加触媒の配合割合は、付加触媒の金属量の質量部数として、オルガノヒドロジェンシロキサン100質量部に対して、例えば、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0$ 質量部、好ましくは、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 0.5$ 質量部、さらに好ましく、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 0.05$ 質量部である。

20

【0112】

なお、上記した触媒は、固体状態のものをそのまま用いてもよく、あるいは、取扱性の観点から、溶媒に溶解または分散させた溶液または分散液として用いることもできる。

【0113】

溶媒としては、例えば、メタノール、エタノールなどのアルコール、例えば、シロキサンなどのケイ素化合物、例えば、ヘキサンなどの脂肪族炭化水素、例えば、トルエンなどの芳香族炭化水素、例えば、テトラヒドロフランなどのエーテルなどの有機溶媒が挙げられる。また、溶媒として、例えば、水などの水系溶媒も挙げられる。

30

【0114】

溶媒として、触媒が縮合触媒の場合は、好ましくは、アルコールが挙げられ、触媒が付加触媒の場合は、好ましくは、ケイ素化合物および芳香族炭化水素が挙げられる。

【0115】

第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物を調製するには、例えば、上記した原料（縮合原料および付加原料）と、触媒とを一度に加えてもよく、あるいは、各原料および各触媒を異なるタイミングでそれぞれ加えることもできる。さらには、一部の成分を一度に加え、残部の各成分を、異なるタイミングでそれぞれ加えることもできる。

【0116】

このような第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物の調製方法のなかでは、好ましくは、まず、縮合原料および縮合触媒を一度に加え、次いで、付加原料を加え、その後、付加触媒を加える方法が挙げられる。

40

【0117】

具体的には、シラノール基両末端ポリシロキサン、エチレン系ケイ素化合物およびエポキシ基含有ケイ素化合物（つまり、縮合原料）と、縮合触媒とを、上記した割合で一度に配合して、それらを、例えば、5分間~24時間攪拌する。

【0118】

また、配合および攪拌時には、縮合原料の相溶性および取扱性を向上させるために、例えば、0~60 に温度調整することもできる。

50

【0119】

また、原料および縮合触媒の配合時に、それらの相溶性を向上させるための相溶化剤を適宜の割合で加えることもできる。

【0120】

相溶化剤としては、例えば、メタノールなどのアルコールなどの有機溶媒が挙げられる。なお、相溶化剤は、縮合触媒が有機溶媒の溶液または分散液として調製されている場合には、その有機溶媒を相溶化剤として供することもできる。

【0121】

その後、系を、必要により減圧することにより、揮発成分（有機溶媒）を除去する。

【0122】

次いで、得られる縮合原料および縮合触媒の混合物に、オルガノハイドロジェンシロキサンを配合して、例えば、1～120分間攪拌する。

【0123】

配合および攪拌時には、混合物およびオルガノハイドロジェンシロキサンの相溶性および取扱性を向上させるために、例えば、0～60 に温度調整することもできる。

【0124】

その後、系に、付加触媒を配合して、例えば、1～60分間で攪拌する。

【0125】

これにより、第2の熱硬化性シリコーン樹脂組成物を調製することができる。

【0126】

樹脂は、シリコーン樹脂を、例えば、70質量%以上、好ましくは、90質量%以上、さらに好ましくは、100質量%（すなわち、シリコーン樹脂のみ）含有する。

【0127】

樹脂は、単独使用または2種以上併用することができる。

【0128】

樹脂の配合割合は、蛍光組成物に対して、例えば、50～99質量%、好ましくは、60～95質量%、さらに好ましくは、70～90質量%である。

【0129】

また、蛍光組成物は、任意成分として、例えば、上記した蛍光体を除く充填剤を含有している。

【0130】

充填剤としては、例えば、シリカ（二酸化ケイ素）微粒子、酸化チタン微粒子、酸化亜鉛微粒子、酸化マグネシウム微粒子、酸化ジルコニウム微粒子、酸化鉄微粒子などの酸化物微粒子、例えば、硫酸バリウム微粒子などの硫酸化合物微粒子、例えば、炭酸カルシウム微粒子、炭酸カルシウム微粒子、炭酸バリウム微粒子などの炭酸化合物微粒子、例えば、チタン酸バリウム微粒子など複合酸化物微粒子（上記した酸化物微粒子を除く）、例えば、水酸化アルミニウム微粒子などの水酸化物微粒子などの無機微粒子が挙げられる。また、充填剤として、シリコーン微粒子などの有機微粒子も挙げられる。

【0131】

充填剤として、好ましくは、シリカ微粒子、シリコーン微粒子が挙げられ、さらに好ましくは、シリカ微粒子が挙げられる。

【0132】

シリカ微粒子としては、例えば、溶融シリカ微粒子、結晶シリカ微粒子などが挙げられ、好ましくは、溶融シリカ微粒子（すなわち、石英ガラス微粒子）が挙げられる。

【0133】

シリコーン微粒子は、架橋構造を有するポリシロキサン（硬化後）の微粒子であって、例えば、ポリシルセスキオキサン微粒子などが挙げられる。

【0134】

充填剤の形状は限定されず、例えば、球状、板状、針状などが挙げられる。充填剤の最大長さの平均値（球状である場合には、その平均粒子径）は、例えば、1～50,000

10

20

30

40

50

nm、好ましくは、1～5,000nm、より好ましくは、1～1,000nm、さらに好ましくは、5～500nmである。最大長さの平均値は、レーザー回折散乱式粒度分布計を用いて測定される。

【0135】

このような充填剤は、単独使用または2種以上併用することができる。

【0136】

また、蛍光組成物において、充填剤が配合される場合には、樹脂100質量部に対して、蛍光体および充填剤の総質量部数が、例えば、1～50質量部、好ましくは、3～30質量部であり、さらには、蛍光体の、蛍光体および充填剤の総質量部数に対する質量比率（ $\text{蛍光体質量} / (\text{蛍光体質量} + \text{充填剤質量})$ ）は、例えば、0.0001～1、好ましくは、0.01～1である。

10

【0137】

また、蛍光体の充填剤に対する質量比率（ $\text{蛍光体質量} / \text{充填剤質量}$ ）は、例えば、0.2～3.0、好ましくは、0.5～2.0である。

【0138】

蛍光組成物を調製するには、樹脂と、蛍光体と、必要により充填剤とを配合して、均一混合する。

【0139】

これにより、蛍光体および充填剤は、樹脂中に均一に分散混合される。

【0140】

なお、蛍光組成物の調製において、必要により公知の溶媒を適宜の割合で配合することもできる。

20

【0141】

これにより、蛍光組成物を調製する。

【0142】

蛍光層2を形成するには、図2が参照されるように、調製した蛍光組成物を、離型シート25（仮想線）の上面に塗布し、加熱により乾燥する。

【0143】

乾燥における加熱温度は、例えば、80～160、好ましくは、90～150であり、加熱時間は、例えば、5～60分間、好ましくは、5～30分間である。

30

【0144】

樹脂がシリコン樹脂を含有する場合には、シリコン樹脂は、上記した加熱によって、Bステージとなる。

【0145】

その後、さらに加熱することにより、Bステージのシリコン樹脂がCステージとなる。シリコン樹脂をCステージとするための加熱温度は、例えば、100～200であり、加熱時間は、例えば、30分間～2時間である。

【0146】

一方、蛍光層2を蛍光体セラミックプレートとして形成する場合には、セラミック材料である蛍光体を焼結する。つまり、蛍光層2を蛍光体を焼結した蛍光体セラミックプレートとして得る。

40

【0147】

すなわち、蛍光層2は、Bステージのシリコン樹脂、Cステージのシリコン樹脂、または、蛍光体セラミックプレートとして用意される。

【0148】

なお、蛍光層2を、単層として設けることができ、また、複数層の積層体として設けることもできる。蛍光層2を複数層の積層体として設ける場合には、黄色蛍光体を含有する黄色蛍光体層、赤色蛍光体を含有する赤色蛍光体層、緑色蛍光体を含有する緑色蛍光体層などを積層する。

【0149】

50

蛍光層 2 の厚みは、例えば、 $30 \sim 1,000 \mu\text{m}$ 、好ましくは、 $50 \sim 700 \mu\text{m}$ である。

【0150】

封止層 3 は、図 1 に示すように、蛍光層 2 の上面全面に形成されている。

【0151】

封止層 3 は、例えば、封止樹脂を必須成分として含有する封止組成物から形成されている。

【0152】

封止樹脂としては、上記した蛍光組成物に含有される樹脂と同様の樹脂が挙げられ、好ましくは、シリコン樹脂が挙げられる。

【0153】

封止樹脂としては、シリコン樹脂のうち、同一種類または異なる種類のシリコン樹脂を用いることができる。封止樹脂として、好ましくは、蛍光層 2 の樹脂で挙げられたシリコン樹脂と同一種類のシリコン樹脂が挙げられる。

【0154】

封止樹脂は、シリコン樹脂を、例えば、70 質量%以上、好ましくは、90 質量%以上、さらに好ましくは、100 質量%（すなわち、シリコン樹脂のみ）含有する。

【0155】

封止樹脂は、単独使用または 2 種以上併用することができる。

【0156】

封止樹脂の配合割合は、封止組成物に対して、例えば、50 質量%以上、好ましくは、60 質量%以上であり、また、例えば、99 質量%以下、好ましくは、97 質量%以下でもある。

【0157】

また、封止組成物は、任意成分として、例えば、上記と同様の充填剤を含有する。

【0158】

充填剤の配合割合は、封止樹脂 100 質量部に対して、例えば、1 ~ 50 質量部、好ましくは、3 ~ 35 質量部である。

【0159】

封止組成物を調製するには、封止樹脂と、必要により充填剤とを配合して、均一混合する。

【0160】

これにより、充填剤は、封止樹脂中に均一に分散混合される。

【0161】

なお、封止組成物の調製において、必要により公知の溶媒を適宜の割合で配合することもできる。

【0162】

これにより、封止組成物を調製する。

【0163】

封止層 3 を形成するには、図 2 に示すように、調製した封止組成物を、第 1 基材 7 の厚み方向一方向（図 2 における下面）に塗布し、加熱により乾燥する。

【0164】

第 1 基材は、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレートなどのポリエステル樹脂、例えば、ポリエチレンなどのオレフィン樹脂などからなる樹脂板や、例えば、ステンレスなどからなる金属箔などから形成されている。第 1 基材 7 の厚みは、例えば、 $25 \sim 100 \mu\text{m}$ 、好ましくは、 $30 \sim 70 \mu\text{m}$ である。

【0165】

乾燥における加熱条件は、蛍光層 2 の乾燥における加熱条件と同様であり、好ましくは、加熱時間が、好ましくは、5 ~ 15 分間である。

【0166】

10

20

30

40

50

封止樹脂がシリコン樹脂を含有する場合には、シリコン樹脂は、上記した加熱によって、Bステージとなる。

【0167】

これにより、第1基材7の下面に積層された封止層3を得る。

【0168】

得られた封止層3の厚みは、例えば、50～600 μm 、好ましくは、100～500 μm である。

【0169】

接着層4は、図1に示すように、蛍光層2の下面全面に形成されており、蛍光層2をカバー層14（後述、図3（b）参照）に接着するために設けられる。

10

【0170】

接着層4は、例えば、接着剤を必須成分として含有する接着組成物から形成されている。

【0171】

接着剤としては、上記した蛍光組成物に含有される樹脂と同様の樹脂が挙げられ、好ましくは、シリコン樹脂が挙げられる。

【0172】

接着剤としては、シリコン樹脂のうち、同一種類または異なる種類のシリコン樹脂を用いることができる。接着剤として、好ましくは、蛍光層2の樹脂で挙げられたシリコン樹脂と同一種類のシリコン樹脂が挙げられる。

20

【0173】

接着剤は、シリコン樹脂を、例えば、70質量%以上、好ましくは、90質量%以上、さらに好ましくは、100質量%（すなわち、シリコン樹脂のみ）含有する。

【0174】

接着剤は、単独使用または2種以上併用することができる。

【0175】

接着剤の配合割合は、接着組成物に対して、例えば、50質量%以上、好ましくは、60質量%以上であり、また、例えば、99質量%以下、好ましくは、97質量%以下でもある。

【0176】

また、接着組成物は、任意成分として、例えば、上記と同様の充填剤を含有する。これによって、接着層4を拡散層として機能させることができる。充填剤の配合割合は、接着剤100質量部に対して、例えば、1～50質量部、好ましくは、3～35質量部である。

30

【0177】

接着組成物を調製するには、接着剤と、必要により充填剤とを配合して、均一混合する。

【0178】

これにより、充填剤は、接着剤中に均一に分散混合される。

【0179】

なお、接着組成物の調製において、必要により公知の溶媒を適宜の割合で配合することもできる。

40

【0180】

これにより、接着組成物を調製する。

【0181】

接着層4を形成するには、図2に示すように、調製した接着組成物を、第2基材8の厚み方向一方向（図2における上面）に塗布し、加熱により乾燥する。

【0182】

第2基材8としては、第1基材7と同様のものが用いられる。

【0183】

50

乾燥における加熱条件は、蛍光層 2 の乾燥における加熱条件と同様である。

【0184】

接着剤がシリコン樹脂を含有する場合には、シリコン樹脂は、上記した加熱によって、B ステージとなる。

【0185】

これにより、第 2 基材 8 の上面に積層された接着層 4 を得る。

【0186】

得られた接着層 4 の厚みは、例えば、10 ~ 200 μm 、好ましくは、20 ~ 100 μm である。

【0187】

そして、蛍光封止シート 1 を作製するには、例えば、まず、離型シート 25 の上面に積層された蛍光層 2、第 1 基材 7 の下面に積層された封止層 3、および、第 2 基材 8 の上面に積層された接着層 4 を、それぞれ、用意する。

【0188】

そして、用意した蛍光層 2 の、厚み 50 μm での 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $1.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^6 \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $2.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ である。

【0189】

より具体的には、蛍光層 2 が、B ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から厚み 50 μm に形成される場合には、蛍光層 2 の 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $2.0 \times 10^4 \sim 4.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $4.0 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ である。

【0190】

次に、図 4 (e) が参照されるように、後述する発光ダイオード装置 20 に蛍光封止シート 1 が用いられる場合に、面方向に沿う平板形状に形成されるための、蛍光層 2 について説明する。

【0191】

具体的には、上記貯蔵剪断弾性率 G' を有し、かつ、B ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から蛍光層 2 を形成するには、離型シート 25 に塗布した後における蛍光組成物の乾燥における加熱条件、および / または、蛍光体および充填剤の種類および配合割合を選択する。より具体的には、蛍光組成物の加熱時間を、好ましくは、10 ~ 15 分間に調整する。

【0192】

また、蛍光層 2 が、C ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から厚み 50 μm に形成される場合には、蛍光層 2 の 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $5.0 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^6 \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $6.0 \times 10^5 \sim 1.0 \times 10^6 \text{ Pa}$ である。

【0193】

さらに、蛍光層 2 が蛍光体セラミックプレートから厚み 50 μm に形成される場合には、蛍光層 2 の 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $1 \times 10^{11} \sim 5 \times 10^{11} \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $2 \times 10^{11} \sim 4 \times 10^{11} \text{ Pa}$ である。

【0194】

蛍光層 2 の 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、周波数 1 Hz で、測定温度 25 における動的粘弾性測定にて算出される。次に説明する封止層 3 および接着層 4 の貯蔵剪断弾性率 G' も、上記と同様の方法により算出される。

【0195】

また、用意した封止層 3 の、厚み 140 μm での 25 における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、下記式 (A) を満足するように設定され、好ましくは、下記式 (A') を満足するように設定される。

(蛍光層 2 の貯蔵剪断弾性率 G') / (封止層 3 の貯蔵剪断弾性率 G') ≥ 20

10

20

30

40

50

(A)

20 (蛍光層2の貯蔵剪断弾性率 G') / (封止層3の貯蔵剪断弾性率 G') 30

(A')

蛍光層2の貯蔵剪断弾性率 G' の、封止層3の貯蔵剪断弾性率 G' に対する比(蛍光層2の貯蔵剪断弾性率 G' / 封止層3の貯蔵剪断弾性率 G') が、上記下限に満たない場合には、蛍光層2が変形する場合(図5参照)がある。一方、上記した比が、上記上限を超える場合には、蛍光層2においてクラックが発生する場合がある。

【0196】

具体的には、厚み $140\ \mu\text{m}$ の封止層3の25での貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $1.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4\ \text{Pa}$ 、好ましくは、 $2.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4\ \text{Pa}$ である。

10

【0197】

そのような封止層3は、好ましくは、Bステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成されている。

【0198】

すなわち、上記貯蔵剪断弾性率 G' を有し、かつ、Bステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から封止層3を形成するには、第1基材7に塗布した後における封止組成物の乾燥における加熱条件、および/または、充填剤の種類および配合割合を選択する。

【0199】

また、用意した接着層4は、好ましくは、Bステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成されており、25における貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $1.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4\ \text{Pa}$ である。

20

【0200】

その後、図2に示すように、蛍光層2に、上下から封止層3および接着層4を積層する。具体的には、図2の下向き矢印で示すように、蛍光層2の上面に、封止層3を貼着(転写)する。また、図2の仮想線矢印で示すように、離型シート25を蛍光層2の下面から引き剥がし、続いて、図2の上向き矢印で示すように、蛍光層2の下面に、接着層4を貼着(転写)する。

【0201】

これにより、蛍光封止シート1を得る。

30

【0202】

その後、必要により、蛍光封止シート1を加熱して乾燥する。加熱温度は、例えば、 $40 \sim 140$ 、好ましくは、 $100 \sim 140$ であり、加熱時間は、例えば、 $0.5 \sim 15$ 分間、好ましくは、 $1 \sim 10$ 分間である。

【0203】

次に、この蛍光封止シート1を用いて発光ダイオード装置20を製造する方法について、図3および図4を参照して説明する。

【0204】

まず、この方法では、図3(a)の矢印で示すように、第2基材8を接着層4の下面から引き剥がす。

40

【0205】

続いて、この方法では、図3(b)に示すように、カバー層14を接着層4の下面に貼着する(第1貼着工程)。

【0206】

カバー層14としては、例えば、ガラス、アクリル樹脂などの透明かつ強靱な材料から形成される板などが挙げられる。好ましくは、ガラス板が挙げられる。具体的には、カバー層14としては、例えば、拡散板、レンズなどが挙げられる。

【0207】

また、カバー層14は、接着層4の下面全面に積層される寸法に設定されている。また、カバー層14の厚みは、例えば、 $30 \sim 1,500\ \mu\text{m}$ 、好ましくは、 $50 \sim 1,000$

50

0 μmである。

【0208】

次いで、この方法では、図3(c)の矢印で示すように、第1基材7を封止層3の上面から引き剥がす。

【0209】

次いで、この方法では、図3(d)に示すように、発光ダイオード素子5が実装された基板15を用意し、続いて、基板15、蛍光封止シート1およびカバー層14をプレス機に設置する。

【0210】

基板15は、略平板状をなし、具体的には、絶縁基板の下に、導体層が回路パターンとして積層された積層板から形成されている。絶縁基板は、例えば、シリコン基板、セラミックス基板、ポリイミド樹脂基板などからなり、好ましくは、セラミックス基板、具体的には、サファイア(Al_2O_3)基板からなる。導体層は、例えば、金、銅、銀、ニッケルなどの導体から形成されている。基板15の厚みは、例えば、30~1,500 μm、好ましくは、500~1,000 μmである。

10

【0211】

発光ダイオード素子5は、基板15の下面(厚み方向一方向)に、面方向(厚み方向に直交する方向)に互いに間隔を隔てて複数設けられている。各発光ダイオード素子5は、平面視略矩形形状であって、面方向に広がる断面視略矩形形状に形成されている。各発光ダイオード素子5は、基板15の導体層に対して、フリップ実装接続またはワイヤボンディング接続されている。各発光ダイオード素子5は、青色光を発光する素子である。

20

【0212】

発光ダイオード素子5の厚みは、例えば、50~300 μm、好ましくは、100~200 μmであり、各発光ダイオード素子5の面方向の最大長さは、例えば、500~2,000 μm、好ましくは、1,000~1,500 μmであり、各発光ダイオード素子5間の間隔は、例えば、50~2,000 μm、好ましくは、500~1,000 μmである。

【0213】

プレス機は、基板15、蛍光封止シート1およびカバー層14を厚み方向にプレス可能に構成されており、具体的には、下板10と、下板10の上側に間隔を隔てて配置される上板11とを備えている。

30

【0214】

上板11は、下板10に対して厚み方向において相対移動可能に設けられている。具体的には、上板11および下板10は、蛍光封止シート1および基板15に対して押圧可能に設けられている。また、上板11および下板10は、厚み方向に投影したときに、蛍光封止シート1を含むように、蛍光封止シート1より大きく形成されている。

【0215】

下板10および上板11を形成する材料としては、適宜選択され、例えば、ガラス、ガラス-エポキシ樹脂などの硬質材料などが挙げられる。

【0216】

基板15をプレス機に設置するには、基板15の上面(発光ダイオード素子5が実装される面に対する逆側面)を、図示しない熱剥離シートを介して上板11に仮固定する。

40

【0217】

熱剥離シートは、基板15を上板11に仮固定しながら、その後の加熱によって、基板15から剥離される剥離シートである。熱剥離シートは、市販品を用いることができ、具体的には、リパアルファシリーズ(登録商標、日東電工社製)などを用いることができる。

【0218】

また、蛍光封止シート1およびカバー層14をプレス機に設置するには、カバー層14の下面を下板10の上面に載置する。

50

【0219】

これによって、発光ダイオード素子5は、厚み方向に投影したときに、蛍光封止シート1に含まれるように、それらと間隔を隔てて対向配置される。

【0220】

併せて、蛍光封止シート1の周囲の下板10の上面に、スペーサ12を、蛍光封止シート1を囲むように設ける。

【0221】

スペーサ12は、平面視において蛍光封止シート1を囲み、厚み方向に延びる断面略矩形形状に形成されている。スペーサ12の厚み（厚み方向長さ）は、後述する熱圧着（第2貼着工程）前の蛍光封止シート1の厚みが熱圧着により厚み方向に押し込まれる押し込み量が所望範囲となるように設定されており、具体的には、熱圧着後の蛍光封止シート1、カバー層14および基板15の厚みの総和（図4（e）参照）と同一厚みに設定されている。

10

【0222】

次いで、この方法では、図3（d）の矢印および図4（e）に示すように、封止層3を、各発光ダイオード素子5を被覆するように基板15に貼着する（第2貼着工程）。

【0223】

具体的には、上板11を下板10に向けて押し下げて、基板15と蛍光封止シート1とを熱圧着する。上板11の押し下げは、上板11の周端部の下面がスペーサ12の上面に当接するまで、実施される。押し下げの圧力は、例えば、例えば、0.05～0.5MPa、好ましくは、0.1～0.3MPaである。

20

【0224】

また、上板11の押し下げとともに、基板15、蛍光封止シート1およびカバー層14を加熱する。加熱温度は、例えば、100～200、好ましくは、120～180である。加熱時間は、例えば、1～60分間、好ましくは、2～30分間である。

【0225】

蛍光層2がBステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、シリコン樹脂がCステージとなり、蛍光層2が完全硬化する。

【0226】

そして、蛍光層2および封止層3の貯蔵剪断弾性率 G' が、上記式（A）（好ましくは、上記式（A'））を満足する場合には、蛍光層2の断面形状は、熱圧着前後にわたって実質的に変化せず、具体的には、面方向に沿う平板形状に形成される。

30

【0227】

また、封止層3がBステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、シリコン樹脂がCステージとなり、封止層3が完全硬化する。これによって、発光ダイオード素子5が封止層3に埋設されて封止される。

【0228】

さらに、接着層4がBステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、シリコン樹脂がCステージとなり、蛍光層2が完全硬化する。これによって、カバー層14が接着層4を介して蛍光層2に接着する。

40

【0229】

従って、蛍光層2がBステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から形成されるとともに、封止層3がBステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成され、かつ、接着層4がBステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、蛍光層2、封止層3および接着層4に含有される各シリコン樹脂が、上記した熱圧着により、同時にCステージとなり、蛍光層2、封止層3および接着層4が同時に完全硬化する。

【0230】

一方、蛍光層2がCステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物あるいは蛍光体セ

50

ラミックプレートから形成される一方、封止層 3 が B ステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成され、かつ、接着層 4 が B ステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、封止層 3 および接着層 4 に含有される各シリコン樹脂が、上記した熱圧着により、同時に C ステージとなり、封止層 3 および接着層 4 が同時に完全硬化する。

【0231】

これによって、図 4 (e) に示すように、複数の発光ダイオード素子 5 が封止層 3 によって封止され、カバー層 1 4 が接着層 4 を介して蛍光層 2 に接着した発光ダイオード装置 2 0 をパッケージとして得る。

【0232】

その後、図 4 (f) に示すように、発光ダイオード装置 2 0 をプレス機から取り出して、上下反転させ、続いて、図 4 (f) の 1 点鎖線で示すように、発光ダイオード装置 2 0 を切断 (ダイシング) 加工する。つまり、発光ダイオード装置 2 0 を厚み方向に沿ってダイシングして、複数の発光ダイオード素子 5 に切り分ける。すなわち、図 4 (g) に示すように、発光ダイオード素子 5 のそれぞれを個別化 (個片化) する。

【0233】

そして、この蛍光封止シート 1 によれば、蛍光層 2 を接着層 4 を介してカバー層 1 4 に接着するとともに、封止層 3 によって発光ダイオード素子 5 を封止することができる。

【0234】

しかも、この蛍光封止シート 1 には、蛍光層 2 の厚み方向両面に封止層 3 および接着層 4 が予め設けられているので、発光ダイオード装置 2 0 の製造方法によれば、接着層 4 を介して蛍光層 2 をカバー層 1 4 に貼着し、かつ、封止層 3 を発光ダイオード素子 5 を被覆するように基板 1 5 に貼着することにより、接着層 4 によって蛍光層 2 をカバー層 1 4 に接着しながら、封止層 3 によって発光ダイオード素子 5 を簡易に封止することができる。

【0235】

すなわち、接着層 4、蛍光層 2 および封止層 3 をカバー層 1 4 に順次積層したり、あるいは、封止層 3、蛍光層 2 および接着層 4 を基板 1 5 に順次積層し、各層をその都度加熱する手間を省略することができるので、製造工程を簡略にして、製造コストを低減することができる。

【0236】

詳しくは、蛍光層 2 が B ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から形成されるとともに、封止層 3 が B ステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成され、かつ、接着層 4 が B ステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成される場合には、第 2 貼着工程の熱圧着によって、蛍光層 2、封止層 3 および接着層 4 のいずれのシリコン樹脂も、一度に (一括して) C ステージとなることができ、蛍光層 2、封止層 3 および接着層 4 を一度に完全硬化させることができる。

【0237】

あるいは、蛍光層 2 が C ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物あるいは蛍光体セラミックプレートから形成される一方、封止層 3 が B ステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成され、かつ、接着層 4 が B ステージのシリコン樹脂を含有する接着組成物から形成される場合には、上記した熱圧着によって、封止層 3 および接着層 4 に含有される各シリコン樹脂が、一度に (一括して) C ステージとなることができ、封止層 3 および接着層 4 を一度に完全硬化させることができる。

【0238】

その結果、製造工程を簡略化することができる。

【0239】

そして、発光ダイオード素子 5 が蛍光封止シート 1 によって封止された発光ダイオード装置 2 0 は、封止層 3 によって信頼性を向上させながら、蛍光層 2 によって発光ダイオード素子 5 から発光される光を変換することにより、高エネルギーの光を発光でき、さらに、かかる光をカバー層 1 4 を介して発光することができる。

10

20

30

40

50

【0240】

さらに、この発光ダイオード装置20では、蛍光層2が面方向に沿う平板形状に形成されているので、面方向沿って蛍光層2の厚みを一定にすること、つまり、蛍光層2の厚みの均一性を確保することができる。

【0241】

なお、図3および図4の実施形態では、図3(b)に示すように、まず、カバー層14を接着層4を介して蛍光層2に貼着する第1貼着工程を実施、その後、図4(e)に示すように、封止層3を基板15に貼着する第2貼着工程を実施しているが、第1貼着工程および第2貼着工程の順序は特に限定されず、その逆でもよい。

【0242】

すなわち、例えば、まず、第2貼着工程を実施し、その後、第1貼着工程を実施することもできる。その場合には、第2貼着工程では、加熱することなく、封止層3を基板15に単に圧着する一方、第1貼着工程では、加熱(具体的には、熱圧着)を実施する。第1貼着工程における加熱温度は、上記した第2貼着工程における加熱温度と同様である。

【0243】

さらに、第1貼着工程および第2貼着工程を同時に実施することもできる。

【0244】

このように第1貼着工程および第2貼着工程を適宜変更しても、図3および図4の実施形態と同様の作用効果を奏することができる。

【0245】

図5は、本発明の発光ダイオード装置の他の実施形態(蛍光層が発光ダイオード素子の形状に対応する態様)の断面図を示す。

【0246】

なお、図5において、上記した各部に対応する部材については、同一の参照符号を付し、その詳細な説明を省略する。

【0247】

図5に示すように、蛍光層2を発光ダイオード素子5の形状に対応して、形成することもできる。

【0248】

すなわち、蛍光層2は、面方向に沿いながら、各発光ダイオード素子5を迂回するように、形成されている。

【0249】

詳しくは、蛍光層2には、発光ダイオード素子5のそれぞれの角部(上面および側面の稜線部)13を封止層3を介して被覆する湾曲部6が形成されている。

【0250】

湾曲部6は、蛍光層2において、各発光ダイオード素子5の上面の直上部分において平板状に形成される第1平坦部9と、各発光ダイオード素子5間の基板15の上面の直上部分において平板状に形成される第2平坦部16とを連結しており、第1平坦部9から第2平坦部16に向かって、つまり、発光ダイオード素子5の外側に向かって、湾曲状に傾斜する(垂れる)ように形成されている。

【0251】

上記した形状の蛍光層2を備える発光ダイオード素子5を得るには、蛍光封止シート1を形成するための、図2に示す蛍光層2(厚み50 μ m)および封止層3(厚み140 μ m)の25における貯蔵剪断弾性率G'を、例えば、下記式(B)を満足するように設定し、好ましくは、下記式(B')を満足するように設定し、さらに好ましくは、下記式(B'')を満足するように設定する。

$$(\text{蛍光層2の貯蔵剪断弾性率 } G') / (\text{封止層3の貯蔵剪断弾性率 } G') < 20$$

(B)

$$1 \quad (\text{蛍光層2の貯蔵剪断弾性率 } G') / (\text{封止層3の貯蔵剪断弾性率 } G') \quad 15$$

(B')

10

20

30

40

50

5 (蛍光層 2 の貯蔵剪断弾性率 G') / (封止層 3 の貯蔵剪断弾性率 G'') ≤ 1.5 (B')

具体的には、図 2 に示され、離型シート 25 の上面に形成される、厚み $50 \mu\text{m}$ の蛍光層 2 の貯蔵剪断弾性率 G' は、例えば、 $1.0 \times 10^3 \sim 8.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $1.5 \times 10^3 \sim 7.75 \times 10^4 \text{ Pa}$ 、より好ましくは、 $2.0 \times 10^3 \sim 6.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ である。

【0252】

上記貯蔵剪断弾性率 G' を有する蛍光層 2 は、好ましくは、B ステージのシリコン樹脂を含有する蛍光組成物から形成されるとともに、塗布後における蛍光組成物の乾燥における加熱条件、および/または、蛍光体および充填剤の種類および配合割合を選択する。

10

【0253】

より具体的には、蛍光組成物の加熱温度を、好ましくは、5 分間以上、10 分間未満に調整する。

【0254】

また、図 2 に示され、第 1 基材 7 の下面に形成される、厚み $140 \mu\text{m}$ の封止層 3 の貯蔵剪断弾性率 G'' は、例えば、 $1.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ 、好ましくは、 $2.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ である。

【0255】

上記貯蔵剪断弾性率 G'' を有する封止層 3 は、好ましくは、B ステージのシリコン樹脂を含有する封止組成物から形成されるとともに、第 1 基材 7 に塗布した後における封止組成物の乾燥における加熱条件、および/または、充填剤の種類および配合割合を選択する。

20

【0256】

その後、図 2 の矢印で示すように、蛍光層 2 の上面に、封止層 3 を貼着 (転写) する。また、図 2 の仮想線矢印で示すように、離型シート 25 を蛍光層 2 の下面から引き剥がし、続いて、蛍光層 2 の下面に、接着層 4 を貼着 (転写) する。

【0257】

これにより、蛍光封止シート 1 を得る。

【0258】

その後、必要により、蛍光封止シート 1 を加熱する。加熱温度は、例えば、 $40 \sim 140$ 、好ましくは、 $100 \sim 140$ であり、加熱時間は、例えば、 $0.5 \sim 15$ 分間、好ましくは、 $1 \sim 10$ 分間である。

30

【0259】

その後、上記した図 3 (a) ~ 図 4 (f) の各工程に準じて、発光ダイオード装置 20 を得る。

【0260】

なお、図 3 (d) の矢印および図 4 (e) に示す第 2 貼着工程、すなわち、封止層 3 を、各発光ダイオード素子 5 を被覆するように基板 15 に貼着する工程において、蛍光層 2 および封止層 3 の貯蔵剪断弾性率 G' が、上記式 (B) (好ましくは、上記式 (B')) を満足する場合には、蛍光層 2 の断面形状は、熱圧着前後にわたって変化し、具体的には、図 5 に示すように、湾曲部 6、第 1 平坦部 9 および第 2 平坦部 16 が形成される形状に形成される。

40

【0261】

また、発光ダイオード素子 5 が封止層 3 に埋設されるとともに、封止層 3 の上側部分の断面形状は、上記した蛍光層 2 に対応する形状に形成される。

【0262】

さらに、カバー層 14 が接着層 4 を介して蛍光層 2 に接着するとともに、接着層 4 の下側部分の断面形状は、上記した蛍光層 2 に対応する形状に形成される。

【0263】

そして、蛍光層 2 が上記した形状であれば、発光ダイオード装置 20 の光角度依存性を

50

抑制することができる。また、湾曲部 6 および第 2 平坦部 16 によって、発光ダイオード素子 5 から側方（面方向）に向かって発光される光の漏れを防止することもできる。具体的には、封止層 3 を通過する一方、蛍光層 2 を通過することなく発光される青色光の漏れを有効に防止することができる。

【0264】

なお、図 2 の実施形態では、まず、蛍光層 2、封止層 3 および接着層 4 をそれぞれ用意し、次いで、図 2 の矢印で示すように、蛍光層 2 の上面に封止層 3 を転写するとともに、蛍光層 2 の下面に接着層 4 を転写する転写法によって、蛍光封止シート 1 を製造している。しかし、例えば、図示しないが、蛍光層 2 の上面に、例えば、封止組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、封止層 3 を形成するとともに、例えば、蛍光層 2 の下面に、接着組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、接着層 4 を形成することもできる（第 1 の直接塗布法）。

10

【0265】

あるいは、第 1 基材 7 の下面に、封止組成物を塗布し、続いて、加熱により乾燥して、封止層 3 を形成し、次いで、封止層 3 の下面に、蛍光組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、蛍光層 2 を形成し、その後、蛍光層 2 の下面に、接着組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、接着層 4 を形成することもできる（第 2 の直接塗布法）。その後、必要により、接着層 4 の下面に第 2 基材 8 を積層する。

【0266】

さらには、上記の逆、すなわち、第 2 基材 8 の上面に、接着組成物から接着層 4 を形成し、次いで、接着層 4 の上面に、蛍光組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、蛍光層 2 を形成し、その後、蛍光層 2 の上面に、封止組成物を直接塗布し、続いて、加熱により乾燥して、封止層 3 を形成することもできる（第 3 の直接塗布法）。その後、必要により、封止層 3 の上面に第 1 基材 7 を積層する。

20

【0267】

第 1 ~ 第 3 の直接塗布法においても、蛍光層 2 および封止層 3 の貯蔵剪断弾性率 G' は、少なくとも上記式 (A) または (B) を満足する。

【実施例】

【0268】

以下に調製例および実施例を示し、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は、何らそれらに限定されない。

30

【0269】

調製例 1

(シリコーン樹脂の調製)

40 に加温したシラノール基両末端ポリシロキサン（式 (1) 中、 R_1 がすべてメチル、 n の平均が 155、数平均分子量 11,500、シラノール基当量 0.174 mmol/g) 2031 g (0.177 mol) に対して、ビニルトリメトキシシラン 15.76 g (0.106 mol)、および、(3-グリシドキシプロピル)トリメトキシシラン 2.80 g (0.0118 mol) とを配合して、攪拌混合した。

【0270】

40

なお、ビニルトリメトキシシランおよび(3-グリシドキシプロピル)トリメトキシシランのメトキシシリル基 (SiOCH_3) に対する、シラノール基両末端ポリジメチルシロキサンのシラノール基 (SiOH) のモル比 (シラノール基のモル数 / メトキシシリル基の総モル数) は、1 / 1 であった。

【0271】

攪拌混合後、水酸化テトラメチルアンモニウムのメタノール溶液 (縮合触媒、濃度 10 質量%) 0.97 mL (触媒含量: 0.88 ミリモル、シラノール基両末端ポリジメチルシロキサン 100 mol に対して 0.50 mol に相当) を加え、40 で 1 時間攪拌した。得られた混合物 (オイル) を 40 の減圧下 (10 mmHg) で、1 時間攪拌しながら、揮発分 (メタノールなど) を除去した。

50

【0272】

その後、系を常圧に戻した後、反応物に、オルガノヒドロジェンシロキサン（信越化学工業社製、数平均分子量2,000、ヒドロシリル基当量7.14 mmol/g）44.5 g（0.022 mol）を加え、40℃で1時間攪拌した。

【0273】

なお、オルガノヒドロジェンシロキサンのヒドロシリル基（SiH基）に対する、ビニルトリメトキシシランのビニル基（ $\text{CH}_2 = \text{CH} -$ ）のモル比（ $\text{CH}_2 = \text{CH} - / \text{SiH}$ ）は、1/3であった。

【0274】

その後、系に、白金-カルボニル錯体のシロキサン溶液（付加触媒、白金濃度2質量%）0.13 mL（白金として、オルガノヒドロジェンシロキサン100質量部に対して 5.8×10^{-3} 質量部に相当）を加えて、40℃で10分間攪拌して、シリコーン樹脂を調製した。

10

【0275】

実施例1

1. 蛍光層の作製

調製例1のシリコーン樹脂100質量部に、充填剤（アエロジル976S、シリカ微粒子、球形状、平均粒径10~15 nm、アエロジル社製）5質量部と、蛍光体（YAG:Ce、球形状、平均粒子径17 μm）10質量部とを配合し、1時間攪拌混合して、蛍光組成物を調製した。

20

【0276】

その後、蛍光組成物を離型シートの上面に塗布して、135℃で10分間、加熱により乾燥させて、厚み50 μmの蛍光層を作製した（図2参照）。

【0277】

なお、蛍光層のシリコーン樹脂は、Bステージであった。

2. 封止層の作製

調製例1のシリコーン樹脂100質量部に、充填剤（アエロジル976S、シリカ微粒子、球形状、平均粒径10~15 nm、アエロジル社製）5質量部を配合し、1時間攪拌混合して、接着組成物を調製した。

【0278】

その後、接着組成物を第1基材（PET製）の下面に塗布して、135℃で6分間、加熱により乾燥させて、厚み140 μmの封止層を作製した（図2参照）。

30

【0279】

なお、封止層のシリコーン樹脂は、Bステージであった。

3. 接着層の作製

調製例1のシリコーン樹脂100質量部に、充填剤（アエロジル976S、シリカ微粒子、球形状、平均粒径10~15 nm、アエロジル社製）5質量部を配合し、1時間攪拌混合して、接着組成物を調製した（図2参照）。

【0280】

その後、接着組成物を第2基材（PET製）の上面に塗布して、135℃で6分間、加熱により乾燥させて、厚み40 μmの接着層を作製した（図2参照）。

40

【0281】

なお、接着層のシリコーン樹脂は、Bステージであった。

4. 蛍光封止シートの作製

蛍光層の上面に、封止層を貼着するとともに（図2の下向き矢印参照）、離型シートを蛍光層の下面から引き剥がし（図2の仮想線矢印参照）、続いて、蛍光層の下面に、接着層を貼着し、その後、135℃で10分間、加熱により乾燥させることにより、厚み230 μmの蛍光封止シートを作製した（図1参照）。

5. 発光ダイオード装置の作製

第2基材を接着層の下面から引き剥がし（図3(a)の矢印参照）、次いで、厚み15

50

0 μmのガラス板からなるカバー層を接着層の下面に貼着した（第1貼着工程、図3（b）参照）。

【0282】

次いで、第1基材を封止層の上面から引き剥がした（図3（c）の矢印参照）。

【0283】

次いで、厚み100 μm、1,000 μm×1,000 μmの複数の発光ダイオード素子を実装された基板を用意し、基板、蛍光封止シートおよびカバー層をプレス機に設置した（図3（d）参照）。

【0284】

プレス機の蛍光封止シートの周囲にある下板に、厚み220 μmのスペーサを、蛍光封止シートおよびカバー層を囲むように設けた。

【0285】

また、基板の上面を、図示しない熱剥離シート（リバアルファ、日東電工社製）を介して上板に仮固定した。また、カバー層の下面を下板の上面に載置した。

【0286】

次いで、封止層を、各発光ダイオード素子を被覆するように基板に貼着した（図3（d）の矢印および図4（e）参照、第2貼着工程）。

【0287】

具体的には、上板を下板に向けて押し下げながら、基板と蛍光封止シートとカバー層とを、0.22 MPa、160 で、10分間、熱圧着した。

【0288】

これによって、発光ダイオード素子を封止層に埋設した。また、カバー層が接着層を介して蛍光層に接着した。なお、蛍光層は、面方向に沿う平板形状であった（図4（f）参照）。また、蛍光層、封止層および接着層のシリコン樹脂は、Cステージとなった。

【0289】

これによって、発光ダイオード装置を得た。

【0290】

その後、発光ダイオード装置をプレス機から取り出してダイシング加工して、複数の発光ダイオード素子が複数個に切り分けられた発光ダイオード装置を得た（図4（f）の1点鎖線および図4（g）参照）。

【0291】

実施例2

1. 蛍光層の作製において、蛍光組成物の乾燥における加熱時間を10分間から5分間に変更した以外は、実施例1と同様にして、蛍光封止シートを作製し、続いて、発光ダイオード装置を得た。

【0292】

また、発光ダイオード装置において、蛍光層は、第1平坦部および第2平坦部を連結し、発光ダイオード素子の外側に向かって下方に湾曲状に傾斜するように形成されていた（図5参照）。また、封止層および接着層は、上記した蛍光層の形状に対応する形状に形成された。

【0293】

実施例3

1. 蛍光層の作製において、蛍光組成物の乾燥における加熱時間を10分間から15分間に変更した以外は、実施例1と同様にして、蛍光封止シートを作製し、続いて、発光ダイオード装置を得た。

【0294】

なお、蛍光層は、面方向に沿う平板形状であった（図4（f）参照）。

【0295】

実施例4

1. 蛍光層の作製において、蛍光組成物の乾燥における加熱時間を10分間から7分

10

20

30

40

50

間に変更した以外は、実施例 1 と同様にして、蛍光封止シートを作製し、続いて、発光ダイオード装置を得た。

【0296】

また、発光ダイオード装置において、蛍光層は、第 1 平坦部および第 2 平坦部を連結し、発光ダイオード素子の外側に向かって下方に湾曲状に傾斜するように形成されていた（図 5 参照）。また、封止層および接着層は、上記した蛍光層の形状に対応する形状に形成された。

【0297】

（評価）

（貯蔵剪断弾性率 G' ）

各実施例で作製した蛍光層（「1. 蛍光層の作製」参照）、封止層（「2. 封止層の作製」参照）、および、接着層（「3. 接着層の作製」参照）の 25 における貯蔵剪断弾性率 G' を、レオメータを用いる動的粘弾性測定により算出した。

10

【0298】

測定条件を以下に記載する。

【0299】

測定装置：レオメータ（ARES、Rheometrics 社製）

測定温度：25

周波数：1 Hz

結果を表 1 に記載する。

20

【0300】

【表 1】

	実施例1		実施例2		実施例3		実施例4	
	G'(Pa)	比(倍)	G'(Pa)	比(倍)	G'(Pa)	比(倍)	G'(Pa)	比(倍)
蛍光層	1.32×10^5	25.8	5.58×10^4	10.9	1.53×10^5	30	7.65×10^4	15
封止層	5.10×10^3	1	5.10×10^3	1	5.10×10^3	1	5.10×10^3	1
接着層								

表1

10

20

30

40

【符号の説明】

【0301】

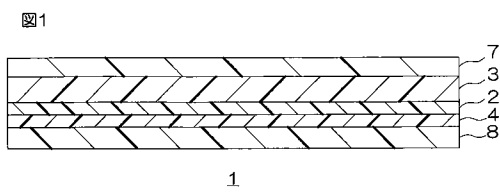
- 1 蛍光封止シート
- 2 蛍光層
- 3 封止層
- 4 接着層
- 5 発光ダイオード素子
- 14 カバー層

50

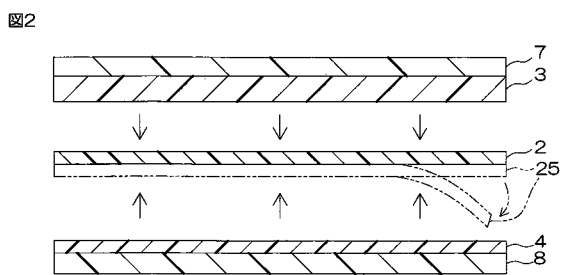
15 基板

20 発光ダイオード装置

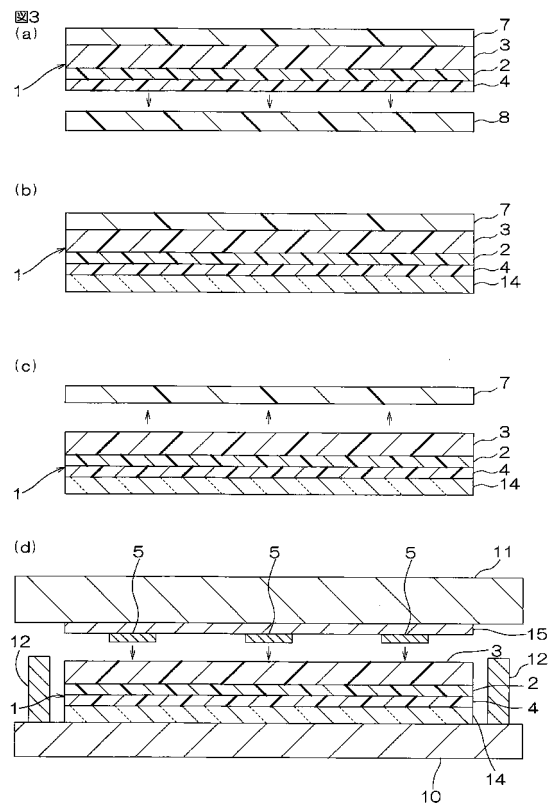
【図1】



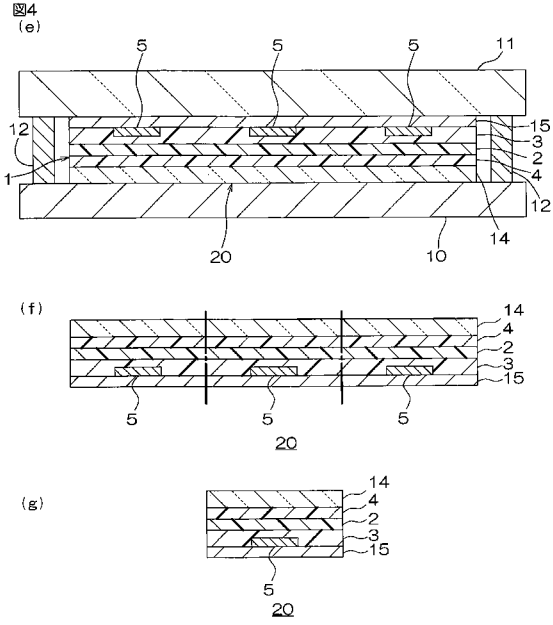
【図2】



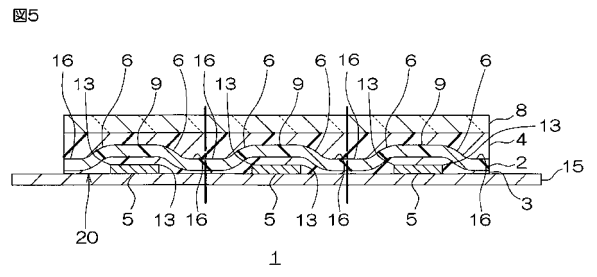
【図3】



【 図 4 】



【 図 5 】



フロントページの続き

(72)発明者 野呂 弘司

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内

Fターム(参考) 4M109 AA01 BA03 CA26 DB14 EA10 EE11 GA01

5F142 AA82 BA32 CD02 CD15 CD18 CD32 CG05 CG13 CG32 DA12

DA41 DA63 DA65 DA73 DA80 FA24 FA28 FA42 FA48