



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2010-0131500
 (43) 공개일자 2010년12월15일

- | | |
|--|--|
| <p>(51) Int. Cl.
 C08G 79/00 (2006.01) C08G 77/04 (2006.01)
 H01L 33/00 (2010.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2010-7023999(분할)</p> <p>(22) 출원일자(국제출원일자) 2006년09월22일
 심사청구일자 없음</p> <p>(62) 원출원 특허 10-2008-7005620
 원출원일자(국제출원일자) 2006년09월22일
 심사청구일자 2008년03월07일</p> <p>(85) 번역문제출일자 2010년10월26일</p> <p>(86) 국제출원번호 PCT/JP2006/318868</p> <p>(87) 국제공개번호 WO 2007/034919
 국제공개일자 2007년03월29일</p> <p>(30) 우선권주장
 JP-P-2005-276756 2005년09월22일 일본(JP)</p> | <p>(71) 출원인
 미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤
 일본 도쿄도 미나토꾸 시바 4초메 14방 1고</p> <p>(72) 발명자
 가토 하나코
 일본 후쿠오카켄 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사
 키시로이시 1방 1고 가부시키가이샤 미쓰비시 가
 가꾸 가가꾸기슈즈켄큐 센타 나이
 모리 유타카
 일본 후쿠오카켄 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사
 키시로이시 1방 1고 가부시키가이샤 미쓰비시 가
 가꾸 가가꾸기슈즈켄큐 센타 나이
 (뒷면에 계속)</p> <p>(74) 대리인
 특허법인코리아나</p> |
|--|--|

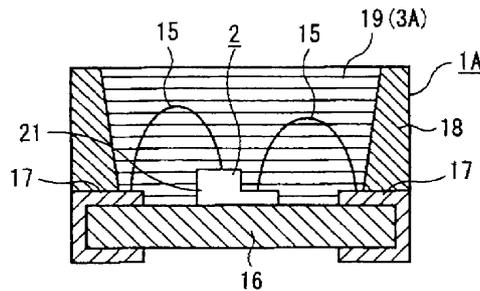
전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 반도체 발광 디바이스용 부재 및 그 제조 방법, 및 그것을 이용한 반도체 발광 디바이스

(57) 요약

투명성, 내광성, 내열성이 우수하고, 장기간 사용해도 크랙이나 박리를 일으키는 일 없이 반도체 발광 디바이스를 봉지하여, 형광체를 유지할 수 있는, 신규한 반도체 발광 디바이스용 부재를 제공하기 위하여, (1) 세라믹 또는 금속의 표면에 존재하는, 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖고, (2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하이며, (3) 중심 파장이 400nm 이상 450nm 이하이고, 또한 파장이 385nm 를 초과하고 500nm 이하인 광을, 파장 436nm 에 있어서의 조도가 4500W/m² 가 되도록 24 시간 조사한 후에, 육안에 의해 변화가 관찰되지 않고, (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이도록 한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

고바야시 히로시

일본 후쿠오카켄 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사
키시로이시 1방 1고 가부시킴가이샤 미쓰비시 가가
꾸 가가쿠기쥬츠겐큐 센타 나이

도무라 츠바사

일본 후쿠오카켄 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사
키시로이시 1방 1고 가부시킴가이샤 미쓰비시 가가
꾸 가가쿠기쥬츠겐큐 센타 나이

야마자키 마사노리

일본 가나가와켄 요코하마시 아오바쿠 가모시다쵸
1000반치 가부시킴가이샤 미쓰비시 가가꾸 가가쿠
기쥬츠겐큐 센타 나이

아베 마리

일본 가나가와켄 요코하마시 아오바쿠 가모시다쵸
1000반치 가부시킴가이샤 미쓰비시 가가꾸 가가쿠
기쥬츠겐큐 센타 나이

특허청구의 범위

청구항 1

- (1) 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖고,
- (2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하이며,
- (3) 중심 파장이 400nm 이상 450nm 이하이고, 또한 파장이 385nm 를 초과하고 500nm 이하인 광을, 파장 436nm 에 있어서의 조도가 4500W/m² 가 되도록 24 시간 조사한 후에, 육안에 의해 변화가 관찰되지 않고,
- (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 2

- (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서,
 - (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및
 - (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를 적어도 1 개 가짐과 함께,
- (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며,
- (2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 3

- (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서,
 - (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및
 - (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를 적어도 1 개 가짐과 함께,
- (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며,
- (6) 실라놀 함유율이 0.01 중량% 이상 10 중량% 이하인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 4

- (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서,
 - (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및
 - (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를, 적어도 1 개 가짐과 함께,
- (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며,
- (7) Pt 및 Rh 의 합계 함유율이 0.1ppm 이하인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 5

- 제 2 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,
- 상기 피크를 복수개 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 6

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

(8) Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb 및 B 의 합계 함유율이 20 중량% 이상인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 7

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

막두께 1.0mm 에서의 반도체 발광 디바이스의 발광 파장에 있어서의 광투과율이 60% 이상인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 8

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

무기 입자를 함유하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재.

청구항 9

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 기재된 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법으로서,

하기 일반식 (1) 로 표시되는 화합물 및/또는 그 올리고머를 가수 분해·중축합하여 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

[화학식 1]



(식 (1) 중,

M 은 규소, 알루미늄, 지르코늄 및 티탄에서 선택되는 적어도 1 종의 원소를 나타내고,

X 는 가수 분해성기를 나타내고,

Y^1 은 1 개의 유기기를 나타내고,

m 은 M 의 가수(價數)를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고,

n 은 X 기의 수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타낸다. 단, $m \geq n$ 이다.)

청구항 10

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 기재된 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법으로서,

하기 일반식 (2) 로 표시되는 화합물 및/또는 그 올리고머를 가수 분해·중축합하여 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

[화학식 2]



(식 (2) 중,

M 은 규소, 알루미늄, 지르코늄 및 티탄에서 선택되는 적어도 1 종의 원소를 나타내고,

X 는 가수 분해성기를 나타내고,

Y^1 은 1 개의 유기기를 나타내고,

Y^2 는 u 개의 유기기를 나타내고,

s 는 M 의 가수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고,
 t 는 1 이상, s-1 이하의 정수를 나타내고,
 u 는 2 이상의 정수를 나타낸다.)

청구항 11

제 9 항에 있어서,
 가수 분해율이 80% 이상 500% 이하인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 12

제 9 항에 있어서,
 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정이, 그 용매의 비점 미만의 온도에서 용매를 실질적으로 제거하는 제 1 건조 공정과, 용매의 비점 이상의 온도에서 건조시키는 제 2 건조 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 13

제 9 항에 있어서,
 상기 중축합물을 건조시키기 전에, 상기 중축합물로부터 상기 용매를 증류 제거하는 공정을 구비하는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 14

제 9 항에 있어서,
 가수 분해·중축합을 금속 작물 촉매의 존재하에서 행하는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 15

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 기재된 반도체 발광 디바이스용 부재를 적어도 구비하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스.

청구항 16

제 10 항에 있어서,
 가수 분해율이 80% 이상 500% 이하인 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 17

제 10 항에 있어서,
 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정이, 그 용매의 비점 미만의 온도에서 용매를 실질적으로 제거하는 제 1 건조 공정과, 용매의 비점 이상의 온도에서 건조시키는 제 2 건조 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 18

제 10 항에 있어서,
 상기 중축합물을 건조시키기 전에, 상기 중축합물로부터 상기 용매를 증류 제거하는 공정을 구비하는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

청구항 19

제 10 항에 있어서,

가수 분해·중축합을 금속 착물 촉매의 존재하에서 행하는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 신규한 반도체 발광 디바이스용 부재 및 그 제조 방법, 그리고 그것을 이용한 반도체 발광 디바이스에 관한 것이다. 자세하게는, 자외선 및 열에 대하여 높은 내구성을 갖고, 투명성, 밀착성이 우수하고, 높은 굴절률을 갖고, 광추출 효율도 우수한 반도체 발광 디바이스용 부재 및 그 제조 방법, 그리고 이것을 이용한 반도체 발광 디바이스에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 발광 다이오드 (light emitting diode : 이하 적절히 「LED」라고 약칭한다) 나 반도체 레이저 등의 반도체 발광 디바이스에 있어서는, 반도체 발광 소자를 투명한 수지 등의 부재 (반도체 발광 디바이스용 부재) 에 의해 봉지한 것이 일반적이다.

[0003] 이 반도체 발광 디바이스용 부재로서는, 예를 들어 에폭시 수지가 이용되고 있다. 또한, 이 봉지 수지 중에 형광체 등의 안료를 함유시킴으로써, 반도체 발광 소자로부터의 발광 파장을 변환하는 것 등이 알려져 있다.

[0004] 그러나, 에폭시 수지는 흡습성이 높기 때문에, 반도체 발광 디바이스를 장시간 사용했을 때에 발생하는 반도체 발광 소자로부터의 열에 의해 크랙이 생기거나, 또한 수분의 침입에 의해 형광체나 발광 소자가 열화되는 등의 과제가 있었다.

[0005] 또한 최근, 발광 파장의 단파장화에 수반하여 에폭시 수지가 열화되어 착색되기 때문에, 장시간의 점등 및 고출력에서의 사용에 있어서는 반도체 발광 디바이스의 휘도가 현저히 저하된다는 과제도 있었다.

[0006] 이러한 과제에 대하여, 에폭시 수지의 대체품으로서 내열성, 자외내광성이 우수한 실리콘 수지가 사용되게 되었다. 그러나, 실리콘 수지는 부드러기 때문에 흠집이 생기기 쉽고, 밀착성, 투명성, 내광성은 아직도 불충분하였다. 이에 대하여, 내열성, 자외내광성이 우수한 재료로서, 무기계 봉지재나 이것을 이용한 반도체 발광 디바이스가 제안되어 있다 (예를 들어, 특허 문헌 1 ~ 5 참조).

[0007] [특허 문헌 1] 일본 특허공보 제3275308호

[0008] [특허 문헌 2] 일본 공개특허공보 2003-197976호

[0009] [특허 문헌 3] 일본 공개특허공보 2004-231947호

[0010] [특허 문헌 4] 일본 공개특허공보 2002-33517호

[0011] [특허 문헌 5] 일본 공개특허공보 2002-203989호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0012] 그러나, 용융 유리 등의 무기 재료는 취급 온도가 350℃ 이상으로 높아, 발광 소자에 손상을 주기 때문에, 공업적으로 실현되어 있지 않았다.

[0013] 또한, 졸겔법에 의해 제조되는 유리에서는, 반도체 발광 디바이스용 부재로서 성형할 때의 경화 수축에 의한 크랙의 발생 및 박리의 과제가 있고, 장기간에 걸쳐 두꺼운 막 상태에서 안정된 것은 아직 얻지 못하였다.

[0014] 예를 들어, 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에는, 4 관능의 알콕시실란을 이용하여 유리 재료를 형성하는 기술이 기재되어 있다. 그러나, 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에 기재된 기술에 의해 얻어지는 무기 재료에 관하여 말하면, 4 관능의 알콕시실란의 가수 분해액을 반도체 발광 디바이스에 도포하고, 반도체 발광 디바이스의 성능을 해치지 않는 150℃ 정도의 마일드한 경화 온도에서 수 시간 정도 경화시키는 경우, 얻어지는 유리 재료는, 통상 수십 중량% 이상의 실라놀을 함유하는 불완전한 유리체가 되어 있었다. 따라서, 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에 기재된 기술로부터는, 용융법 유리와 같이 실로 실록산 결합만으로 이루어지는 유리체를 얻을 수는 없었다.

- [0015] 이것은, 일반적인 유기 수지와 달리, 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에서 이용한 무기 재료는 가교점이 매우 많기 때문에, 구조의 속박이 크고, 반응성 말단이 고립되어 축합할 수 없기 때문이라고 추찰(推察)된다. 이러한 유리체는 치밀하지 않고, 또한, 그 표면은 실리카 겔과 마찬가지로 매우 친수성이 높은 상태가 되기 때문에, 충분한 봉지 능력을 갖지 않는다.
- [0016] 또한, 일반적으로, 250℃ 이상의 가열에 의해, 이러한 반응하기 어려운 실라놀은 아주 조금 감소를 시작하여, 통상 350℃ 이상, 바람직하게는 400℃ 이상의 고온에서 소성하면 실라놀의 양을 적극적으로 감소시킬 수 있다. 그러나, 이것을 이용하여 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에 기재된 무기 재료로부터 실라놀을 제거하고자 했다 하더라도, 반도체 발광 디바이스의 내열 온도는 통상 260℃ 이하이기 때문에, 실현은 곤란하다.
- [0017] 또한, 4 관능의 알콕시실란은 탈수·탈알코올 축합시에 이탈하는 성분량이 많기 때문에, 본질적으로 경화시의 수축률이 크다. 게다가, 4 관능의 알콕시실란은 가교도가 높기 때문에, 건조 공정에서, 희석 용제의 일부가 증발한 표면 부분으로부터 경화가 시작되어, 용제를 포함한 단단한 겔체를 형성하고 나서 내부의 용제를 방출하는 경향이 있기 때문에, 용매 증발에 수반하는 수축량도 커진다. 이 때문에, 특허 문헌 1 이나 특허 문헌 2 에 기재된 무기 재료에서는, 결과적으로 수축에 의한 큰 내부 응력이 발생하여 크랙이 다발한다. 따라서, 4 관능 알콕시실란만을 원료로 하여 반도체 발광 디바이스용 부재로서 유용한 큰 벌크체나 후막(厚膜)을 얻는 것은 곤란하였다.
- [0018] 또한, 예를 들어, 특허 문헌 3 에는, 유기기를 함유하는 실란 화합물을 원료로 하여, 졸겔법에 의해 3 차원형의 형광체층을 치수 정밀하게 제작하는 기술이 기재되어 있다. 그러나, 특허 문헌 3 에는 가교도에 대한 상세한 기재는 없고, 또한, 특허 문헌 3 에 기재된 무기 재료를 얻기 위해서는 고농도의 형광체 입자를 필수로 하고, 실질적으로는 이것이 골재로서 작용하여 3 차원의 형상을 유지하기 때문에, 무기 재료 중에 형광체를 함유하지 않는 경우, 투명하고 크랙이 없는 후막형의 유리 형상 도포물을 얻을 수는 없었다.
- [0019] 또한, 특허 문헌 3 에 기재된 기술에서는, 촉매로서 아세트산이 사용되고 있지만, 얻어지는 무기 재료로부터 아세트산이 제거되어 있지 않기 때문에, 아세트산이 반도체 발광 소자에 악영향을 미친다. 또한, 특허 문헌 3 에 기재된 무기 재료를 형성하는 경우에는, 경화에 400℃ 의 고온을 요하기 때문에, 반도체 발광 디바이스와 함께 가열하는 것은 실질적으로 불가능하고, 또한 고온에 있어서의 무리한 축합에 의해 그 구조에 변형이 생겨, 크랙 발생이 억제되지 않는다.
- [0020] 또한, 예를 들어, 특허 문헌 4 에는, 실리카 또는 실록산을 골격으로 하는 무기물 졸에 무기 광산란제를 혼합하여 얻은 무기 코팅제를 도포하여 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻는 기술이 기재되어 있다. 그러나, 특허 문헌 4 에 기재된 무기 재료에는 무기 광산란제가 필수이며, 또한 특허 문헌 4 에는 원료 및 제조 방법의 상세한 기재가 없어, 정확하게 기술을 재현하는 것은 불가능하다.
- [0021] 또한, 예를 들어, 특허 문헌 5 에는, 졸겔법 유리를 도포하여 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻는 기술이 기재되어 있다. 그러나, 특허 문헌 3 과 마찬가지로, 특허 문헌 5 에 기재된 무기 재료를 얻으려면 형광체가 필수이다. 또한, 이 형광체가 골재로서 역할하여, 얻어지는 무기 재료는 후막으로 되어 있지만, 막두께 100 μ m 를 초과하는 것은 아니다. 또한, 특허 문헌 5 에는 원료나 제법이 기재되어 있지 않아, 일반적인 알콕시실란을 사용하여 안정적으로 기술을 재현하는 것은 곤란하다.
- [0022] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재에 요구되는 특성으로서 고굴절률이 있다. 일반적으로 반도체 발광체는 고굴절률 (굴절률 $n=2.5$ 전후) 을 갖고, 그 발광은 공기 ($n=1.0$) 와의 계면에서 그 대부분이 전반사되어, 발광체내에 흡수되어 버리기 때문에, 발광의 극히 일부밖에 외부로 취출할 수 없다. 여기서, 양자의 중간의 굴절률을 갖는 투명층을 발광체 상에 형성하면, 전반사가 경감되어 광출력이 향상되어, 고휘도의 반도체 발광 디바이스를 얻을 수 있다.
- [0023] 종래, 반도체 발광 디바이스용 부재로서 이용되어 온 에폭시 수지는, 굴절률이 $n=1.55$ 정도로, 유용한 광취출 재료였다. 그러나, 최근의 발광 파장의 단파장화 및 고출력화에 의해, 에폭시 수지는 열화되어 버리기 때문에, 사용하는 것이 곤란해져, 대체할 수지가 요망되고 있었다.
- [0024] 그러나, 실리콘 수지나, 졸겔법에 의한 유리 등의 무기 봉지체는, 굴절률이 $n=1.41$ 부근으로 낮아, 충분한 휘도를 얻을 수 없었다. 또한, 페닐기를 도입하고 $n=1.53$ 부근으로 한 고굴절률 실리콘 수지도 개발되어 있지만, 경화 촉매와의 상호 작용에 의해 페닐기의 변성·황변이 일어나기 쉬워 내열성이 떨어지는 것이었다. 또한, 가교도를 조정하지 않는 종래의 졸겔법에 의한 유리는 비교적 고굴절률화가 용이하지만, 크랙·박리가 일어나기 쉽고, 통상적으로는 박막밖에 형성할 수 없기 때문에, 반도체 발광 디바이스용 부재로서 유용하지 않

았다.

[0025] 이와 같이, 고굴절의 유기기나 무기 산화물 입자를 도입함으로써 고굴절화가 시도되어 왔지만, 고굴절률에 더하여 투명성, 내크랙성, 밀착성, 및 열·자외광에 대한 내구성을 균형 있게 겸비한 반도체 발광 디바이스용 부재는 발견되지 않았다. 이상의 배경으로부터, 고굴절률이고 고내구성인 반도체 발광 디바이스용 부재가 요구되고 있었다.

[0026] 본 발명은, 상기 서술한 과제를 감안하여 이루어진 것이다. 즉, 본 발명의 목적은 높은 굴절률을 갖고, 광취출 효율이 우수한 고휘도의 반도체 발광 디바이스를 얻을 수 있음과 함께, 투명성, 내광성, 내열성이 우수하고, 장기간 사용해도 크랙이나 박리를 발생시키는 일 없이 반도체 발광 디바이스를 봉지하여, 형광체를 유지하는 것이 가능한, 신규한 반도체 발광 디바이스용 부재를 제공하는 것에 있다.

과제의 해결 수단

[0027] 본 발명자들은 상기 목적을 달성하기 위하여 예의 검토를 거듭한 결과, 고체 Si-핵 자기 공명 (nuclear magnetic resonance : 이하 적절히 「NMR」이라 한다.) 스펙트럼에 있어서 특정 피크를 가짐과 함께, 규소 등의 특정 원소의 합계 함유율이 특정 값 이상이고, 또한, 소정의 조건에 있어서의 굴절률이 특정 범위에 있는 고분자가, 반도체 발광 디바이스용 부재로 했을 때에, 광취출 효율을 향상시키는 것이 가능함과 함께, 후막화가 가능하고, 후막부에 있어서도 크랙의 발생이 억제되고, 또한 밀착성, 내열성, 투명성도 우수한 것이 됨을 알아내어, 본 발명을 완성시켰다.

[0028] 즉, 본 발명의 요지는, (1) 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖고, (2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하이며, (3) 중심 파장이 400nm 이상 450nm 이하이고, 또한 파장이 385nm 를 초과하고 500nm 이하인 광을, 파장 436nm 에 있어서의 조도가 4500W/m² 가 되도록 24 시간 조사한 후에, 육안에 의해 변화가 관찰되지 않고, (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상인 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있다 (청구항 1).

[0029] 본 발명의 다른 요지는, (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서, (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및 (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를 적어도 1 개 가짐과 함께, (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며, (2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하인 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있다 (청구항 2).

[0030] 본 발명의 또 다른 요지는, (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서, (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및 (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를 적어도 1 개 가짐과 함께, (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며, (6) 실라놀 함유율이 0.01 중량% 이상 10 중량% 이하인 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있다 (청구항 3).

[0031] 본 발명의 또 다른 요지는, (5) 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서, (i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및 (ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를, 적어도 1 개 가짐과 함께, (4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이며, (7) Pt 및 Rh 의 합계 함유율이 0.1ppm 이하인 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있다 (청구항 4).

[0032] 여기서, 그 반도체 발광 디바이스용 부재는 상기 피크를 복수개 갖는 것이 바람직하다 (청구항 5).

[0033] 또한, 그 반도체 발광 디바이스용 부재는, (8) Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb 및 B 의 합계 함유율이 20 중량% 이상인 것이 바람직하다 (청구항 6).

[0034] 또한, 막두께 1.0mm 에서의 반도체 발광 디바이스의 발광 파장에 있어서의 광투과율이 60% 이상인 것이 바람직하다 (청구항 7).

[0035] 또한, 무기 입자를 함유하여 이루어지는 것이 바람직하다 (청구항 8).

[0036] 본 발명의 또 다른 요지는, 상기 서술한 반도체 발광 디바이스용 부재를 제조하는 방법으로서, 하기 일반식 (1)로 표시되는 화합물 및/또는 그 올리고머를 가수 분해·중축합하여 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법에 있다 (청구항 9).

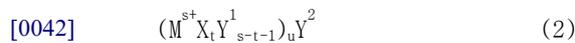
[0037] [화학식 1]



[0039] (식 (1) 중, M 은 규소, 알루미늄, 지르코늄 및 티탄에서 선택되는 적어도 1 종의 원소를 나타내고, X 는 가수 분해성기를 나타내고, Y¹ 은 1 개의 유기기를 나타내고, m 은 M 의 가수(價數)를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고, n 은 X 기의 수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타낸다. 단, m ≥ n 이다.)

[0040] 본 발명의 또 다른 요지는, 상기 서술한 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법으로서, 하기 일반식 (2)로 표시되는 화합물 및/또는 그 올리고머를 가수 분해·중축합하여 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법에 있다 (청구항 10).

[0041] [화학식 2]



[0043] (식 (2) 중, M 은 규소, 알루미늄, 지르코늄 및 티탄에서 선택되는 적어도 1 종의 원소를 나타내고, X 는 가수 분해성기를 나타내고, Y¹ 은 1 개의 유기기를 나타내고, Y² 는 u 개의 유기기를 나타내고, s 는 M 의 가수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고, t 는 1 이상, s-1 이하의 정수를 나타내고, u 는 2 이상의 정수를 나타낸다.)

[0044] 여기서, 가수 분해율이 80% 이상 500% 이하인 것이 바람직하다 (청구항 11).

[0045] 또한, 얻어지는 중축합물을 건조시키는 공정이, 용매의 비점 미만의 온도에서 용매를 실질적으로 제거하는 제 1 건조 공정과, 용매의 비점 이상의 온도에서 건조시키는 제 2 건조 공정을 갖는 것이 바람직하다 (청구항 12).

[0046] 또한, 상기 중축합물을 건조시키기 전에, 상기 중축합물로부터 상기 용매를 증류 제거하는 공정을 구비하는 것도 바람직하다 (청구항 13).

[0047] 또한, 가수 분해·중축합을 금속 착물 촉매의 존재하에서 행하는 것이 바람직하다 (청구항 14).

[0048] 또한, 본 발명의 또 다른 요지는, 상기 서술한 반도체 발광 디바이스용 부재를 적어도 구비하여 이루어지는 것을 특징으로 하는, 반도체 발광 디바이스에 있다 (청구항 15).

발명의 효과

[0049] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 종래의 무기계의 반도체 발광 디바이스용 부재와 비교하여 후막 도포가 가능하고, 반도체 발광 디바이스 상에 도포, 건조시키는 것만으로 용이하게 반도체 발광 디바이스를 봉지하여, 형광체를 유지할 수 있다. 또한, 고굴절률이고 투명하기 때문에, 고휘도의 반도체 발광 디바이스를 얻을 수 있다. 또한, 무기 성분 주체이기 때문에 내광성, 내열성도 우수하여, 장기간 사용해도 크랙이나 박리를 발생시키는 일이 없다.

도면의 간단한 설명

[0050] [도 1] 실시형태 A-1 을 나타내는 개략 단면도이다.

[도 2] 실시형태 A-2 를 나타내는 개략 단면도이다.

[도 3] 실시형태 B-1 을 나타내고, 도 3(a) 는 개략 단면도, 도 3(b) 는 도 3(a) 의 요부 확대도이다.

[도 4] 실시형태 B-2 를 나타내는 개략 단면도이다.

[도 5] 실시형태 B-3 을 나타내는 개략 단면도이다.

- [도 6] 실시형태 B-4 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 7] 실시형태 B-5 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 8] 실시형태 B-6 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 9] 실시형태 B-7 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 10] 실시형태 B-8 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 11] 실시형태 B-9 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 12] 실시형태 B-10 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 13] 실시형태 B-11 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 14] 실시형태 B-12 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 15] 실시형태 B-13 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 16] 실시형태 B-14 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 17] 실시형태 B-15 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 18] 실시형태 B-16 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 19] 실시형태 B-17 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 20] 실시형태 B-18 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 21] 실시형태 B-19 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 22] 실시형태 B-20 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 23] 실시형태 B-21 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 24] 실시형태 B-21 에 대하여 나타내는 요부 단면도이다.
- [도 25] 실시형태 B-22 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 26] 실시형태 B-22 에 대하여 나타내는 요부 단면도이다.
- [도 27] 실시형태 B-23 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 28] 실시형태 B-23 에 대하여 나타내는 요부 사시도이다.
- [도 29] 실시형태 B-24 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 30] 실시형태 B-24 에 대하여 나타내는 요부 단면도이다.
- [도 31] 실시형태 B-24 에 대하여 나타내는 요부 사시도이다.
- [도 32] 실시형태 B-25 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 33] 실시형태 B-26 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 34] 실시형태 B-27 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 35] 실시형태 B-28 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 36] 실시형태 B-29 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 37] 실시형태 B-30 을 나타내고, 도 37(a) 는 개략 단면도, 도 37(b) 는 도 37(a) 의 요부 확대도이다.
- [도 38] 실시형태 B-31 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 39] 실시형태 B-32 를 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 40] 실시형태 B-33 을 나타내는 개략 단면도이다.
- [도 41] 실시형태 B-34 를 나타내는 개략 단면도이다.

[도 42] 실시형태 B-35 를 나타내는 개략 단면도이다.

[도 43] 실시형태 B-36 을 나타내는 개략 단면도이다.

[도 44] 실시형태 B-37 을 나타내는 개략 단면도이다.

[도 45] 실시형태 B-38 을 나타내는 개략 단면도이다.

[도 46] 실시형태 B-39 를 나타내는 개략 단면도이다.

[도 47] 실시형태 B-40 을 나타내는 개략 단면도이다.

[도 48] 각 실시형태의 요부의 다른 구성례의 설명도이다.

[도 49] 도 49(a), 도 49(b) 는 모두 각 실시형태의 기본 개념의 설명도이다.

[도 50] 본 발명의 실시예 및 비교예에서 행한 휘도 향상률의 측정에 대하여 설명하기 위하여, 반도체 발광 디바이스를 모식적으로 나타내는 단면도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

발명을 실시하기 위한 최선의 형태

이하, 본 발명을 상세하게 설명하는데, 본 발명은 이하의 실시형태에 한정되는 것이 아니고, 그 요지의 범위내 이면 여러가지로 변경하여 실시할 수 있다.

[I . 반도체 발광 디바이스용 부재]

본 발명의 제 1 반도체 발광 디바이스용 부재는, 이하의 특징 (1) ~ (4) 를 갖는다.

(1) 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖는다.

(2) 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 파장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이 80% 이상 110% 이하 이다.

(3) 중심 파장이 400nm 이상 450nm 이하이며, 또한 파장이 385nm 를 초과하고 500nm 이하인 광을, 파장 436nm 에 있어서의 조도가 4500W/m² 가 되도록 24 시간 조사한 후에, 육안에 의해 변화가 관찰되지 않는다.

(4) 파장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률이 1.45 이상이다.

본 발명의 제 2 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기의 특징 (2) 및 (4), 그리고 이하의 특징 (5) 를 구비한다.

(5) 고체 Si-NMR 스펙트럼에 있어서,

(i) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -40ppm 이상 0ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 3ppm 이하인 피크, 및,

(ii) 피크 탑의 위치가 케미컬 시프트 -80ppm 이상 -40ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반값폭이 0.3ppm 이상 5ppm 이하인 피크

로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를, 적어도 1 개 갖는다.

본 발명의 제 3 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기의 특징 (4) 및 (5), 그리고 이하의 특징 (6) 을 구비한다.

(6) 실라놀 함유율이 0.01 중량% 이상 10 중량% 이하이다.

본 발명의 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기의 특징 (4) 및 (5), 그리고 이하의 특징 (7) 을 구비한다.

(7) Pt 및 Rh 의 합계 함유율이 0.1ppm 이하이다.

이하, 이들 특징 (1) ~ (7) 을 중심으로, 본 발명의 제 1 ~ 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재의 특징에 대하여 설명한다. 또한, 이하의 설명에 있어서, 본 발명의 제 1 ~ 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재를 구별하지 않고 가리키는 경우, 간단히 「본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재」 라고 한다.

[0069] [I-1. 관능기]

[0070] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖는다 (특징 (1)). 상기의 수산기 및 메탈록산 결합은, 통상, 세라믹 또는 금속의 표면에 존재한다. 고출력의 반도체 발광 디바이스용 용기 (후술하는 컵 등. 이하, 적절히 「반도체 발광 디바이스 용기」라고 한다) 는, 통상, 세라믹 또는 금속으로 형성되어 있다. 또한, 세라믹이나 금속의 표면에는, 통상적으로는 수산기 또는 메탈록산 결합이 존재한다. 한편, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 통상, 당해 수산기, 또는, 메탈록산 결합 중의 산소와 수소 결합 가능한 관능기를 갖고 있다. 따라서, 상기 수소 결합에 의해, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 반도체 발광 디바이스 용기에 대한 밀착성이 우수한 것이다.

[0071] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재가 갖는, 상기의 수산기 또는 메탈록산 결합 중의 산소에 대하여 수소 결합이 가능한 관능기로서는, 예를 들어, 실라놀이나 알콕시기 등을 들 수 있다. 또한, 상기 관능기는 1 종이어도 되고, 2 종 이상이어도 된다.

[0072] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재가, 상기와 같이, 수산기 또는 메탈록산 결합 중의 산소에 대하여 수소 결합이 가능한 관능기를 갖고 있는지 여부는, 고체 Si-NMR, 고체 ¹H-NMR, 적외선 흡수 스펙트럼 (IR), 라만 스펙트럼 등의 분광학적 수법에 의해 확인할 수 있다.

[0073] [I-2. 내열성]

[0074] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 내열성이 우수하다. 즉, 고온 조건하에 방치한 경우라도, 소정의 과장을 갖는 광에 있어서의 투과율이 변동하기 어려운 성질을 갖는다. 구체적으로는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 200℃ 에 500 시간 방치하기 전후에, 과장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이, 통상 80% 이상, 바람직하게는 90% 이상, 보다 바람직하게는 95% 이상이며, 또한, 통상 110% 이하, 바람직하게는 105% 이하, 보다 바람직하게는 100% 이하이다 (특징 (2)).

[0075] 또한, 상기의 변동비는, 자외/가시 분광 광도계에 의한 투과율 측정에 의해, [I-3. 내 UV 성] 에서 후술하는 투과율의 측정 방법과 동일하게 하여 광투과율을 측정하고, 그 측정치로부터 산출할 수 있다.

[0076] [I-3. 내 UV 성]

[0077] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 내광성 (내 UV (자외광) 성) 이 우수하다. 즉, 중심 과장이 400 nm 이상 450nm 이하이며, 또한 과장이 385nm 를 초과하고 500nm 이하인 광을, 과장 436nm 에 있어서의 조도가 4500W/m² 가 되도록 24 시간 조사한 후에, 육안에 의해 변화가 관찰되지 않는다는 성질을 갖는다 (특징 (3)). 「육안에 의해 변화가 관찰되지 않는다」란, 예를 들어 백탁, 탄화, 황변, 크랙 등, 자외선에 의한 열화로 인정되는 변화가, 육안으로 관찰되지 않는 것을 말한다. 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, UV (자외광) 를 조사했을 경우, 소정의 과장을 갖는 광에 대한 투과율이 변동하기 어려운 성질을 갖는다. 구체적으로는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 중심 과장 380nm, 방사 강도 0.4kW/m² 의 광을 72 시간 조사한 전후에, 과장 400nm 의 광에 있어서의 투과율의 유지율이, 통상 80% 이상, 바람직하게는 90% 이상, 보다 바람직하게는 95% 이상이며, 또한, 통상 110% 이하, 바람직하게는 105% 이하, 보다 바람직하게는 100% 이하이다.

[0078] 또한, 상기의 유지율은, 이하의 방법으로 반도체 발광 디바이스용 부재의 광투과율을 측정하고, 그 측정치로부터 산출할 수 있다.

[0079] 반도체 발광 디바이스용 부재의 광투과율은, 예를 들어 이하의 수법에 의해, 막두께 1mm 로 성형한 평활한 표면의 단독 경화물막의 샘플을 이용하여, 자외 분광 광도계에 의해 측정할 수 있다.

[0080] [투과율의 측정]

[0081] 반도체 발광 디바이스용 부재의, 흠집이나 요철에 의한 산란이 없는 두께 약 1mm 의 평활한 표면의 단독 경화물막을 이용하여, 자외 분광 광도계 (시마즈 제작소 제조 UV-3100) 를 사용하여, 과장 200nm ~ 800nm 에 있어서 투과율 측정을 행한다.

[0082] [I-4. 굴절률]

[0083] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의, 과장 550nm 의 광에 있어서의 굴절률은, 통상 1.45 이상, 바람직하

게는 1.5 이상, 보다 바람직하게는 1.55 이상, 더욱 바람직하게는 1.6 이상이다 (특징 (4)). 상한은 특별히 제한되지 않지만, 일반적인 발광 디바이스의 굴절률이 약 2.5 인 점에서, 통상 2.5 이하이며, 굴절률 조정을 용이하게 하는 관점에서, 바람직하게는 2.0 이하이다. 반도체 발광 디바이스용 부재의 굴절률이 너무 작으면, 광추출 효율이 기존의 반도체 발광 디바이스용 부재와 비교하여 향상되지 않을 가능성이 있다. 한편, 반도체 발광 디바이스용 부재의 굴절률이 발광 디바이스의 굴절률보다 큰 경우에도, 광추출 효율은 향상되지 않는다.

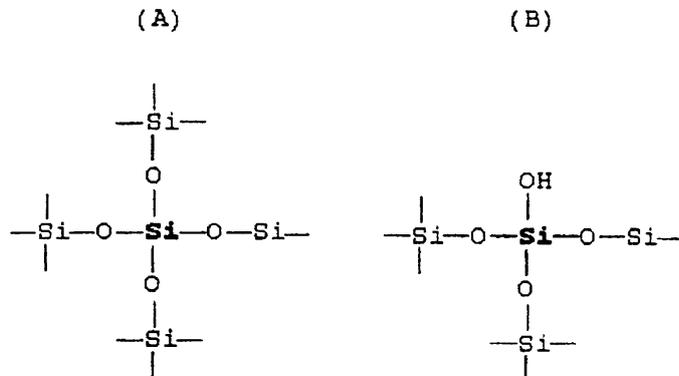
[0084] [굴절률 측정법]

[0085] 굴절률은, 액침법 (고체 대상) 외에 Pulflich 굴절계, Abbe 굴절계, 프리즘 커플러법, 간섭법, 최소 편각법 등의 공지된 방법을 이용하여 측정할 수 있다. 본 발명에 있어서의 굴절률의 측정 파장은 가시광 중앙역의 550nm 이지만, Abbe 굴절계 등의 기기를 이용하는 경우에 범용으로 이용되는 나트륨 D 선 (589nm) 을 선택할 수도 있다. 굴절률에는 파장 의존성이 있지만, 550nm 와 589nm 사이에 있어서의 투명한 물질의 굴절률 변동폭은 물질에 상관없이 0.002 정도로 작고, 589nm 의 광원을 이용해도 550nm 의 측정치와 측정 결과는 동등해진다.

[0086] [I-5. 고체 Si-NMR 스펙트럼]

[0087] 규소를 주성분으로 하는 화합물은, $SiO_2 \cdot nH_2O$ 의 시성식으로서 표시되는데, 구조적으로는, 규소 원자 Si 의 사면체의 각 정점에 산소 원자 O 가 결합되고, 이들 산소 원자 O 에 추가로 규소 원자 Si 가 결합하여 네트형으로 퍼진 구조를 갖는다. 그리고, 이하에 나타내는 모식도는, 상기의 사면체 구조를 무시하고, Si-O 의 네트 구조를 나타낸 것이지만, Si-O-Si-O 의 반복 단위에 있어서, 산소 원자 O 의 일부가 다른 성분(成員) (예를 들어 -H, -CH₃ 등) 으로 치환되어 있는 것도 있고, 하나의 규소 원자 Si 에 주목했을 경우, 모식도의 (A) 에 나타내는 바와 같이 4 개의 -OSi 를 갖는 규소 원자 Si(Q⁴), 모식도의 (B) 에 나타내는 바와 같이 3 개의 -OSi 를 갖는 규소 원자 Si(Q³) 등이 존재한다. 그리고, 고체 Si-NMR 측정에 있어서, 상기의 각 규소 원자 Si 에 기초하는 피크는, 순차적으로 Q⁴ 피크, Q³ 피크, . . . 라 불린다.

[0088] [화학식 3]



[0089]

[0090] 이들 산소 원자가 4 개 결합한 규소 원자는, 일반적으로 Q 사이트라 총칭된다. 본 발명에 있어서는 Q 사이트에 유래하는 Q⁰ ~ Q⁴ 의 각 피크를 Qⁿ 피크군이라 부르는 것으로 한다. 유기 치환기를 포함하지 않는 실리콘막의 Qⁿ 피크군은, 통상 케미컬 시프트 -80 ~ -130ppm 의 영역에 연속한 다봉성의 피크로서 관측된다.

[0091] 이에 대하여, 산소 원자가 3 개 결합하고, 그 이외의 원자 (통상적으로는 탄소이다.) 가 1 개 결합하고 있는 규소 원자는, 일반적으로 T 사이트라 총칭된다. T 사이트에 유래하는 피크는 Q 사이트의 경우와 마찬가지로, T⁰ ~ T³ 의 각 피크로서 관측된다. 본 발명에 있어서는 T 사이트에 유래하는 각 피크를 Tⁿ 피크군이라 부르는 것으로 한다. Tⁿ 피크군은 일반적으로 Qⁿ 피크군보다 고자장측 (통상, 케미컬 시프트 -80 ~ -40ppm) 의 영역에 연속한 다봉성의 피크로서 관측된다.

[0092] 또한, 산소 원자가 2 개 결합함과 함께, 그 이외의 원자 (통상적으로는 탄소이다) 가 2 개 결합하고 있는 규소 원자는, 일반적으로 D 사이트라 총칭된다. D 사이트에 유래하는 피크도, Q 사이트나 T 사이트에 유래하는

피크군과 마찬가지로, $D^0 \sim D^n$ 의 각 피크 (D^n 피크군) 로서 관측되고, Q^n 이나 T^n 의 피크군보다 더욱, 고자장 측의 영역 (통상, 케미컬 시프트 0 ~ -40ppm 의 영역) 에, 다봉성의 피크로서 관측된다. 이들 D^n , T^n , Q^n 의 각 피크군의 면적의 비는, 각 피크군에 대응하는 환경에 놓여진 규소 원자의 몰비와 각각 동등하기 때문에, 전체 피크의 면적을 전체 규소 원자의 몰량으로 하면, D^n 피크군 및 T^n 피크군의 합계 면적은 통상 이것에 대한 탄소 원자와 직접 결합한 전체 규소의 몰량과 대응하게 된다.

[0093] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 고체 Si-NMR 스펙트럼을 측정하면, 유기기의 탄소 원자가 직접 결합한 규소 원자에 유래하는 D^n 피크군 및 T^n 피크군과, 유기기의 탄소 원자와 결합하고 있지 않은 규소 원자에 유래하는 Q^n 피크군이, 각각 상이한 영역에 출현한다. 이들 피크 중 -80ppm 미만의 피크는 전술한 바와 같이 Q^n 피크에 해당하고, -80ppm 이상의 피크는 D^n , T^n 피크에 해당한다. 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서는 Q^n 피크는 필수는 아니지만, D^n , T^n 피크 영역에 적어도 1 개, 바람직하게는 복수개의 피크가 관측된다.

[0094] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재의 케미컬 시프트의 값은, 예를 들어 실시예의 설명에 있어서 후술하는 방법을 이용하여 고체 Si-NMR 측정을 행하고, 그 결과에 기초하여 산출할 수 있다. 또한, 측정 데이터의 해석 (반값폭이나 실라놀량 해석) 은, 예를 들어 가우스 함수나 로렌즈 함수를 사용한 파형 분리 해석 등에 의해, 각 피크를 분할하여 추출하는 방법으로 행한다.

[0095] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재가, 후막 부분에서도 크랙을 발생시키지 않고 치밀하게 경화되어, 케이스와의 밀착성·칩의 봉지 특성이 우수하고, 경화 후의 광·열에 대한 내구성이 우수한 경화물을 얻을 수 있다는 우수한 특성을 발휘하므로, 상기 서술한 특징 (5) 가 바람직한 이유는 확실하지 않지만, 다음과 같이 추찰된다.

[0096] 무기 유리로 이루어지는 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻는 방법으로서, 저융점 유리를 용융시켜 봉지하는 용융법과, 비교적 저온에서 알콕시실란 등을 가수 분해·중축합한 액을 도포하고, 건조 경화시키는 졸겔법이 있다. 이 중 용융법으로부터 얻어지는 부재는 주로 Q^n 피크만이 관측되지만, 용융에 적어도 350℃ 이상의 고온을 필요로 하여, 반도체 발광 디바이스를 열열화시키기 때문에 현실적인 방법이 아니다.

[0097] 한편, 졸겔법에 있어서 4 관능의 실란 화합물로부터 얻어지는 가수 분해·중축합 생성물은, 완전 무기의 유리가 되어 내열·내광성이 매우 우수한 것이지만, 경화 반응은 실라놀의 축합 (탈수·탈알코올) 반응에 의해 가교가 진행되므로, 탈수가 일어나는만큼 중량 감소, 체적 수축을 수반한다. 그 때문에, Q^n 피크를 갖는 4 관능의 실란만으로 원료를 구성하면, 경화 수축의 정도가 너무 커져, 피막에 크랙이 발생하기 쉬워져, 후막화할 수 없게 된다. 이러한 계에서는, 골재로서 무기 입자를 첨가하거나 덧칠에 의해 막두께 증가가 시도되고 있지만, 일반적으로 10 μ m 정도가 한계 막두께가 된다. 반도체 발광 디바이스용 부재로서 졸겔 유리를 이용하는 경우, 복잡한 형상의 배선 부분 상에 몰드할 필요가 있기 때문에, 500 ~ 1000 μ m 의 막두께를 확보해야 한다는 과제가 있었다.

[0098] 이에 대하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에서는, 가교 밀도를 조정하여, 막에 가요성을 갖게 하기 위하여, T^n 피크를 갖는 3 관능 실란 및/또는 D^n 피크를 갖는 2 관능 실란을 도입하고, 동시에 가수 분해·중축합을 행함으로써, 탈수 축합에 의한 체적 감소량, 및 가교 밀도를 기능에 지장 없는 범위에서 적당히 줄이고, 또한 가수 분해·축합 공정 및 건조 공정을 제어함으로써, 막두께 1000 μ m 에나 달하는 투명 유리막형의 부재를 얻는 것이 가능해진다. 따라서, 본 발명에 있어서는 -80ppm 이상에 관측되는 T^n 피크 및/또는 D^n 피크의 존재가 바람직하다.

[0099] 이와 같이 2 관능, 혹은 3 관능의 원료를 주성분으로서 후막화하는 방법으로서, 예를 들어 안경 등의 하드 코트막의 기술이 알려져 있는데, 그 막두께는 수 μ m 이하이다. 이들 하드 코트막에서는 막두께가 얇기 때문에 용매의 휘발이 용이하고 균일한 경화가 가능하고, 기재와의 밀착성 및 선폭창 계수의 차이가 크랙의 주원인으로 되어 있었다. 이에 대하여 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에서는, 막두께가 도료와 같은 수준으로 크기 때문에, 막 자체에 어느 정도의 강도가 있고, 다소의 선폭창 계수의 차이는 흡수 가능해지지만, 용제 건조에 의한 체적 감소로 인하여 박막의 경우와는 다른 내부 응력 발생이 새로운 과제가 된다. 즉, LED 의 칩 등의 개구 면적이 좁은 심형(深型) 용기에 몰드를 행하는 경우, 막심부에서의 건조가 불충분한 상태에서 가열

경화를 행하면, 가교 후에 용매 휘발이 일어나 체적이 감소되기 때문에 큰 크랙이나 발포를 발생시킨다. 이러한 막에는 큰 내부 응력이 걸려 있어, 이 막의 고체 Si-NMR 를 측정하면, 검출되는 D^n , T^n , Q^n 피크군은 내부 응력이 작은 경우보다 실록산 결합각에 분포를 발생시켜, 각각, 더욱 넓은 피크가 된다. 이 사실은, Si 에 대하여 2 개의 -OSi 로 표시되는 결합각에 뒤트림이 큰 것을 의미한다. 즉 동일한 원료로 이루어지는 막이라도, 이들 피크의 반값폭이 좁을수록 크랙이 일어나기 어려워 고품질의 막이 된다.

[0100] 또한, 뒤트림에 따라 반값폭이 커지는 현상은, Si 원자의 분자 운동의 구속의 정도가 클수록 더욱 예민하게 관측되어, 그 표시 용이성은 $D^n < T^n < Q^n$ 이 된다.

[0101] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서, -80ppm 이상의 영역에 관측되는 피크의 반값폭은, 지금까지 졸겔법에서 알려져 있는 반도체 발광 디바이스용 부재의 반값폭 범위보다 작은 (좁은) 것을 특징으로 한다.

[0102] 케미컬 시프트마다 정리하면, 본 발명에 있어서, 피크 탑의 위치가 -80ppm 이상 -40ppm 미만에 관측되는 T^n 피크군의 반값폭은, 통상 5ppm 이하, 바람직하게는 4ppm 이하, 또한, 통상 0.3ppm 이상, 바람직하게는 1ppm 이상, 보다 바람직하게는 1.5ppm 이상의 범위이다.

[0103] 마찬가지로, 피크 탑의 위치가 -40ppm 이상 0ppm 이하에 관측되는 D^n 피크군의 반값폭은, 분자 운동의 구속이 작기 때문에 전반적으로 T^n 피크군의 경우보다 작고, 통상 3ppm 이하, 바람직하게는 2ppm 이하, 또한, 통상 0.3ppm 이상, 바람직하게는 0.5ppm 이상의 범위이다.

[0104] 상기의 케미컬 시프트 영역에 있어서 관측되는 피크의 반값폭이 상기의 범위보다 크면, 분자 운동의 구속이 커 뒤트림이 큰 상태가 되어, 크랙이 발생하기 쉽고, 내열·내광 내구성이 떨어지는 부재가 될 가능성이 있다. 예를 들어, 4 관능 실란을 다용했을 경우나, 건조 공정에 있어서 급속한 건조를 행하여 큰 내부 응력을 축적한 상태 등에 있어서, 반값폭 범위가 상기의 범위보다 커진다.

[0105] 또한, 피크의 반값폭이 상기의 범위보다 작은 경우, 그 환경에 있는 Si 원자는 실록산 가교에 관련되지 않게 되어, 예를 들어 실리콘 수지와 같이 가교 부분이 Si-C 결합으로 형성되고 디메틸실록산 사슬의 D^2 피크만이 관측되는 예나, 3 관능 실란이 미가교 상태에서 잔류하는 예 등, 실록산 결합 주체로 형성되는 물질보다 내열·내광 내구성이 떨어지는 부재가 될 가능성이 있다.

[0106] 또한, 상기 서술한 바와 같이, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼에 있어서는, D^n , T^n 피크 영역에 적어도 1 개, 바람직하게는 복수개의 피크가 관측된다. 따라서, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 고체 Si-핵 자기 공명 스펙트럼은, 상기 서술한 범위의 반값폭을 갖는 D^n 피크군 및 T^n 피크군으로 이루어지는 군에서 선택되는 피크를, 적어도 1 개, 바람직하게는 2 개 이상 갖는 것이 바람직하다 (특징 (5)).

[0107] [I-6. 실라놀 함유율]

[0108] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재가, 실록산 골격을 갖는 경우에는, 실라놀 함유율이, 통상 0.01 중량% 이상, 바람직하게는 0.1 중량% 이상, 보다 바람직하게는 0.3 중량% 이상, 또한, 통상 10 중량% 이하, 바람직하게는 8 중량% 이하, 더욱 바람직하게는 6 중량% 이하의 범위이다 (특징 (6)).

[0109] 통상, 알콕시실란을 원료로 하여 졸겔법에 의해 얻어지는 유리체는, 150℃, 3 시간 정도의 온화한 경화 조건에서는 완전히 중합되어 산화물이 되는 일은 없고, 일정량의 실라놀이 잔존한다. 테트라알콕시실란만으로부터 얻어지는 유리체는 고경도·고내광성이지만, 가교도가 높기 때문에 분자 사슬의 자유도가 작아, 완전한 축합이 일어나지 않기 때문에 잔존 실라놀의 양이 많다. 또한, 가수 분해·축합액을 건조 경화시킬 때에는, 가교점이 많기 때문에 증점이 빠르고, 건조와 경화가 동시에 진행되기 때문에 큰 뒤트림을 가진 벌크체가 된다. 이러한 부재를 반도체 발광 디바이스용 부재로서 이용하면, 장기 사용시에는 잔존 실라놀의 축합에 의한 새로운 내부 응력이 발생하여, 크랙이나 박리, 단선 등의 문제를 일으키기 쉽다. 또한, 부재의 파단면에는 실라놀이 더욱 많고, 투습성은 적지만 표면 흡습성이 높아 수분의 침입을 초래하기 쉽다. 400℃ 이상의 고온 소성에 의해 실라놀 함유율을 감소시키는 것이 가능하지만, 반도체 발광 디바이스의 내열성은 260℃ 이하의 것이 대부분이며, 현실적이지 않다.

[0110] 한편, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 실라놀 함유율이 낮기 때문에 경시 변화가 적어, 장기의 성능

안정성이 우수하고, 흡습이 낮은 우수한 성능을 갖는다. 단, 실라놀이 전혀 함유되지 않는 부재는 반도체 발광 디바이스와 밀착성이 떨어지기 때문에, 본 발명에 있어서는 실라놀 함유율에 상기와 같이 최적의 범위가 존재한다.

- [0111] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 적당량의 실라놀을 함유하고 있기 때문에, 디바이스 표면에 존재하는 극성 부분에 실라놀이 수소 결합하여, 밀착성이 발현된다. 극성 부분으로서는, 예를 들어, 수산기나 메탈록산 결합의 산소 등을 들 수 있다.
- [0112] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 적당한 촉매의 존재하에서 가열함으로써, 디바이스 표면의 수산기와 사이에 탈수 축합에 의한 공유 결합을 형성하여, 더욱 강고한 밀착성을 발현할 수 있다.
- [0113] 한편, 실라놀이 너무 많으면, 전술한 바와 같이, 계내가 증점하여 도포가 곤란해지거나, 활성이 높아져 가열에 의해 경비분(輕沸分)이 휘발되기 전에 고체화되거나 함으로써, 발포나 내부 응력의 증대가 발생하여, 크랙 등을 야기할 가능성이 있다.
- [0114] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재의 실라놀 함유율은, 예를 들어 후술하는 방법을 이용하여 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정을 행하고, 전체 피크 면적에 대한 실라놀 유래의 피크 면적의 비율로부터, 전체 규소 원자 중의 실라놀이 되어 있는 규소 원자의 비율 (%) 을 구하여, 별도로 분석한 규소 함유율과 비교함으로써 산출할 수 있다.
- [0115] [고체 Si-NMR 스펙트럼 측정 및 실라놀 함유율의 산출]
- [0116] 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여 고체 Si-NMR 스펙트럼을 행하는 경우, 우선, 이하의 조건으로 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정 및 데이터 해석을 행한다. 다음에, 전체 피크 면적에 대한 실라놀 유래의 피크 면적의 비율로부터, 전체 규소 원자 중의 실라놀이 되어 있는 규소 원자의 비율 (%) 을 구하여, 별도로 분석한 규소 함유율과 비교함으로써 실라놀 함유율을 구한다.
- [0117] 또한, 측정 데이터의 해석 (실라놀량 해석) 은, 예를 들어 가우스 함수나 로렌츠 함수를 사용한 과형 분리 해석 등에 의해, 각 피크를 분할하여 추출하는 방법으로 행한다.
- [0118] [장치 조건예]
- [0119] 장치 : Chemagnetics 사 Infinity CMX-400 핵 자기 공명 분광 장치
- [0120] ²⁹Si 공명 주파수 : 79.436MHz
- [0121] 프로브 : 7.5mm φ CP/MAS 용 프로브
- [0122] 측정 온도 : 실온
- [0123] 시료 회전수 : 4kHz
- [0124] 측정법 : 싱글 펄스법
- [0125] ¹H 디커플링 주파수 : 50kHz
- [0126] ²⁹Si 플립각 : 90°
- [0127] ²⁹Si 90° 펄스폭 : 5.0μs
- [0128] 반복 시간 : 600s
- [0129] 적산 횟수 : 128 회
- [0130] 관측폭 : 30kHz
- [0131] 브로드닝 팩터 : 20Hz
- [0132] [데이터 처리예]
- [0133] 반도체 발광 디바이스용 부재에 대해서는, 512 포인트를 측정 데이터로서 입력하고, 8192 포인트에 제로 필링하여 푸리에 변환한다.
- [0134] [과형 분리 해석예]

- [0135] 푸리에 변환 후의 스펙트럼의 각 피크에 대하여 로렌츠 곡형 및 가우스 곡형 혹은 양자의 혼합에 의해 작성한 피크 형상의 중심 위치, 높이, 반값폭을 가변 파라미터로 하여, 비선형 최소 이승법에 의해 최적화 계산을 행한다.
- [0136] 또한, 피크의 동정은 AICHe Journal, 44(5), p.1141, 1998년 등을 참고로 한다.
- [0137] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재의 실라놀 함유율은, 이하의 IR 측정에 의해 구하는 것도 가능하다. 여기서, IR 측정은 실라놀 피크를 특정하기 쉬우나 피크의 형상이 넓어 면적 오차가 나오기 쉬워, 정량 작업에는 일정 막두께의 샘플을 정확히 제작할 필요가 있는 등 순서도 번잡하기 때문에, 엄밀한 정량을 실시하는 데 있어서는 고체 Si-NMR 을 이용하는 것이 바람직하다. 고체 Si-NMR 을 이용하여 실라놀량을 측정할 때에, 실라놀의 양이 매우 미량으로 검출이 어려운 경우, 복수의 피크가 겹쳐 실라놀의 피크를 단리하는 것이 곤란한 경우, 미지 시료에 있어서 실라놀 피크의 케미컬 시프트가 불명한 경우 등에는 상보적으로 IR 측정을 실시함으로써 실라놀의 농도를 결정할 수 있다.
- [0138] [IR 측정에 의한 실라놀 함유율의 산출]
- [0139] · 푸리에 변환 적외 분광법 Fourier Transform Infrared Spectroscopy
- [0140] · 장치 : Thermo Electron 제조 NEXUS670 및 Nic-Plan
- [0141] · 분해능 : 4cm^{-1}
- [0142] · 적산 횟수 : 64 회
- [0143] · 퍼지 : N_2
- [0144] 측정예 : Si 웨이퍼 상에 막두께 $200\mu\text{m}$ 의 박막 시료를 도포 제작하여, 투과법에 의해 Si 웨이퍼마다 적외 흡수 스펙트럼을 측정하고, 파수 3751cm^{-1} 및 3701cm^{-1} 의 실라놀 피크 합계 면적을 구한다. 한편, 기존 농도 시료로서 트리메틸실라놀을 무수의 사업화탄소에 희석하고, 광로 길이 $200\mu\text{m}$ 의 액 셀을 이용하여 투과법으로 적외 흡수 스펙트럼을 측정하고, 실제 샘플과의 피크 면적비 비교에 의해 실라놀 농도를 산출할 수 있다. 또한, 적외 흡수 스펙트럼에 있어서는 샘플 흡착수 유래의 피크가 실라놀 피크의 백그라운드로서 검출되므로, 샘플 박막은 측정 전에 상압에서 150°C 20분 이상 가열하거나, 100°C 에서 10 분 이상 진공 처리하는 등의 방법으로 흡착수를 제거해 둔다.
- [0145] [I-7. Pt 및 Rh 의 합계 함유율]
- [0146] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, Pt 및 Rh 의 합계 함유율이, 통상 0.1ppm 이하, 바람직하게는 0.05ppm 이하, 보다 바람직하게는 0.01ppm 이하이다 (특징 (7)). 또한, 하한에 제한은 없지만, 통상적으로는 0ppm, 즉 Pt 및 Rh 를 함유하지 않는 것이 바람직하다. Pt 및 Rh 는 히드로실릴화 반응 촉매를 이용한 히드로실릴화 기구를 이용하여 후술하는 화합물 (1) 이나 화합물 (2) 에 해당하는 모노머, 올리고머나 프리폴리머를 합성한 경우에 유래하고, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 함유될 수 있는 성분이다. 히드로실릴화 반응 촉매로서 이용할 수 있는 백금계 촉매로서는, 예를 들어 미립자형 백금, 염화 백금산, 백금 디올레핀 착물, 백금 디케톤 착물, 백금 포스핀 착물, 백금 디비닐테트라디실록산 착물을 들 수 있고, 로듐도 동일한 형태로 사용된다. 이러한 촉매는 히드로실릴화에 관여한 후에는 미립자화되어, 플라즈몬 흡수를 나타낸다. 또한, 고온 환경에 있어서 촉매 배위자나 촉매 자체의 산화에 의해 부재 황변의 원인이 되거나, 고굴절화를 위하여 페닐기를 도입한 부재에 있어서는 페닐기의 열이나 자외광에 의한 변성을 조장하여 비페닐 등의 발색단을 형성한다. 그러나, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, Pt 및 Rh 의 합계 함유율을 상기와 같이 억제함으로써, 장기 사용시에 있어서 근자외역의 투과율 저하를 억제하는 이점을 얻을 수 있다. 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 중의 Pt 및 Rh 의 합계 함유율은 ICP 분석법에 의해 측정할 수 있다.
- [0147] 그런데, 이와 같이, 본 발명의 제 1 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 특징 (1) ~ (4) 를 구비한다. 또한, 본 발명의 제 2 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 특징 (2), (4) 및 (5) 를 구비한다. 또한, 본 발명의 제 3 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 특징 (4), (5) 및 (6) 을 구비한다. 또한, 본 발명의 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 특징 (4), (5) 및 (7) 을 구비한다. 단, 본 발명의 제 1 ~ 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재는, 각각 대응한 필수특징에 더하여, 특징 (1) ~ (7) 중 필수특징이 아닌 특징을 조합하여 구비하는 것이 바람직하고, 그 중에서도, 상기의 특성 (1) ~ (7) 모두를 만족하는 반도체 발광 디바이스용 부재는, 본 발명의 제 1 ~ 제 4 반도체 발광 디바이스용 부재의 요건

을 만족하여, 더욱 바람직하다.

- [0148] [1-8] 기타 물성
- [0149] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 특성을 주된 특징으로 하지만, 그 밖에, 하기의 구조나 성질을 갖고 있는 것이 바람직하다.
- [0150] [I-8-1. 특정 금속 원소 함유율]
- [0151] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 유기기와 직접 결합한 규소, 및 고굴절률 산화물을 부여하는 금속 원소를 함유하는 것이 바람직하다. 고굴절률 산화물을 부여하는 금속 원소의 예로서는, 예를 들어 Si (규소), Al (알루미늄), Zr (지르코늄), Ti (티탄), Y (이트륨), Nb (니오브), 및 B (붕소) 등이 있고, 이들은 단독으로 사용되어도 되지만, 복수종 사용해도 상관없다.
- [0152] 구체적으로는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, Si (규소), Al (알루미늄), Zr (지르코늄), Ti (티탄), Y (이트륨), Nb (니오브), 및 B (붕소) 로 이루어지는 군에서 선택되는 1 종 또는 2 종 이상의 원소를 구성 성분으로 하는 메탈록산 결합을 주체로 하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 이들 Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb 및 B (이하, 이들을 「특정 금속 원소」라 하는 경우가 있다.) 의 합계 함유율은, 통상 20 중량% 이상이다 (특징 (8)). 종래의 반도체 발광 디바이스용 부재의 기본 골격은 탄소-탄소 및 탄소-산소 결합을 기본 골격으로 한 에폭시 수지 등의 유기 수지이다. 이에 대하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 기본 골격은, 유리 (규산염 유리) 등과 동일한 무기질의 메탈록산 결합이다. 이 실록산 결합으로 대표되는 메탈록산 결합은, 하기 표 1 의 화학 결합의 비교표로부터도 분명하듯이, 반도체 발광 디바이스용 부재로서 우수한 이하의 특징이 있다.
- [0153] (I) 결합 에너지가 크고, 열분해·광분해되기 어렵기 때문에, 내광성이 양호하다.
- [0154] (II) 전기적으로 약간 분극되어 있다.
- [0155] (III) 사슬형 구조의 자유도는 크고, 유연성이 풍부한 구조가 가능하고, 실록산 사슬 등의 메탈록산 사슬을 중심으로 자유 회전 가능하다.
- [0156] (IV) 산화도가 크고, 더 이상 산화되지 않는다.
- [0157] (V) 전기 절연성이 풍부하다.

표 1

결합	결합거리 (Å)	결합에너지 (kcal/mol)	결합각 (°)
Si-O-Si	1.64	108	130~160
C-O-C	1.43	86	110
C-C-C	1.54	85	109

- [0159] <화학결합 비교표>
- [0160] 이들 특징으로부터, 실록산 결합 등의 메탈록산 결합이 3 차원적으로, 게다가 고가교도로 결합된 골격으로 형성되는 실리콘계 등의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 에폭시 수지 등의 종래의 수지계 반도체 발광 디바이스용 부재와 달리 유리 혹은 암석 등의 무기질에 가까워, 내열성·내광성이 풍부한 보호 피막이 되는 것을 이해할 수 있다. 특히, 메틸기를 치환기로 하는 실리콘계 등의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 자외 영역에 흡수를 갖지 않기 때문에 광분해가 일어나기 어려워, 내광성이 우수하다.
- [0161] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 특정 금속 원소 (Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb 및 B) 의 합계 함유율은, 상기 서술한 바와 같이 20 중량% 이상이지만, 그 중에서도 25 중량% 이상이 바람직하고, 30 중량% 이상이 보다 바람직하다. 한편, 상한으로서는, 반도체 발광 디바이스용 부재의 가요성을 확보하여, 크랙이나 밀착성 불량 이 일어나지 않게 한다는 이유에서, 통상 70 중량% 이하의 범위이다.
- [0162] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 고체 Si-NMR 스펙트럼에 관한 상기 서술한 (5) 의 특징을 갖는 점에서도 분명하듯이, 통상적으로는, 상기 서술한 특정 금속 원소 중 적어도 Si 를 함유하고 있다. 그 외의 Al, Zr, Ti, Y, Nb 및 B 에 대해서는 어느 것도 필수는 아니지만, 내열성 향상의 관점에서는 Al 또는 B,

또한, 고굴절률화의 관점에서는 Zr, Ti, Y 또는 Nb 를 함유하고 있는 것이 바람직하고, 그 중에서도, 청색으로부터 자외 영역의 발광 파장을 갖는 반도체 발광 디바이스용 부재로서 이용하기 위해서는, 자외선 흡수가 적은 Al, Zr, Y 또는 B 를 함유하고 있는 것이 특히 바람직하다.

[0163] 특정 금속 원소 (Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb, B) 의 존재 형태는, 반도체 발광 디바이스용 부재 중에 있어서 반도체 발광 디바이스의 발광 파장에 대하여 투명해진다면, 메탈록산 결합으로서 균일한 유리층을 형성하고 있어도 되고, 반도체 발광 디바이스용 부재 중에 입자형으로 존재하고 있어도 된다. 특정 금속 원소가 입자형으로 존재하고 있는 경우, 그 입자 내부의 구조는 아몰퍼스형이어도 되고 결정 구조여도 되지만, 고굴절률을 부여하기 위해서는 결정 구조인 것이 바람직하다. 그 입자경은, 반도체 발광 디바이스용 부재의 투명도를 해치지 않기 위하여, 통상적으로는 반도체 발광 디바이스의 발광 파장 이하, 바람직하게는 100nm 이하, 더욱 바람직하게는 50nm 이하, 특히 바람직하게는 30nm 이하이다. 가장 바람직한 구성의 일례는, 유기기와 결합한 Si 를 주 성분으로 하고, 굴절률 향상제 혹은 가교도 조정제로서 Al, Zr, Ti, Y, Nb, B 가 메탈록산 결합에 의해 연결하고 있는, 가요성이 있는 아몰퍼스형의 바인더 중에, 굴절률 향상제로서 결정화도가 높은 Al, Zr, Ti, Y, Nb 의 산화물 입자가 나노 입자로서 분산되어 있는 상태이다.

[0164] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 특정 금속 원소의 합계 함유율은, 예를 들어 실시예의 설명에 있어서 후술하는 방법을 이용하여 유도 결합 고주파 플라즈마 분광 (inductively coupled plasma spectrometry : 이하 적절히 「ICP」 라 약칭한다.) 분석을 행하고, 그 결과에 기초하여 산출할 수 있다.

[0165] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 조성은, 계내의 가교가 주로 실록산 결합을 비롯한 무기 결합 (특히, 상기 서술한 특정 금속 원소의 결합) 에 의해 형성되는 경우에 한정된다. 즉, 대량의 유기 성분 중에 소량의 무기 성분이 함유되는 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서 -80ppm 이상에 상기 서술한 반값폭 범위의 피크가 관찰되어도, 본 발명에 규정하는 양호한 내열·내광성 및 도포 성능은 얻을 수 없다. 또한, 본 발명의 규정에 의한 특정 금속 원소의 합계 함유율이 20 중량% 이상인 반도체 발광 디바이스용 부재는, 예를 들어 Si 만이 함유되어 있는 예를 들면, 실리카 (SiO₂) 환산으로 43 중량% 이상의 SiO₂ 를 함유한다.

[0166] [I-8-2. UV 투과율]

[0167] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 막두께 1.0mm 에서의 반도체 발광 디바이스의 발광 파장에 있어서의 광투과율이, 통상 60% 이상, 그 중에서도 70% 이상, 80% 이상인 것이 더욱 바람직하다. 반도체 발광 디바이스는 각종 기술에 의해 그 광추출 효율이 높여져 있지만, 칩을 봉지하거나 형광체를 유지하기 위한 투광성 부재의 투명도가 낮으면, 이것을 이용한 반도체 발광 디바이스의 휘도가 저감되기 때문에, 고휘도의 반도체 발광 디바이스 제품을 얻는 것이 곤란해진다.

[0168] 여기서 「반도체 발광 디바이스의 발광 파장」이란, 반도체 발광 디바이스의 종류에 따라 다른 값이지만, 일반적으로는, 통상 300nm 이상, 바람직하게는 350nm 이상, 또한, 통상 900nm 이하, 바람직하게는 500nm 이하의 범위의 파장을 가리킨다. 이 범위의 파장에 있어서의 광투과율이 낮으면, 반도체 발광 디바이스용 부재가 광을 흡수해 버려, 광추출 효율이 저하되어, 고휘도의 디바이스를 얻을 수 없게 된다. 또한, 광추출 효율이 저하된 만큼의 에너지는 열로 바뀌어, 디바이스의 열열화의 원인이 되기 때문에 바람직하지 않다.

[0169] 또한, 근자외 ~ 청색 영역 (350nm ~ 500nm) 에 있어서는 봉지 부재가 광열화되기 쉬우므로, 이 영역에 발광 파장을 갖는 반도체 발광 디바이스에, 내구성이 우수한 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 사용하면, 그 효과가 커지므로 바람직하다.

[0170] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재의 광투과율은, 예를 들어 실시예에 기재된 수법에 의해, 막두께 1.0mm 로 성형한 평활한 표면의 단독 경화물막의 샘플을 이용하여, 자외 분광 광도계에 의해 측정할 수 있다.

[0171] 단, 반도체 발광 디바이스의 형상은 다양하고, 대다수는 0.1mm 를 초과하는 후막 상태에서의 사용이지만, LED 칩 (발광 소자) 에서 떨어진 위치에 박막형의 형광체층 (예를 들어, 나노 형광체 입자나 형광 이온을 함유하는 두께 수 μm 의 층) 을 형성하는 경우나, LED 칩의 바로 위에 박막형으로 고굴절 광추출막을 형성하는 경우 등, 박막 사용의 용도도 있다. 이와 같은 경우에는, 이 막두께에 있어서 60% 이상의 투과율을 나타내는 것이 중요하다. 이러한 박막형의 적용 형태에 있어서도, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 우수한 내광성, 내열성을 나타내고, 봉지 성능이 우수하고 크랙 등이 없이 안정적으로 막형성할 수 있다.

[0172] [I-8-3. 기타]

[0173] 일반적으로, 에폭시 수지나 실리콘 수지 등의 종래의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 고굴절률화를 위

하여 무기 산화물 입자나 실리카 이외의 유리 성분 등을 함유시키는 경우, 입자의 응집 등에 의해, 얻어지는 반도체 발광 디바이스용 부재가 불투명해지기 쉬워, 상기 투과율을 달성하기 위해서는 나노 레벨에서의 균일성이 중요하다.

[0174] 이에 대하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 졸겔 반응을 이용한 여러가지 금속 원소의 도입이 용이하고, 고굴절률의 금속 산화물 입자·유기기에 의존하지 않는 고굴절률화가 어느 정도 가능하다. 또한, 경화 전의 도포액은 종래 수지와 비교하면 분자량이 낮고, 약간 친수성이어, 종래의 수지에 분산되는 것이 곤란한 고굴절률의 금속 산화물의 나노 입자도 용이하게 분산 가능하다는 이점이 있다. 특히, 고굴절률의 입자 원료로서, 응집되기 쉬운 분말형의 나노 입자뿐만 아니라, 메탄올 등의 친수성 용매에 분산된 보다 입자경이 작고 투명한 나노 입자 졸을 적용 가능한 것은, 특필할 만한 이점이다.

[0175] 이와 같이, 내광성이 높은 유기기에 의해 가교도를 조정하고, 규소 이외의 특정 금속 원소를 도입함으로써, 어느 정도 고굴절률화된 기재 부분에 대하여, 추가로 고굴절률의 나노 입자를 함유시킴으로써, 종래의 에폭시 수지 등을 대신하는, 투명하고 내열성·내광성 등이 우수한 고굴절률의 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻을 수 있다.

[0176] 또한, 목적으로 하는 굴절률이 낮은 경우에는, 반드시 기재 부분에 규소 이외의 금속 원소를 함유시킬 필요는 없다. 또한, 반대로 고굴절의 나노 입자를 함유시키지 않고, 고굴절화된 매트릭스 부분만을 사용해도 된다.

[0177] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 후막형으로 도포 가능하고, 투명성이 우수함과 함께, 봉지성, 내열성, 내자외선성 등도 우수하기 때문에, 여러가지 형상의 반도체 발광 디바이스용 부재로서 적용할 수 있다. 특히, 발광 파장이 파랑 ~ 자외역에 있는 반도체 발광 디바이스에 있어서, 열화가 적은 유용한 부재로서 사용할 수 있다.

[0178] [Ⅱ. 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법]

[0179] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 제조하는 방법은 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어, 후술하는 일반식 (1) 이나 일반식 (2) 로 표시되는 화합물을 가수 분해·중축합하여, 중축합물 (가수 분해·중축합물) 을 건조시킴으로써 얻을 수 있다. 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 특정 금속 원소를 함유시키는 경우에는, 특정 금속 원소를 함유하는 일반식 (1) 이나 일반식 (2) 의 화합물을 원료의 일부로서 가수 분해·중축합을 하거나, 필요에 따라서, 가수 분해·중축합의 전 또는 후에, 상기 서술한 특정 금속 원소 중 1 종 또는 2 종 이상의 원소를 적어도 함유하는 고굴절률의 입자 (이하 적절히 「고굴절률 특정 금속 산화물 입자」 라고 한다.) 를 첨가하면 된다. 또한, 필요에 따라서, 용매는 이용하여도 되고 이용하지 않아도 되며, 중축합물의 건조 전에 용매의 증류 제거를 행해도 된다.

[0180] 또한, 이하의 설명에 있어서, 상기 가수 분해·중축합물 또는 이것을 함유하는 조성물로서, 건조 공정의 전에 얻어지는 것을 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액이라고 한다. 따라서, 여기서 설명하는 제조 방법 (이하 적절히 「본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법」 이라고 한다) 에 의해 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 제조하는 경우, 이 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액으로부터 건조 공정을 거쳐 얻어진 것이 반도체 발광 디바이스용 부재가 된다. 이하, 이 제조 방법에 대하여 자세하게 설명한다.

[0181] [Ⅱ-1. 원료]

[0182] 원료로서는, 하기 일반식 (1) 로 표시되는 화합물 (이하 적절히 「화합물 (1)」 이라고 한다.) 및/또는 그 올리고머를 이용한다.

[0183] [화학식 4]



[0185] 일반식 (1) 중, M 은 규소, 알루미늄, 지르코늄 및 티탄으로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종의 원소이다. 그 중에서도, 규소가 바람직하다.

[0186] 일반식 (1) 중, m 은 M 의 가수를 나타내고, 1 이상 4 이하의 정수이다. 또한, 「m+」 란, 그것이 정(正)의 가수인 것을 나타낸다.

[0187] n 은 X 기의 수를 나타내고, 1 이상 4 이하의 정수이다. 단, m ≥ n 이다.

[0188] 일반식 (1) 중, X 는 용액 중의 물이나 공기 중의 수분 등에 의해 가수 분해되어, 반응성이 풍부한 수산기를 생

성하는 가수 분해성기이며, 종래부터 공지된 것을 임의로 사용할 수 있다. 예를 들어, C1 ~ C5 의 저급 알콕시기, 아세톡시기, 부타녹심기, 클로르기 등을 들 수 있다. 또한, 여기서 Ci (i 는 자연수) 라는 표기는, 탄소수가 i 개인 것을 나타낸다. 또한, X 는 수산기여도 된다. 또한, 이들 가수 분해성기는 1 종을 단독으로 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.

- [0189] 그 중에서도, 반응 후에 유리(遊離)되는 성분이 중성인 점에서, C1 ~ C5 의 저급 알콕시기가 바람직하다. 특히, 반응성이 풍부하고, 유리되는 용제가 경비(輕沸)인 점에서, 메톡시기 또는 에톡시기가 바람직하다.
- [0190] 또한, 일반식 (1) 중에서 X 가 아세톡시기나 클로르기인 경우에는, 가수 분해 반응 후에 아세트산이나 염산을 유리시키기 위하여, 절연성이 필요하게 되는 반도체 발광 디바이스용 부재로서 사용하는 경우에는, 산 성분을 제거하는 공정을 추가하는 것이 바람직하다.
- [0191] 일반식 (1) 중, Y^1 은 이른바 실란 커플링제의 1 가의 유기기로서 공지된 것을 모두 임의로 선택하여 사용할 수 있다. 또한, Y^1 이 식 중에 2 개 이상 존재하는 경우, 그것들은 서로 동일해도 되고 상이해도 된다. 그 중에서도, 본 발명에 있어서 일반식 (1) 에 있어서의 Y^1 로서 특히 유용한 유기기란, 이하의 Y^0 에 표시되는 군 (유용 유기기군) 에서 선택되는 것이다.
- [0192] <유용 유기기군 Y^0 >
- [0193] Y^0 : 지방족 화합물, 지환식 화합물, 방향족 화합물, 지방 방향족 화합물로부터 유도되는 1 가 이상의 유기기이다.
- [0194] 또한, 군 Y^0 에 속하는 유기기의 탄소수는, 통상 1 이상, 또한, 통상 1000 이하, 바람직하게는 500 이하, 보다 바람직하게는 100 이하, 더욱 바람직하게는 50 이하이다.
- [0195] 또한, 군 Y^0 에 속하는 유기기가 갖는 수소 원자 중 적어도 일부는, 하기에 예시하는 원자 및/또는 유기 관능기 등의 치환기로 치환되어 있어도 된다. 이 때, 군 Y^0 에 속하는 유기기가 갖는 수소 원자 중 복수가 하기 치환기로 치환되어 있어도 되며, 이 경우, 하기에 나타내는 치환기 중에서 선택한 1 종 또는 2 종 이상의 조합에 의해 치환되어 있어도 된다.
- [0196] 군 Y^0 에 속하는 유기기의 수소 원자와 치환 가능한 치환기의 예로서는, F, Cl, Br, I 등의 원자; 비닐기, 메타 크릴록시기, 아크릴록시기, 스티릴기, 메르캅토기, 에폭시기, 에폭시시클로헥실기, 글리시독시기, 아미노기, 시아노기, 니트로기, 술폰산기, 카르복시기, 히드록시기, 아실기, 알콕시기, 이미노기, 페닐기 등의 유기 관능기 등을 들 수 있다.
- [0197] 또한, 상기 모든 경우에 있어서, 군 Y^0 에 속하는 유기기가 갖는 수소 원자와 치환 가능한 치환기 중, 유기 관능기에 대해서는, 그 유기 관능기가 갖는 수소 원자 중 적어도 일부가 F, Cl, Br, I 등의 할로겐 원자 등으로 치환되어 있어도 된다.
- [0198] 단, 군 Y^0 에 속하는 유기기의 수소와 치환 가능한 치환기로서 예시한 것 중에서도, 유기 관능기는, 도입하기 쉬운 것의 일례이고, 사용 목적에 따라 이 밖에 각종 물리 화학적 기능성을 갖는 유기 관능기를 도입해도 된다.
- [0199] 또한, 군 Y^0 에 속하는 유기기는, 그 중에 연결기로서 O, N, 또는 S 등의 각종 원자 또는 원자단을 갖는 것이어도 된다.
- [0200] 일반식 (1) 중, Y^1 은, 상기의 유용 유기기군 Y^0 에 속하는 유기기 등으로부터, 그 목적에 따라 여러가지 기를 선택할 수 있지만, 내자외선성, 내열성이 우수한 점에서 메틸기 및 페닐기를 주체로 하는 것이 바람직하다. 또한, 반도체 발광 디바이스를 구성하는 각 부재와의 친화성이나 밀착성의 향상, 혹은 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 굴절률의 조정을 위해 적절히, 그 밖의 기를 이용해도 상관없다.
- [0201] 상기 서술한 화합물 (1) 의 구체예를 들면, M 이 규소인 화합물로서는, 예를 들어, 디메틸디메톡시실란, 디메틸 디에톡시실란, 디페닐디메톡시실란, 디페닐디에톡시실란, 비닐트리메톡시실란, 비닐트리에톡시실란, 비닐트리아세톡시실란, γ -아미노프로필트리메톡시실란, γ -글리시독시프로필트리메톡시실란, γ -글리시독시프로필트리에톡시실란, β -(3,4-에폭시시클로헥실)에틸트리메톡시실란, γ -(3,4-에폭시시클로헥실)에틸트리에톡시실란, γ -

(메타)아크릴록시프로필트리메톡시실란, 페닐트리메톡시실란, 페닐트리아세톡시실란, γ -메르캅토프로필트리메톡시실란, γ -클로로프로필트리메톡시실란, β -시아노에틸트리메톡시실란, 메틸트리메톡시실란, 메틸트리에톡시실란, 메틸트리프로폭시실란, 메틸트리부톡시실란, 에틸트리메톡시실란, 에틸트리에톡시실란, 테트라메톡시실란, 테트라에톡시실란, 테트라프로폭시실란, 테트라부톡시실란, 디메틸디클로로실란, 디페닐디클로로실란, 메틸페닐디메톡시실란, 트리메틸메톡시실란, 트리메틸에톡시실란, 트리메틸클로로실란, 메틸트리클로로실란, γ -아미노프로필트리에톡시실란, 4-아미노부틸트리에톡시실란, p-아미노페닐트리메톡시실란, N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란, 아미노에틸아미노메틸페네틸트리메톡시실란, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란, 2-(3,4-에폭시시클로헥실)에틸트리메톡시실란, 3-아미노프로필트리메톡시실란, 3-아미노프로필트리에톡시실란, 4-아미노부틸트리에톡시실란, N-(6-아미노헥실)아미노프로필트리메톡시실란, 3-클로로프로필트리메톡시실란, 3-클로로프로필트리클로로실란, (p-클로로메틸)페닐트리메톡시실란, 4-클로로페닐트리메톡시실란, 3-메타크릴록시프로필트리메톡시실란, 3-메타크릴록시프로필트리에톡시실란, 3-아크릴록시프로필트리메톡시실란, 스티릴에틸트리메톡시실란, 3-메르캅토프로필트리메톡시실란, 비닐트리클로로실란, 비닐트리스(2-메톡시에톡시)실란, 트리플루오로프로필트리메톡시실란 등을 들 수 있다.

[0202] 또한, 화합물 (1) 중, M 이 알루미늄인 화합물로서는, 예를 들어, 알루미늄트라이소프로폭시드, 알루미늄트리n-부톡시드, 알루미늄트리t-부톡시드, 알루미늄트리에톡시드 등을 들 수 있다.

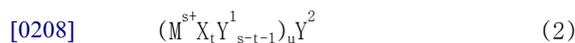
[0203] 또한, 화합물 (1) 중, M 이 지르코늄인 화합물로서는, 예를 들어, 지르코늄테트라메톡시드, 지르코늄테트라에톡시드, 지르코늄테트라n-프로폭시드, 지르코늄테트라i-프로폭시드, 지르코늄테트라n-부톡시드, 지르코늄테트라i-부톡시드, 지르코늄테트라t-부톡시드, 지르코늄디메타크릴레이트디부톡시드 등을 들 수 있다.

[0204] 또한, 화합물 (1) 중, M 이 티탄인 화합물로서는, 예를 들어, 티탄테트라이소프로폭시드, 티탄테트라n-부톡시드, 티탄테트라i-부톡시드, 티탄메타크릴레이트트라이소프로폭시드, 티탄테트라메톡시프로폭시드, 티탄테트라n-프로폭시드, 티탄테트라에톡시드 등을 들 수 있다.

[0205] 단, 이들에 구체적으로 예시한 화합물은, 입수 용이한 시판 중인 커플링제의 일부이며, 더욱 자세하게는, 예를 들어, 과학기술 종합연구소 발행의 「커플링제 최적 이용 기술」 9 장의 커플링제 및 관련 제품 일람표에 의해 나타낼 수 있다. 또한, 당연히, 본 발명에 사용할 수 있는 커플링제는, 이러한 예시에 의해 제한되는 것이 아니다.

[0206] 또한, 하기 일반식 (2) 로 표시되는 화합물 (이하 적절히 「화합물 (2)」 이라고 한다.) 및/또는 그 올리고머도, 상기 화합물 (1) 및/또는 그 올리고머와 동일하게 사용할 수 있다.

[0207] [화학식 5]



[0209] 일반식 (2) 에 있어서, M, X 및 Y^1 은 각각 독립적으로, 일반식 (1) 과 동일한 것을 나타낸다. 특히 Y^1 로서는, 일반식 (1) 의 경우와 마찬가지로, 상기의 유용 유기기군 Y^0 에 속하는 유기기 등으로부터, 그 목적에 따라 여러가지 기를 선택할 수 있지만, 내자외선성, 내열성이 우수한 점에서, 메틸기를 주체로 하는 것이 바람직하다.

[0210] 또한, 일반식 (2) 에 있어서, s 및 s+ 는, 각각 독립적으로, 일반식 (1) 의 m 및 m+ 와 동일한 것을 나타낸다.

[0211] 또한, 일반식 (2) 에 있어서, Y^2 는 u 개의 유기기를 나타낸다. 단, u 는 2 이상의 정수를 나타낸다. 따라서, 일반식 (2) 중, Y^2 는, 이른바 실란 커플링제의 유기기로서 공지된 것 중 2 가 이상의 것을, 임의로 선택하여 사용할 수 있다.

[0212] 또한, 일반식 (2) 에 있어서, t 는 1 이상, s-1 이하의 정수를 나타낸다. 단, $t \leq s$ 이다.

[0213] 상기 화합물 (2) 의 예로서는, 각종 유기 폴리머나 올리고머에 측사슬로서 가수 분해성 실릴기가 복수 결합하고 있는 것이나, 분자의 복수의 말단에 가수 분해성 실릴기가 결합하고 있는 것 등을 들 수 있다.

[0214] 상기 화합물 (2) 의 구체에 및 그 제품명을 이하에 든다.

[0215] · 비스(트리에톡시실릴프로필)테트라술폰드

- [0216] (신에츠 화학 제조, KBE-846)
- [0217] · 2-디에톡시메틸에틸실릴디메틸-2-푸라닐실란
- [0218] (신에츠 화학 제조, LS-7740)
- [0219] · N,N'-비스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 에틸렌디아민
- [0220] (칩소 제조, 사이라에이스 XS1003)
- [0221] · N-글리시딜-N,N-비스 [3-(메틸디메톡시실릴)프로필] 아민
- [0222] (토시바 실리콘 제조, TSL8227)
- [0223] · N-글리시딜-N,N-비스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 아민
- [0224] (토시바 실리콘 제조, TSL8228)
- [0225] · N,N-비스 [(메틸디메톡시실릴)프로필] 아민
- [0226] (토시바 실리콘 제조, TSL8206)
- [0227] · N,N-비스 [3-(메틸디메톡시실릴)프로필] 에틸렌디아민
- [0228] (토시바 실리콘 제조, TSL8212)
- [0229] · N,N-비스 [(메틸디메톡시실릴)프로필] 메타크릴아미드
- [0230] (토시바 실리콘 제조, TSL8213)
- [0231] · N,N-비스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 아민
- [0232] (토시바 실리콘 제조, TSL8208)
- [0233] · N,N-비스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 에틸렌디아민
- [0234] (토시바 실리콘 제조, TSL8214)
- [0235] · N,N-비스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 메타크릴아미드
- [0236] (토시바 실리콘 제조, TSL8215)
- [0237] · N,N',N"-트리스 [3-(트리메톡시실릴)프로필] 이소시아누레이트
- [0238] (히드라스 화학 제조, 12267-1)
- [0239] 원료로서는 화합물 (1), 화합물 (2), 및/또는 이들의 올리고머를 사용할 수 있다. 즉, 본 발명의 제조 방법에서는, 원료로서 화합물 (1), 화합물 (1)의 올리고머, 화합물 (2), 화합물 (2)의 올리고머, 및 화합물 (1)과 화합물 (2)의 올리고머 중 어느 것을 이용해도 된다. 또한, 원료로서 화합물 (1)의 올리고머 또는 화합물 (2)의 올리고머를 이용하는 경우, 그 올리고머의 분자량은, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻을 수 있는 한 임의이지만, 통상 400 이상이다.
- [0240] 여기서 화합물 (2) 및/또는 그 올리고머를 주원료로서 이용하면 계내의 주사슬 구조가 유기 결합 주체가 되어 내구성이 떨어지는 것이 될 가능성이 있다. 이 때문에, 화합물 (2)는 주로 밀착성 부여나 굴절률 조정, 반응성 제어, 무기 입자 분산성 부여 등의 기능성 부여를 위해 최소한의 사용량으로 이용하는 것이 바람직하다. 화합물 (1) 및/또는 그 올리고머 (화합물 (1) 유래 성분)와, 화합물 (2) 및/또는 그 올리고머 (화합물 (2) 유래 성분)를 동시에 사용하는 경우에는 원료의 총중량에 있어서의 화합물 (2) 유래 성분의 사용량 비율이 통상 30 중량% 이하, 바람직하게는 20 중량% 이하, 더욱 바람직하게는 10 중량% 이하인 것이 바람직하다.
- [0241] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액 및 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법에 있어서, 원료로서 화합물 (1) 또는 화합물 (2)의 올리고머를 이용하는 경우에는, 올리고머를 미리 준비하도록 해도 되지만, 제조 공정 중에서 올리고머를 조제하도록 해도 된다. 즉, 화합물 (1) 또는 화합물 (2)와 같은 모노머를 원료로 하여, 이것을 제조 공정 중에서 일단 올리고머로 하고, 이 올리고머로부터 후의 반응을 진행시키도록 해도 된다.
- [0242] 또한, 올리고머는, 결과적으로 화합물 (1) 또는 화합물 (2)와 같은 모노머로부터 얻어지는 것과 동일한 구조를

갖고 있는 것이면 되고, 그러한 구조를 갖는 시판 중인 것을 이용할 수도 있다. 이러한 올리고머의 구체예로서는, 예를 들어, 이하와 같은 것을 들 수 있다.

- [0243] <2 관능 규소만으로 이루어지는 올리고머의 예>
- [0244] GE 토시바 실리콘사 제조 히드록시 말단 디메틸폴리실록산에서는, 예를 들어, XC96-723, XF3905, YF3057, YF3800, YF3802, YF3807, YF3897 등을 들 수 있다.
- [0245] GE 토시바 실리콘사 제조 히드록시 말단 메틸페닐폴리실록산에서는, 예를 들어, YF3804 등을 들 수 있다.
- [0246] Gelest 사 제조 양 말단 실라놀폴리디메틸실록산에서는, 예를 들어, DMS-S12, DMS-S14 등을 들 수 있다.
- [0247] Gelest 사 제조 양 말단 실라놀디페닐실록산-디메틸실록산 코폴리머에서는, 예를 들어, PDS-1615 를 들 수 있다.
- [0248] Gelest 사 제조 양 말단 실라놀폴리디페닐실록산에서는, 예를 들어, PDS-9931 을 들 수 있다.
- [0249] <3 관능 이상의 규소를 함유하는 올리고머의 예>
- [0250] 신에츠 화학공업 제조 실리콘알콕시 올리고머 (메틸/메톡시형) 에서는, 예를 들어, KC-89 S, KR-500, X-40-9225, X-40-9246, X-40-9250 등을 들 수 있다.
- [0251] 신에츠 화학공업 제조 실리콘알콕시 올리고머 (페닐/메톡시형) 에서는, 예를 들어, KR-217 등을 들 수 있다.
- [0252] 신에츠 화학공업 제조 실리콘알콕시 올리고머 (메틸페닐/메톡시형) 에서는, 예를 들어, KR-9218, KR-213, KR-510, X-40-9227, X-40-9247 등을 들 수 있다.
- [0253] 이들 중, 2 관능 규소만으로 이루어지는 올리고머는 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 유연성을 부여하는 효과가 크지만, 2 관능 규소만으로는 기계적 강도가 불충분해지기 쉽다. 이 때문에, 3 관능 이상의 규소로 이루어지는 모노머 혹은 3 관능 이상의 규소를 함유하는 올리고머와 함께 중합함으로써, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 봉지체로서 유용한 기계적 강도를 얻을 수 있다. 또한, 반응성기로서 실라놀을 갖는 것은 사전에 가수 분해할 필요가 없어, 물을 첨가하기 위한 상용체로서 알코올 등의 용제를 사용할 필요가 없는 장점이 있다. 또한, 알콕시기를 갖는 올리고머를 사용하는 경우에는, 알콕시기를 갖는 모노머를 원료로 하는 경우와 마찬가지로, 가수 분해하기 위한 물이 필요하다.
- [0254] 또한, 원료로서는, 이들 화합물 (1), 화합물 (2), 및 그 올리고머 중 1 종류만을 이용해도 되지만, 2 종류 이상을 임의의 조합 및 조성으로 혼합해도 상관없다. 또한, 미리 가수 분해된 (즉, 일반식 (1), (2) 에 있어서 X 가 OH 기이다) 화합물 (1), 화합물 (2) 및 그 올리고머를 이용하도록 해도 된다.
- [0255] 단, 본 발명에서는 원료로서, 통상적으로는, M 으로서 규소를 함유하고, 또한 유기기 Y¹ 또는 유기기 Y² 를 적어도 1 개 갖는 화합물 (1), 화합물 (2) 및 그 올리고머 (가수 분해된 것을 포함한다) 를 적어도 1 종 이상 이용한다. 또한, 계내의 가교가 주로 실록산 결합을 비롯한 무기 성분에 의해 형성되는 것이 바람직한 점에서, 화합물 (1) 및 화합물 (2) 를 함께 사용하는 경우에는, 화합물 (1) 이 주체가 되는 것이 바람직하다.
- [0256] 또한, 실록산 결합을 주체로 하는 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻기 위해서는, 화합물 (1) 및/또는 그 올리고머를 원료의 주체로서 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 이들 화합물 (1) 의 올리고머 및/또는 화합물 (2) 의 올리고머는 2 관능을 주체로 한 조성으로 구성되어 있는 것이 더욱 바람직하다. 특히, 이 화합물 (1) 의 올리고머 및/또는 화합물 (2) 의 올리고머의 2 관능 단위는 2 관능 올리고머로서 이용되는 것이 바람직하다.
- [0257] 또한, 화합물 (1) 의 올리고머 및/또는 화합물 (2) 의 올리고머 중, 2 관능인 것 (이하 적절히 「2 관능 성분 올리고머」 라고 한다) 을 주체로서 이용하는 경우, 이들 2 관능 성분 올리고머의 사용량은, 원료의 총중량 (즉, 화합물 (1), 화합물 (2), 및 그 올리고머의 중량의 합) 에 대하여, 통상 50 중량% 이상, 바람직하게는 60 중량% 이상, 보다 바람직하게는 70 중량% 이상이다. 또한, 사용량의 상한은 통상 97 중량% 이다. 2 관능 성분 올리고머를 원료의 주체로서 사용하는 것이, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법에 의해, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 용이하게 제조할 수 있는 요인 중 하나가 되어 있기 때문이다.
- [0258] 이하, 2 관능 성분 올리고머를 원료의 주체로서 이용한 것에 의한 이점에 대하여 자세하게 설명한다.

- [0259] 예를 들어 종래의 졸겔법에 의해 제조되고 있던 반도체 발광 디바이스용 부재에서는, 그 원료를 가수 분해 및 중축합시킨 가수 분해·중축합물(도포액(가수 분해액)에 함유된 것 등을 포함한다)은 높은 반응 활성을 갖고 있었다. 따라서, 그 가수 분해·중축합물을 알코올 등의 용매로 희석하지 않으면 계내의 중합이 진행되어, 곧바로 경화되기 때문에, 성형이나 취급이 곤란하였다. 예를 들어, 종래에는 용매로 희석하지 않는 경우에는, 온도가 40℃ ~ 50℃ 정도라도 경화되는 경우가 있었다. 따라서, 가수 분해 후에 얻어진 가수 분해·중축합물의 취급성을 확보하기 위해서는, 가수 분해·중축합물에 용매를 공존시키는 것이 필수였다.
- [0260] 또한, 가수 분해·중축합물에 용매를 공존시킨 채 가수 분해·중축합물의 건조·경화를 행하게 하면, 경화시에 탈수 축합에 의한 수축에 더하여, 탈용매에 의한 수축(탈용매 수축)이 가미된다. 이것에 의해, 종래의 반도체 발광 디바이스에서는, 경화물의 내부 응력이 커지기 쉽고, 이 내부 응력에 기인하는 크랙, 박리, 단선 등이 발생하기 쉬웠다.
- [0261] 또한, 상기의 내부 응력을 완화하기 위하여 반도체 발광 디바이스용 부재를 유연화하는 목적에서 원료로서 2 관능 성분 모노머를 다용하면, 중축합체내의 저비(低沸) 환상체가 많아질 가능성이 있었다. 저비 환상체는 경화시에 휘발되어 버리기 때문에, 저비 환상체가 많아지면 중량 수율이 저하되게 된다. 또한, 저비 환상체는 경화물로부터도 휘발되어, 응력 발생의 원인이 되는 경우가 있다. 또한, 저비 환상체를 많이 포함하는 반도체 발광 디바이스용 부재는 내열성이 낮아지는 경우가 있다. 이러한 이유로 인해, 종래에는, 반도체 발광 디바이스용 부재를 성능이 좋은 엘라스토머형 경화체로서 얻는 것은 곤란하였다.
- [0262] 이에 대하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조 방법에서는, 원료로서 별도의 계에서(즉, 가수 분해·중축합 공정에 관여하지 않는 계에서) 2 관능 성분을 미리 올리고머화하고, 반응성 말단을 갖지 않는 저비 불순물을 증류 제거한 것을 원료로서 사용하도록 하고 있다. 따라서, 2 관능 성분(즉, 상기의 2 관능 성분 올리고머)을 다용해도, 이들 저비 불순물이 휘발되는 일은 없어, 경화물 중량 수율의 향상을 실현할 수 있음과 함께, 성능이 좋은 엘라스토머형 경화물을 얻을 수 있다.
- [0263] 또한, 2 관능 성분 올리고머를 주원료로 함으로써, 가수 분해·중축합물의 반응 활성을 억제할 수 있다. 이것은 가수 분해·중축합물의 입체 장애 및 전자 효과, 그리고 2 관능 성분 올리고머를 사용한 것에 수반하여 실라놀 말단량이 저감된 것에 의하는 것이라고 추찰된다. 반응 활성을 억제함으로써, 용매를 공존시키지 않아도 가수 분해·중축합물은 경화되지 않고, 따라서, 가수 분해·중축합물을 일액형, 또한 무용매계로 할 수 있다.
- [0264] 또한, 가수 분해·중축합물의 반응 활성이 저하됨으로써, 경화 개시 온도를 종래보다 높게 하는 것이 가능해졌다. 따라서, 가수 분해·중축합물의 경화 개시 온도 이하의 용매를 가수 분해·중축합물에 공존시켰을 경우에는, 가수 분해·중축합물의 건조시에, 가수 분해·중축합물의 경화가 개시되기보다 이전에 용매가 휘발되게 된다. 이것에 의해, 용매를 사용한 경우라도 탈용매 수축에 기인하는 내부 응력의 발생을 억제하는 것이 가능해진다.
- [0265] [II-2. 가수 분해·중축합 공정]
- [0266] 본 발명에서는 우선, 상기 서술한 화합물(1) 및/또는 화합물(2), 및/또는, 그 올리고머를 가수 분해·중축합 반응시킨다(가수 분해·중축합 공정). 이 가수 분해·중축합 반응은 공지된 방법에 의해 행할 수 있다. 또한, 이하 적절히 화합물(1) 및 화합물(2) 그리고 올리고머를 구별하지 않고 나타내는 경우, 「원료 화합물」이라고 한다.
- [0267] 원료 화합물의 가수 분해·중축합 반응을 행하기 위해 사용하는 물의 이론량은, 하기 식(3)에 나타내는 반응식에 기초하여, 계내의 가수 분해성기의 총량의 1/2 몰비이다.
- [0268] [수학식 1]
- [0269]
$$2 \times \equiv\text{Si-X} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \equiv\text{Si-O-Si}\equiv + 2 \times \text{XH} \quad (3)$$
- [0270] 또한, 상기 식(3)은 일반식(1), (2)의 M이 규소인 경우를 예로서 나타내고 있다. 또한, 「 $\equiv\text{Si}$ 」 및 「 $\text{Si}\equiv$ 」는 규소 원자가 갖는 4개의 결합수(手) 중 3개를 생략하여 나타낸 것이다.
- [0271] 본 명세서에서는, 이 가수 분해시에 필요한 물의 이론량, 즉 가수 분해성기의 총량의 1/2 몰비에 상당하는 물의 양을 기준(가수 분해율 100%)으로 하여, 가수 분해시에 사용하는 물의 양을 이 기준량에 대한 백분율, 즉 「가수 분해율」로 나타낸다.

- [0272] 본 발명에 있어서, 가수 분해·중축합 반응을 행하기 위하여 사용하는 물의 양은, 상기 서술한 가수 분해율로 나타낸 경우에, 통상 80% 이상, 그 중에서도 100% 이상의 범위가 바람직하다. 가수 분해율이 이 범위보다 적은 경우, 가수 분해·중축합이 불충분하기 때문에, 경화시에 원료가 휘발되거나 경화물의 강도가 불충분해지거나 할 가능성이 있다. 한편, 가수 분해율이 200% 를 초과하는 경우, 경화 도중의 계내에는 항상 유리된 물이 잔존하여, 칩이나 형광체에 수분에 의한 열화를 가져오거나, 컵부가 흡수하여, 경화시의 발포, 크랙, 박리의 원인이 되거나 하는 경우가 있다. 단, 가수 분해 반응에 있어서 중요한 것은 100% 근방 이상 (예를 들어 80% 이상) 의 물로 가수 분해·중축합을 행한다는 것이며, 도포 전에 유리된 물을 제거하는 공정을 부가하면, 200% 를 초과하는 가수 분해율을 적용하는 것은 가능하다. 이 경우, 너무 대량의 물을 사용하면, 제거해야 할 물의 양이나 상용제로서 사용하는 용매의 양이 증가하여, 농축 공정이 번잡해지거나, 중축합이 너무 진행되어 부재의 도포 성능이 저하되거나 하는 경우가 있으므로, 가수 분해율의 상한은 통상 500% 이하, 그 중에서도 300% 이하, 바람직하게는 200% 이하의 범위로 하는 것이 바람직하다.
- [0273] 원료 화합물을 가수 분해·중축합 반응시킬 때에는, 촉매 등을 공존시켜, 가수 분해·중축합 반응을 촉진하는 것이 바람직하다. 이 경우, 사용하는 촉매로서는, 예를 들어, 아세트산, 프로피온산, 부티르산 등의 유기산; 질산, 염산, 인산, 황산 등의 무기산; 유기 금속 화합물 촉매 등을 이용할 수 있다. 또한, 촉매는 1 종을 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다. 이 중, 반도체 발광 디바이스와 직접 접하는 부분에 사용하는 부재로 하는 경우에는, 절연 특성에 영향이 적은 유기 금속 화합물 촉매가 바람직하다. 여기서, 유기 금속 화합물 촉매란, 유기기와 금속 원자가 직접 결합하여 이루어지는 협의의 유기 금속 화합물로 이루어지는 촉매만을 가리키는 것이 아니라, 유기 금속 착물, 금속 알콕시드, 유기산과 금속의 염 등을 포함하는 광의의 유기 금속 화합물로 이루어지는 촉매를 가리킨다.
- [0274] 유기 금속 화합물 촉매 중에서는, 지르코늄, 주석, 아연 및 티탄에서 선택되는 적어도 1 종의 원소를 함유하는 유기 금속 화합물 촉매가 바람직하고, 지르코늄을 함유하는 유기 금속 화합물 촉매가 더욱 바람직하다.
- [0275] 그 구체예를 들면, 지르코늄을 함유하는 유기 금속 화합물 촉매의 예로서는, 지르코늄테트라아세틸아세토네이트, 지르코늄트리부톡시아세틸아세토네이트, 지르코늄디부톡시아세틸아세토네이트, 지르코늄테트라노르말프로폭시드, 지르코늄테트라이소프로폭시드, 지르코늄테트라노르말부톡시드, 지르코늄아실레이트, 지르코늄트리부톡시스테아레이트 등을 들 수 있다.
- [0276] 또한, 티탄을 함유하는 유기 금속 화합물 촉매의 예로서는, 티타늄테트라이소프로폭시드, 티타늄테트라노르말부톡시드, 부틸티타네이트 다이머, 테트라옥틸티타네이트, 티탄아세틸아세토네이트, 티탄옥틸렌글리콜레이트, 티탄에틸아세토아세테이트 등을 들 수 있다.
- [0277] 또한, 아연을 함유하는 유기 금속 화합물 촉매의 예로서는, 아연트리아세틸아세토네이트 등을 들 수 있다.
- [0278] 또한, 주석을 함유하는 유기 금속 화합물 촉매의 예를 들면, 테트라부틸주석, 모노부틸주석트리클로라이드, 디부틸주석디클로라이드, 디부틸주석옥사이드, 테트라옥틸주석, 디옥틸주석디클로라이드, 디옥틸주석옥사이드, 테트라메틸주석, 디부틸주석라우레이트, 디옥틸주석라우레이트, 비스(2-에틸헥사노에이트)주석, 비스(네오데카노에이트)주석, 디-n-부틸비스(에틸헥실말레이트)주석, 디-노르말부틸비스(2,4-펜탄디오네이트)주석, 디-노르말부틸부톡시클로로주석, 디-노르말부틸디아세톡시주석, 디-노르말부틸디아우르산주석, 디메틸디네오데카노에이트주석 등을 들 수 있다.
- [0279] 또한, 이들 유기 금속 화합물 촉매는, 1 종을 단독으로 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.
- [0280] 상기의 바람직한 유기 금속 화합물 촉매를 이용함으로써, 원료 화합물을 가수 분해·중축합할 때에는, 부생물의 저분자 환상(環狀) 실록산의 생성을 억제하여, 높은 수율로 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 합성할 수 있다.
- [0281] 또한, 이 유기 금속 화합물 촉매를 이용함으로써, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 높은 내열성을 실현할 수 있다. 그 이유는 분명하지 않지만, 상기 유기 금속 화합물은, 단지 촉매로서 원료 화합물의 가수 분해·중축합 반응을 촉진할 뿐만 아니라, 가수 분해·중축합물 및 그 경화물의 실라놀 말단에 일시적으로 결합·해리될 수 있고, 이것에 의해 실라놀 함유 폴리실록산의 반응성을 조정하여, 고온 조건에 있어서의 (i) 유기기의 산화의 방지, (ii) 폴리머간의 불필요한 가교의 방지, (iii) 주사슬의 절단 등을 방지하는 작용이 있다고 생각된다. 이하, 이들 작용 (i) ~ (iii) 에 대하여 설명한다.

- [0282] (i) 유기기의 산화의 방지로서는, 열의 작용에 의해, 예를 들어 메틸기 상에 라디칼이 발생했을 때, 유기 금속 화합물 촉매의 천이 금속이 라디칼을 보충하는 효과를 갖는다. 한편, 이 천이 금속 자체는 라디칼 보충에 의해 이온 가수를 상실하고, 그 때문에 산소와 작용하여 유기기의 산화를 방지한다. 그 결과로서, 반도체 발광 디바이스용 부재의 열화를 억제하게 된다고 추찰된다.
- [0283] (ii) 폴리머간의 불필요한 가교의 방지로서는, 예를 들어, 메틸기가 산소 분자에 의해 산화를 받으면 폼알데히드가 되어, 규소 원자에 결합한 수산기가 생성된다. 이렇게 생성된 수산기끼리가 탈수 축합하면 폴리머간에 가교점이 생기고, 그것이 증가함으로써 본래 고무형이었던 반도체 발광 디바이스용 부재가 딱딱하고, 취약해질 가능성이 있다. 그러나, 유기 금속 화합물 촉매는 실라놀기와 결합하고, 이것에 의해, 열분해에 의한 가교의 진행을 방지할 수 있는 것이라고 추찰된다.
- [0284] (iii) 주사슬의 절단 등의 방지로서는, 유기 금속 화합물 촉매가 실라놀과 결합함으로써, 실라놀의 분자내 공격에 의한 폴리머 주사슬의 절단 및 환상 실록산의 생성에 의한 가열 증량감을 억제하여, 내열성이 향상되는 것이라고 추찰된다.
- [0285] 유기 금속 화합물 촉매의 바람직한 배합량은, 사용하는 촉매의 종류에 따라 적절히 선택되지만, 가수 분해·중축합을 실시하는 원료의 총중량에 대하여, 통상 0.01 중량% 이상, 바람직하게는 0.05 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 0.1 중량% 이상, 또한, 통상 5 중량% 이하, 바람직하게는 2 중량% 이하, 특히 바람직하게는 1 중량% 이하이다. 유기 금속 화합물 촉매가 너무 적으면, 경화에 시간이 너무 걸리거나, 경화가 불충분하기 때문에 충분한 기계적 강도나 내구성이 얻어지지 않거나 할 가능성이 있다. 한편, 유기 금속 화합물 촉매가 너무 많으면, 경화가 너무 빨라 경화물인 반도체 발광 디바이스용 부재의 물성의 제어가 곤란해지거나, 촉매가 용해 분산되지 못하고 석출되어 반도체 발광 디바이스용 부재의 투명도를 해치거나, 촉매 자체가 반입하는 유기물량이 많아져 얻어지는 반도체 발광 디바이스용 부재가 고온 사용시에 착색되거나 할 가능성이 있다.
- [0286] 이들 유기 금속 촉매는, 가수 분해·축합시에 일괄적으로 원료계에 혼합해도 되고, 또한 분할 혼합해도 된다. 또한, 가수 분해·중축합시에 촉매를 용해시키기 위하여 용매를 사용해도 되고, 직접 반응액에 촉매를 용해시켜도 된다. 단, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액으로서 사용할 때에는, 경화시의 발포나 열에 의한 착색을 막기 위하여, 가수 분해·중축합 공정의 후에 상기의 용매를 엄밀하게 증류 제거하는 것이 바람직하다.
- [0287] 상기의 원료 화합물의 가수 분해·중축합물(중축합물)은, 바람직하게는 액상이다. 그러나, 고체상의 가수 분해·중축합물에서도, 용매를 이용함으로써 액상으로 되는 것이면 사용할 수 있다.
- [0288] 가수 분해·중축합 반응시에 계내가 분액하여 불균일해지는 경우에는, 용매를 사용해도 된다. 용매로서는, C1 ~ C3 의 저급 알코올류, 디메틸포름아미드, 디메틸술폭시드, 아세톤, 테트라히드로푸란, 메틸셀로솔브, 에틸셀로솔브, 메틸에틸케톤, 그 밖의 물과 균일하게 혼합할 수 있는 용매를 임의로 이용할 수 있는데, 그 중에서도 강한 산성이나 염기성을 나타내지 않는 것이 가수 분해·중축합에 악영향을 주지 않는 이유에서 바람직하다. 용매는 1 종을 단독으로 사용해도 되지만, 복수종을 병용할 수도 있다. 용매 사용량은 자유롭게 선택할 수 있지만, 반도체 발광 디바이스에 도포할 때에는 용매를 제거할 필요가 있기 때문에, 필요 최저한의 양으로 하는 것이 바람직하다. 또한, 용매 제거를 용이하게 하기 위하여, 비점이 100℃ 이하, 보다 바람직하게는 80℃ 이하의 용매를 선택하는 것이 바람직하다. 또한, 외부로부터 용매를 첨가하지 않아도 가수 분해 반응에 의해 알코올 등의 용매가 생성되기 때문에, 반응 당초에는 불균일하더라도 반응 중에 균일해지는 경우도 있다.
- [0289] 상기 원료 화합물의 가수 분해·중축합 반응은, 상압에서 실시하는 경우, 통상 실온 이상, 바람직하게는 40℃ 이상, 또한, 통상 120℃ 이하, 바람직하게는 100℃ 이하의 범위에서 행한다. 가압하에서 액상을 유지함으로써 보다 높은 온도에서 행하는 것도 가능하지만, 150℃ 를 초과하지 않는 것이 바람직하다.
- [0290] 가수 분해·중축합 반응 시간은 반응 온도에 따라 달라지는데, 통상 0.1 시간 이상, 바람직하게는 1 시간 이상, 더욱 바람직하게는 3 시간 이상, 또한, 통상 100 시간 이하, 바람직하게는 20 시간 이하, 더욱 바람직하게는 15 시간 이하의 범위에서 실시된다.
- [0291] 이상의 가수 분해·중축합 조건에 있어서, 시간이 짧아지거나 온도가 너무 낮거나 하면, 가수 분해·중축합이 불충분하기 때문에 경화시에 원료가 휘발되거나 경화물의 강도가 불충분해질 가능성이 있다. 또한, 시간이 길어지거나 온도가 너무 높거나 하면, 중축합물의 분자량이 많아져, 계내의 실라놀량이 감소하여, 도포시에 밀착성 불량이나 생기기나 경화가 너무 빨라 경화물의 구조가 불균일해져, 크랙을 발생시키기 쉬워진다. 이상의 경향을 근거로 하여, 원하는 물성치에 따라 조건을 적절히 선택하는 것이 바람직하다.

- [0292] 상기 가수 분해·중축합 반응이 종료된 후, 얻어진 가수 분해·중축합물은 그 사용시까지 실온 이하에서 보관되지만, 이 기간에도 천천히 중축합이 진행되기 때문에, 특히 후막형의 부재로서 사용하는 경우에는 상기 가운데 의한 가수 분해·중축합 반응이 종료된 시점으로부터 실온 보관에서 통상 60 일 이내, 바람직하게는 30 일 이내, 더욱 바람직하게는 15 일 이내에 사용에 제공하는 것이 바람직하다. 필요에 따라 얼지 않는 범위에서 저온 보관함으로써, 이 기간을 연장할 수 있다.
- [0293] [II-3. 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 첨가]
- [0294] 고굴절률 특정 금속 산화물 입자를 첨가하는 경우, 그 종류는 상기 서술한 특정 금속 원소 중 1 종 이상을 적어도 함유하는 입자이면, 특별히 제한되지 않지만, 통상적으로는, 특정 금속 원소의 산화물로 이루어지는 입자(금속 산화물 입자)를 이용한다.
- [0295] 고굴절률 특정 금속 산화물 입자를 첨가하는 수법으로서, 가수 분해·중축합 반응액에 분말형으로 하여 단독으로 첨가하는 방법이나, 수계 혹은 용제계의 졸로서 용제와 함께 가수 분해·중축합 반응액에 첨가하는 방법 등을 들 수 있다. 이들은 어느 쪽을 채용해도 되지만, 투명한 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻기 위해서는, 입자경이 작고 고분산인 용제계 졸로서 첨가하는 방법이 가장 간편하다.
- [0296] 고굴절률 특정 금속 산화물 입자는, 결정의 분산 상태가 안정적인 경우에는, 이것을 그대로 반도체 발광 디바이스용 부재에 도입할 수 있어, 고굴절률화의 효과가 현저히 얻어지므로 바람직하다. 한편, 분산 상태가 불안정한 경우에는, 안정 분산을 위한 배위자를 수반하고 있어도 된다. 또한, 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 표면이 촉매 활성을 갖고, 반도체 발광 디바이스용 부재의 유기기 부분의 내열성·내광성을 해칠 가능성이 있는 경우나, 매트릭스 부분과의 친화성이 낮아 응집이 일어나기 쉬운 경우에는, 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 표면에 적절히, 공지된 코팅층을 형성할 수 있다. 이들의 경우, 배위자나 코팅층 자체가 내열성·내광성이 우수한 것이 바람직하다. 또한, 일반적으로 이러한 배위자나 코팅층은 저굴절률인 경우가 많기 때문에, 배위자나 코팅층의 사용량은 필요 최저한으로 한정시키는 것이 바람직하다.
- [0297] 고굴절률 특정 금속 산화물 입자를 첨가하는 타이밍은 특별히 제한되지 않고, 상기 서술한 원료 화합물을 가수 분해 중축합 하기 전이어도 되고(전첨가법), 후이어도 된다(후첨가법). 후첨가법시에 가수 분해·중축합 후의 반응액과 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 친화성이 나빠, 경화시에 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 응집이 일어나는 경우에는, 전첨가법을 채용하는 것이 바람직하다. 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 공존 하에서 원료 화합물의 가수 분해·중축합을 행하면, 입자의 표면에 반도체 발광 디바이스용 부재 자체에 의한 코팅층이 생성되어, 안정적으로 도포·경화하는 것이 가능해진다.
- [0298] 고굴절률 특정 금속 산화물 입자의 굴절률은, 소량으로 반도체 발광 디바이스용 부재의 굴절률을 향상시키는 관점에서, 통상 1.6 이상, 그 중에서도 1.8 이상, 1.9 이상으로 하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0299] [II-4. 용매 증류 제거]
- [0300] 원료 화합물로서 2 관능의 올리고머를 주성분으로서 이용하여, 상기의 가수 분해·중축합 공정에 있어서 용매를 이용한 경우에는, 통상, 경화 전에 용매를 증류 제거하는 것이 바람직하다(용매 증류 제거 공정). 이 경우, 용매 증류 제거 후의 가수 분해·중축합물은 통상적으로는 액상이 된다. 종래에는 용매를 증류 제거하면 가수 분해·중축합물이 경화되어 버리기 때문에 가수 분해·중축합물의 취급이 곤란하였다. 그러나, 2 관능 성분 올리고머를 사용하면 가수 분해·중축합물의 반응성이 억제되기 때문에, 경화 전에 용매를 증류 제거해도 가수 분해·중축합물은 경화되지 않게 되어, 용매의 증류 제거가 가능하다. 용매를 경화 전에 증류 제거해 줌으로써, 탈용매 수축에 의한 크랙, 박리, 단선 등을 방지할 수 있다.
- [0301] 또한, 통상적으로는, 용매의 증류 제거시에, 가수 분해에 이용한 물의 증류 제거도 행해진다. 또한, 증류 제거되는 용매에는, 상기의 일반식 (1), (2) 로 표시되는 원료 화합물의 가수 분해·중축합 반응에 의해 생성되는, XH 등으로 표시되는 용매도 포함된다.
- [0302] 용매를 증류 제거하는 방법은, 본 발명의 경화를 현저히 해치지 않는 한 임의이다. 단, 가수 분해·중축합물의 경화 개시 온도 이상의 온도에서 용매의 증류 제거를 행하는 것은 피하도록 한다.
- [0303] 용매의 증류 제거를 행할 때의 온도 조건의 구체적인 범위를 들면, 통상 60℃ 이상, 바람직하게는 80℃ 이상, 보다 바람직하게는 100℃ 이상, 또한 통상 150℃ 이하, 바람직하게는 130℃ 이하, 보다 바람직하게는 120℃ 이하이다. 이 범위의 하한을 밑돌면 용매의 증류 제거가 불충분해질 가능성이 있고, 상한을 웃돌면 가수 분해·중축합물이 겔화될 가능성이 있다.

- [0304] 또한, 용매의 증류 제거를 행할 때의 압력 조건은, 통상적으로는 상압이다. 또한, 필요에 따라서 용매 증류 제거시의 반응액 비점이 경화 개시 온도 (통상적으로는 120℃ 이상) 에 도달하지 않도록 감압한다. 또한, 압력의 하한은, 가수 분해·중축합물의 주성분이 증류 추출되지 않는 정도이다.
- [0305] 일반적으로 고온·고진공 조건으로 경비분은 효율적으로 증류 제거할 수 있지만, 경비분이 미량이기 때문에 장치 형상에 따라 정밀하게 증류 제거할 수 없는 경우에는, 고온 조작에 의해 더욱 중합이 진행되어 분자량이 너무 오를 가능성이 있다. 또한, 소정의 종류의 촉매를 사용하고 있는 경우에는, 장시간 고온 반응에 제공하면 활성을 잃고, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 경화시키기 어려워질 가능성도 있다. 그래서, 이러한 경우 등에는, 필요에 따라 질소 불어넣기나 수증기 증류 등에 의해 저온 상압에서 경비분을 증류 제거해도 된다. 감압 증류 제거나 질소 불어넣기 등의 어느 경우에도, 가수 분해·중축합물의 주성분 본체가 증류 추출되지 않도록, 전단의 가수 분해·중축합 반응으로 적당히 분자량을 올려 두는 것이 바람직하다. 이들 방법에 의해 용매나 수분, 부생 저분자 환상 실록산, 용존 공기 등의 경비분을 충분히 제거한 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 이용하여 제조하는 반도체 발광 디바이스용 부재는, 경비분의 기화에 의한 경화시 발포나 고온 사용시의 디바이스로부터의 박리를 저감시킬 수 있기 때문에, 바람직하다.
- [0306] 단, 용매의 증류 제거를 행하는 것은, 필수 조작은 아니다. 특히, 가수 분해·중축합물의 경화 온도 이하의 비점을 갖는 용매를 이용하고 있는 경우에는, 가수 분해·중축합물의 경화시에, 가수 분해·중축합물의 경화개시되기 전에 용매가 휘발되어 버리기 때문에, 특별히 용매 증류 제거 공정을 행하지 않아도 탈용매 수축에 의한 크랙 등의 생성은 방지할 수 있다. 그러나, 용매의 휘발에 의해 가수 분해·중축합물의 체적이 변화하는 일도 있을 수 있기 때문에, 반도체 발광 디바이스용 부재의 치수나 형상을 정밀하게 제어하는 관점에서는, 용매 증류 제거를 행하는 것이 바람직하다.
- [0307] [II-5. 건조]
- [0308] 상기 서술한 가수 분해·중축합 반응에 의해 얻어진 가수 분해·중축합물을 건조시킴 (건조 공정)으로써, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻을 수 있다. 이 가수 분해·중축합물은 상기 서술한 바와 같이 통상적으로는 액상이지만, 이것을 목적으로 하는 형상의 틀(型)에 넣은 상태에서 건조를 행함으로써, 목적으로 하는 형상을 갖는 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 형성하는 것이 가능해진다. 또한, 이 가수 분해·중축합물을 목적으로 하는 부위에 도포한 상태에서 건조를 행함으로써, 목적으로 하는 부위에 직접, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 형성하는 것이 가능해진다. 또한, 이 액상의 가수 분해·중축합물을, 본 명세서에서는 적절히 「가수 분해·중축합액」 또는 「반도체 발광 디바이스용 부재 형성액」이라고 하는 것으로 한다. 또한, 건조 공정에서는 반드시 용매가 기화되는 것은 아니지만, 여기에서는, 유동성을 갖는 가수 분해·중축합물이 유동성을 잃어 경화되는 현상을 포함하여, 건조 공정이라고 부르는 것으로 한다. 따라서, 용매의 기화를 수반하지 않는 경우에는, 상기 「건조」는 「경화」라고 바꿔 읽어 인식해도 된다.
- [0309] 건조 공정에서는, 가수 분해·중축합물을 추가로 중합시킴으로써, 메탈록산 결합을 형성시키고, 중합물을 경화시켜, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 얻는다.
- [0310] 건조시에는, 가수 분해·중축합물을 소정의 경화 온도까지 가열하여 경화시키도록 한다. 구체적인 온도 범위는 가수 분해·중축합물의 건조가 가능한 한 임의이지만, 메탈록산 결합은 통상 100℃ 이상에서 효율적으로 형성되기 때문에, 바람직하게는 120℃ 이상, 더욱 바람직하게는 150℃ 이상에서 실시된다. 단, 반도체 발광 디바이스와 함께 가열되는 경우에는, 통상적으로는 디바이스 구성 요소의 내열 온도 이하의 온도, 바람직하게는 200℃ 이하에서 건조를 실시하는 것이 바람직하다.
- [0311] 또한, 가수 분해·중축합물을 건조시키기 위하여 경화 온도로 유지하는 시간 (경화 시간) 은 촉매 농도나 부재의 두께 등에 의해 일률적으로는 정할 수 없지만, 통상 0.1 시간 이상, 바람직하게는 0.5 시간 이상, 더욱 바람직하게는 1 시간 이상, 또한, 통상 10 시간 이하, 바람직하게는 5 시간 이하, 더욱 바람직하게는 3 시간 이하의 범위에서 실시된다.
- [0312] 또한, 건조 공정에 있어서의 승온 조건은 특별히 제한되지 않는다. 즉, 건조 공정의 사이, 일정한 온도에서 유지해도 되고, 연속적 또는 단속적으로 온도를 변화시켜도 된다. 또한, 건조 공정을 다시 복수회로 나누어 행해도 된다. 또한, 건조 공정에 있어서, 온도를 단계적으로 변화시키도록 해도 된다. 온도를 단계적으로 변화시킴으로써, 잔류 용매나 용존수증기에 의한 발포를 막을 수 있다는 이점을 얻을 수 있다. 또한, 저온에서 경화시킨 후, 고온에서 추후 경화시킨 경우에는, 얻어지는 반도체 발광 디바이스용 부재 중에 내부 응력이 발생하기 어려워, 크랙이나 박리를 발생시키기 어렵다는 이점도 얻을 수 있다.

- [0313] 단, 상기 서술한 가수 분해·중축합 반응을 용매의 존재하에서 행했을 때에, 용매 증류 제거 공정을 행하지 않은 경우나, 용매 증류 제거 공정을 행해도 가수 분해·중축합물 중에 용매가 잔류하고 있는 경우에는, 이 건조 공정을, 용매의 비점 이하의 온도에서 용매를 실질적으로 제거하는 제 1 건조 공정과, 그 용매의 비점 이상의 온도에서 건조시키는 제 2 건조 공정으로 나누어 행하는 것이 바람직하다. 또한, 여기서 말하는 「용매」에는, 상기 서술한 원료 화합물의 가수 분해·중축합 반응에 의해 생성되는, XH 등으로 표시되는 용매도 포함된다. 또한, 본 명세서에 있어서의 「건조」란, 상기 서술한 원료 화합물의 가수 분해·중축합물이 용매를 잃어, 추가로 중합·경화시켜 메탈록산 결합을 형성하는 공정을 가리킨다.
- [0314] 제 1 건조 공정은, 원료 화합물의 가수 분해·중축합물의 추가적인 중합을 적극적으로 진행하지 않고, 함유되는 용매를 그 용매의 비점 이하의 온도에서 실질적으로 제거하는 것이다. 즉, 이 공정에서 얻어지는 생성물은, 건조 전의 가수 분해·중축합물이 농축되어, 수소 결합에 의해 점조한 액 혹은 부드러운 막형으로 된 것이나, 용매가 제거되어 가수 분해·중축합물이 액상으로 존재하고 있는 것이다.
- [0315] 단, 통상적으로는, 용매의 비점 미만의 온도에서 제 1 건조 공정을 행하는 것이 바람직하다. 그 용매의 비점 이상의 온도에서 제 1 건조를 행하면, 얻어지는 막에 용매의 증기에 의한 발포가 생겨, 결합이 없는 균질한 막을 얻기 어려워진다. 이 제 1 건조 공정은, 박막형의 부재로 한 경우 등 용매의 증발의 효율이 좋은 경우에는 단독 스텝으로 행해도 되지만, 겹 상에 몰드한 경우 등 증발 효율이 나쁜 경우에는 복수의 스텝으로 나누어 승온시켜도 된다. 또한, 극단적으로 증발 효율이 나쁜 형상인 경우에는, 미리 별도의 효율이 좋은 용기에서 건조 농축을 행한 후, 유동성이 남은 상태에서 도포하고, 추가로 건조를 실시해도 된다. 증발 효율이 나쁜 경우에는, 큰 풍량의 통풍 건조 등 부재의 표면만 농축이 진행되는 수단을 취하지 않고, 부재 전체가 균일하게 건조되도록 공리하는 것이 바람직하다.
- [0316] 제 2 건조 공정은, 상기 서술한 가수 분해·중축합물의 용매가 제 1 건조 공정에 의해 실질적으로 없어진 상태에 있어서, 이 가수 분해·중축합물을 용매의 비점 이상의 온도에서 가열하여, 메탈록산 결합을 형성함으로써, 안정적인 경화물로 하는 것이다. 이 공정에 있어서 용매가 많이 잔류하고 있으면, 가교 반응이 진행되면서 용매 증발에 의한 체적 감소가 생기기 때문에, 큰 내부 응력이 생겨, 수축에 의한 박리나 크랙의 원인이 된다. 메탈록산 결합은 통상 100℃ 이상에서 효율적으로 형성되기 때문에, 제 2 건조 공정은 바람직하게는 100℃ 이상, 더욱 바람직하게는 120℃ 이상에서 실시된다. 단, 반도체 발광 디바이스와 함께 가열되는 경우에는, 통상적으로는 디바이스 구성 요소의 내열 온도 이하의 온도, 바람직하게는 200℃ 이하에서 건조를 실시하는 것이 바람직하다. 제 2 건조 공정에 있어서의 경화 시간은 촉매 농도나 부재의 두께 등에 의해 일률적으로는 정할 수 없지만, 통상 0.1 시간 이상, 바람직하게는 0.5 시간 이상, 더욱 바람직하게는 1 시간 이상, 또한, 통상 10 시간 이하, 바람직하게는 5 시간 이하, 더욱 바람직하게는 3 시간 이하의 범위에서 실시된다.
- [0317] 이와 같이 용매 제거의 공정(제 1 건조 공정)과 경화의 공정(제 2 건조 공정)을 명확하게 나눔으로써, 본 발명의 물성을 갖는 내광성, 내열성이 우수한 반도체 발광 디바이스용 부재를 크랙·박리하는 일 없이 얻는 것이 가능해진다.
- [0318] 단, 제 1 건조 공정 중에서도 경화가 진행되는 경우는 있을 수 있고, 제 2 건조 공정 중에도 용매 제거가 진행되는 경우는 있을 수 있다. 그러나, 제 1 건조 공정 중의 경화나 제 2 건조 공정 중의 용매 제거는, 통상적으로는 본 발명의 효과에 영향을 미치지 않을 정도로 작은 것이다.
- [0319] 또한, 실질적으로 상기 서술한 제 1 건조 공정 및 제 2 건조 공정이 실현되는 한, 각 공정에 있어서의 승온 조건은 특별히 제한되지 않는다. 즉, 각 건조 공정의 사이, 일정한 온도에서 유지해도 되고, 연속적 또는 단속적으로 온도를 변화시켜도 된다. 또한, 각 건조 공정을 다시 복수회로 나누어 행해도 된다. 또한, 제 1 건조 공정의 사이에 일시적으로 용매의 비점 이상의 온도가 되거나, 제 2 건조 공정의 사이에 용매의 비점 미만의 온도가 되는 기간이 개재되거나 하는 경우에서도, 실질적으로 상기 서술한 바와 같은 용매 제거의 공정(제 1 건조 공정)과 경화의 공정(제 2 건조 공정)이 독립적으로 달성되는 한, 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 한다.
- [0320] 또한, 용매로서 가수 분해·중축합물의 경화 온도 이하, 바람직하게는 경화 온도 미만의 비점을 갖는 것을 이용하고 있는 경우에는, 가수 분해·중축합물에 공존하고 있는 용매는, 특별히 온도를 조정하지 않고 가수 분해·중축합물을 경화 온도까지 가열한 경우라도, 건조 공정의 도중에, 온도가 비점에 도달한 시점에서 가수 분해·중축합물로부터 증류 제거되게 된다. 즉, 이 경우, 건조 공정에 있어서 가수 분해·중축합물을 경화 온도까지 승온시키는 과정에 있어서, 가수 분해·중축합물이 경화되기 전에, 용매의 비점 이하의 온도에서 용매를 실질적으로 제거하는 공정(제 1 건조 공정)이 실시된다. 이 경우, 원료 화합물로서 2 관능의 올리고머를 주

성분으로서 이용하고 있으면, 용매 증류 제거 후의 가수 분해·중축합물은 통상적으로는 액상이 된다. 그리고, 그 후, 용매의 비점 이상의 온도 (즉, 경화 온도) 에서 건조시켜, 가수 분해·중축합물을 경화시키는 공정 (제 2 건조 공정) 이 진행되게 된다. 따라서, 용매로서 가수 분해·중축합물의 경화 온도 이하의 비점을 갖는 것을 이용하면, 상기의 제 1 건조 공정과 제 2 건조 공정은, 비록 그 실시로 의도하지 않아도 행해지게 된다. 이 때문에, 용매로서 가수 분해·중축합물의 경화 온도 이하, 바람직하게는 경화 온도 미만의 것을 이용하는 것은, 건조 공정을 실시할 때에는 가수 분해·중축합물이 용매를 함유하고 있었다 하더라도 반도체 발광 디바이스용 부재의 품질에 큰 영향을 주는 일이 없기 때문에, 바람직하다고 할 수 있다.

[0321] [II-6. 기타]

[0322] 상기 서술한 건조 공정 후, 얻어진 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 필요에 따라서 각종 후처리를 실시해도 된다. 후처리의 종류로서는, 몰드부와의 밀착성의 개선을 위한 표면 처리, 반사 방지막의 제작, 광취출 효율 향상을 위한 미세 요철면의 제작 등을 들 수 있다.

[0323] [III. 반도체 발광 디바이스용 부재의 용도]

[0324] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 용도는 특별히 제한되지 않고, 반도체 발광 소자 등을 봉지하기 위한 부재 (봉지재) 로 대표되는 각종 용도에 사용할 수 있다. 그 중에서도, 형광체 입자 및/또는 무기 입자를 병용함으로써, 특정 용도에 따라 적합하게 사용하는 것이 가능해진다. 이하, 이들 형광체 입자 및 무기 입자의 병용에 대하여 설명한다.

[0325] [III-1. 형광체의 병용]

[0326] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 예를 들어, 반도체 발광 디바이스용 부재 중에 형광체를 분산시켜, 반도체 발광 디바이스의 컵내에 몰드하거나, 적당한 투명 지지체 상에 박층형으로 도포함으로써, 과장 변환용 부재로서 사용할 수 있다. 또한, 형광체는 1 종류를 단독으로 이용해도 되고, 2 종류 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.

[0327] [III-1-1. 형광체의 종류]

[0328] 형광체의 조성에는 특별히 제한은 없지만, 결정 모체인 Y_2O_3 , Zn_2SiO_4 등으로 대표되는 금속 산화물, $Ca_5(PO_4)_3Cl$ 등으로 대표되는 인산염 및 ZnS , SrS , CaS 등으로 대표되는 황화물에, Ce , Pr , Nd , Pm , Sm , Eu , Tb , Dy , Ho , Er , Tm , Yb 등의 희토류금속의 이온이나 Ag , Cu , Au , Al , Mn , Sb 등의 금속의 이온을 부활제(付活劑) 또는 공부활제(共付活劑)로서 조합한 것이 바람직하다.

[0329] 결정 모체의 바람직한 예로서는, 예를 들어, $(Zn, Cd)S$, $SrGa_2S_4$, SrS , ZnS 등의 황화물, Y_2O_2S 등의 산황화물, $(Y, Gd)_3Al_5O_{12}$, $YAlO_3$, $BaMgAl_{10}O_{17}$, $(Ba, Sr)(Mg, Mn)Al_{10}O_{17}$, $(Ba, Sr, Ca)(Mg, Zn, Mn)Al_{10}O_{17}$, $BaAl_{12}O_{19}$, $CeMgAl_{11}O_{19}$, $(Ba, Sr, Mg)O \cdot Al_2O_3$, $BaAl_2Si_2O_8$, $SrAl_2O_4$, $Sr_4Al_{14}O_{25}$, $Y_3Al_5O_{12}$ 등의 알루미늄산염, Y_2SiO_5 , Zn_2SiO_4 등의 규산염, SnO_2 , Y_2O_3 등의 산화물, $GdMgB_5O_{10}$, $(Y, Gd)BO_3$ 등의 붕산염, $Ca_{10}(PO_4)_6(F, Cl)_2$, $(Sr, Ca, Ba, Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2$ 등의 할로인산염, $Sr_2P_2O_7$, $(La, Ce) PO_4$ 등의 인산염 등을 들 수 있다.

[0330] 단, 상기의 결정 모체 및 부활제 또는 공부활제는, 원소 조성에는 특별히 제한은 없고, 동족의 원소와 일부 치환할 수도 있고, 얻어진 형광체는 근자외로부터 가시 영역의 광을 흡수하여 가시광을 발하는 것이면 이용하는 것이 가능하다.

[0331] 구체적으로는, 형광체로서 이하에 드는 것을 이용하는 것이 가능하지만, 이들은 어디까지나 예시이며, 본 발명에서 사용할 수 있는 형광체는 이들에 한정되는 것이 아니다. 또한, 이하의 예시에서는, 구조의 일부만이 상이한 형광체를, 적절히 생략하여 나타내고 있다. 예를 들어, 「 $Y_2SiO_5 : Ce^{3+}$ 」, 「 $Y_2SiO_5 : Tb^{3+}$ 」 및 「 $Y_2SiO_5 : Ce^{3+}, Tb^{3+}$ 」를 「 $Y_2SiO_5 : Ce^{3+}, Tb^{3+}$ 」라 통합하여 나타내고, 「 $La_2O_2S : Eu$ 」, 「 $Y_2O_2S : Eu$ 」 및 「 $(La, Y)_2O_2S : Eu$ 」를 「 $(La, Y)_2O_2S : Eu$ 」라 통합하여 나타내고 있다. 생략 개소는 쉼표 (,) 로 구분지어 나타낸다.

[0332] [III-1-1-1. 적색 형광체]

[0333] 적색의 형광을 발하는 형광체 (이하 적절히 「적색 형광체」라고 한다) 가 발하는 형광의 구체적인 파장의 범위

를 예시하면, 피크 파장이 통상 570nm 이상, 바람직하게는 580nm 이상, 또한, 통상 700nm 이하, 바람직하게는 680nm 이하가 바람직하다.

[0334] 이러한 적색 형광체로서는, 예를 들어, 적색 파단면을 갖는 파단 입자로 구성되어, 적색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8 : \text{Eu}$ 로 표시되는 유토포 부활 알칼리 토류 실리콘나이트라이드계 형광체, 규칙적인 결정 성장 형상으로서 거의 구 형상을 갖는 성장 입자로 구성되어, 적색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Y}, \text{La}, \text{Gd}, \text{Lu})_2\text{O}_2\text{S} : \text{Eu}$ 로 표시되는 유토포 부활 희토류 옥시칼코게나이드계 형광체 등을 들 수 있다.

[0335] 또한, 일본 공개특허공보 2004-300247호에 기재된, Ti, Zr, Hf, Nb, Ta, W, 및 Mo 로 이루어지는 군에서 선택 되는 적어도 1 종의 원소를 함유하는 산질화물 및/또는 산황화물을 함유하는 형광체로서, Al 원소의 일부 또는 모두가 Ga 원소로 치환된 알파 사이알론 구조를 갖는 산질화물을 함유하는 형광체도, 본 실시형태에 있어서 이용할 수 있다. 또한, 이들은 산질화물 및/또는 산황화물을 함유하는 형광체이다.

[0336] 또한, 그 밖에, 적색 형광체로서는, $(\text{La}, \text{Y})_2\text{O}_2\text{S} : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 산황화물 형광체, $\text{Y}(\text{V}, \text{P})\text{O}_4 : \text{Eu}$, $\text{Y}_2\text{O}_3 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 산화물 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$, Mn, $(\text{Ba}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 규산염 형광체, $(\text{Ca}, \text{Sr})\text{S} : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 황화물 형광체, $\text{YAlO}_3 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 알루미늄산염 형광체, $\text{LiY}_9(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2 : \text{Eu}$, $\text{Ca}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2 : \text{Eu}$, $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})_3\text{SiO}_5 : \text{Eu}$, $\text{Sr}_2\text{BaSiO}_5 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 규산염 형광체, $(\text{Y}, \text{Gd})_3\text{Al}_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$, $(\text{Tb}, \text{Gd})_3\text{Al}_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 알루미늄산염 형광체, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8 : \text{Eu}$, $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{SiN}_2 : \text{Eu}$, $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{AlSiN}_3 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 질화물 형광체, $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{AlSiN}_3 : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 질화물 형광체, $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba}, \text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 할로인산염 형광체, $(\text{Ba}_3\text{Mg})\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$, Mn, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca}, \text{Mg})_3(\text{Zn}, \text{Mg})\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 규산염 형광체, $3.5 \text{MgO} \cdot 0.5 \text{MgF}_2 \cdot \text{GeO}_2 : \text{Mn}$ 등의 Mn 부활 게르만산염 형광체, Eu 부활 α 사이알론 등의 Eu 부활 산질화물 형광체, $(\text{Gd}, \text{Y}, \text{Lu}, \text{La})_2\text{O}_3 : \text{Eu}$, Bi 등의 Eu, Bi 부활 산화물 형광체, $(\text{Gd}, \text{Y}, \text{Lu}, \text{La})_2\text{O}_2\text{S} : \text{Eu}$, Bi 등의 Eu, Bi 부활 산황화물 형광체, $(\text{Gd}, \text{Y}, \text{Lu}, \text{La})\text{VO}_4 : \text{Eu}$, Bi 등의 Eu, Bi 부활 바나딘산염 형광체, $\text{SrY}_2\text{S}_4 : \text{Eu}$, Ce 등의 Eu, Ce 부활 황화물 형광체, $\text{CaLa}_2\text{S}_4 : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 황화물 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgP}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$, Mn, $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba}, \text{Mg}, \text{Zn})_2\text{P}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 인산염 형광체, $(\text{Y}, \text{Lu})_2\text{WO}_6 : \text{Eu}$, Mo 등의 Eu, Mo 부활 텅스텐산염 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_x\text{Si}_y\text{N}_z : \text{Eu}$, Ce (단, x, y, z 는 1 이상의 정수) 등의 Eu, Ce 부활 질화물 형광체, $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{F}, \text{Cl}, \text{Br}, \text{OH}) : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 할로인산염 형광체, $((\text{Y}, \text{Lu}, \text{Gd}, \text{Tb})_{1-x}\text{Sc}_x\text{Ce}_y)_2(\text{Ca}, \text{Mg})_{1-r}(\text{Mg}, \text{Zn})_{2+r}\text{Si}_{z-q}\text{Ge}_q\text{O}_{12+6\delta}$ 등의 Ce 부활 규산염 형광체 등을 이용하는 것도 가능하다.

[0337] 적색 형광체로서는, β -디케토네이트, β -디케톤, 방향족 카르복실산, 또는 브론스테드산 등의 음이온을 배위자로 하는 희토류 원소 이온 착물로 이루어지는 적색 유기 형광체, 페틸렌계 안료 (예를 들어, 디벤조 { [f, f'] - 4,4',7,7'-테트라페닐} 디인덴노 [1,2,3-cd : 1',2',3'-lm] 페틸렌), 안트라퀴논계 안료, 레이크계 안료, 아조계 안료, 퀴나크리논계 안료, 안트라센계 안료, 이소인돌리논계 안료, 이소인돌리논계 안료, 프탈로시아닌계 안료, 트리페닐메탄계 염기성 염료, 인단트론계 안료, 인도페놀계 안료, 시아닌계 안료, 디옥사진계 안료를 이용하는 것도 가능하다.

[0338] 또한, 적색 형광체 중, 피크 파장이 580nm 이상, 바람직하게는 590nm 이상, 또한, 620nm 이하, 바람직하게는 610nm 이하의 범위내에 있는 것은, 주황색 형광체로서 적합하게 이용할 수 있다. 이러한 주황색 형광체의 예로서는, $(\text{Sr}, \text{Ba})_3\text{SiO}_5 : \text{Eu}$, $(\text{Sr}, \text{Mg})_3(\text{PO}_4)_2 : \text{Sn}^{2+}$, $\text{SrCaAlSiN}_3 : \text{Eu}$, Eu 부활 α 사이알론 등의 Eu 부활 산질화물 형광체 등을 들 수 있다.

[0339] [III-1-1-2. 녹색 형광체]

[0340] 녹색의 형광을 발하는 형광체 (이하 적절히 「녹색 형광체」라고 한다) 가 발하는 형광의 구체적인 파장의 범위를 예시하면, 피크 파장이, 통상 490nm 이상, 바람직하게는 500nm 이상, 또한, 통상 570nm 이하, 바람직하게는 550nm 이하가 바람직하다.

[0341] 이러한 녹색 형광체로서 예를 들어, 파단면을 갖는 파단 입자로 구성되어, 녹색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$ 로 표시되는 유토포 부활 알칼리 토류 실리콘옥시나이트라이드계 형광체, 파단면을 갖는 파

단 입자로 구성되어, 녹색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$ 로 표시되는 유로퓸 부활 알칼리 토류 실리케이트계 형광체 등을 들 수 있다.

[0342] 또한, 그 밖에, 녹색 형광체로서는, $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25} : \text{Eu}$, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{Al}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 알루미늄산염 형광체, $(\text{Sr}, \text{Ba})\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$, $(\text{Ba}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_2(\text{Mg}, \text{Zn})\text{Si}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 규산염 형광체, $\text{Y}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}$, Tb 등의 Ce, Tb 부활 규산염 형광체, $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7\text{-Sr}_2\text{B}_2\text{O}_5 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 붕산인산염 형광체, $\text{Sr}_2\text{Si}_3\text{O}_8\text{-2SrCl}_2 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 할로규산염 형광체, $\text{Zn}_2\text{SiO}_4 : \text{Mn}$ 등의 Mn 부활 규산염 형광체, $\text{CeMgAl}_{11}\text{O}_{19} : \text{Tb}$, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12} : \text{Tb}$ 등의 Tb 부활 알루미늄산염 형광체, $\text{Ca}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2 : \text{Tb}$, $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14} : \text{Tb}$ 등의 Tb 부활 규산염 형광체, $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})\text{Ga}_2\text{S}_4 : \text{Eu}$, Tb , Sm 등의 Eu, Tb, Sm 부활 티오갈레이트 형광체, $\text{Y}_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$, $(\text{Y}, \text{Ga}, \text{Tb}, \text{La}, \text{Sm}, \text{Pr}, \text{Lu})_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 알루미늄산염 형광체, $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12} : \text{Ce}$, $\text{Ca}_3(\text{Sc}, \text{Mg}, \text{Na}, \text{Li})_2\text{Si}_3\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 규산염 형광체, $\text{CaSc}_2\text{O}_4 : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 산화물 형광체, $\text{SrSi}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$, $(\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Ca})\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$, Eu 부활 β 사이알론 등의 Eu 부활 산질화물 형광체, $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 알루미늄산염 형광체, $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 알루미늄산염 형광체, $(\text{La}, \text{Gd}, \text{Y})_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$ 등의 Tb 부활 산황화물 형광체, $\text{LaPO}_4 : \text{Ce}$, Tb 등의 Ce, Tb 부활 인산염 형광체, $\text{ZnS} : \text{Cu}$, Al , $\text{ZnS} : \text{Cu}$, Au , Al 등의 황화물 형광체, $(\text{Y}, \text{Ga}, \text{Lu}, \text{Sc}, \text{La})\text{BO}_3 : \text{Ce}$, Tb , $\text{Na}_2\text{Gd}_2\text{B}_2\text{O}_7 : \text{Ce}$, Tb , $(\text{Ba}, \text{Sr})_2(\text{Ca}, \text{Mg}, \text{Zn})\text{B}_2\text{O}_6 : \text{K}$, Ce , Tb 등의 Ce, Tb 부활 붕산염 형광체, $\text{Ca}_3\text{Mg}(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 할로규산염 형광체, $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba})(\text{Al}, \text{Ga}, \text{In})_2\text{S}_4 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 티오알루미늄네이트 형광체나 티오갈레이트 형광체, $(\text{Ca}, \text{Sr})_8(\text{Mg}, \text{Zn})(\text{SiO}_4)_4\text{Cl}_2 : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 할로규산염 형광체 등을 이용하는 것도 가능하다.

[0343] 또한, 녹색 형광체로서는, 피리딘-프탈이미드 축합 유도체, 벤조옥사지논계, 퀴나졸리논계, 쿠마린계, 퀴노프탈론계, 나프탈산이미드계 등의 형광 색소, 핵실살리실레이트를 배위자로서 갖는 테르븀 착물 등의 유기 형광체를 이용하는 것도 가능하다.

[0344] [Ⅲ-1-1-3. 청색 형광체]

[0345] 청색의 형광을 발하는 형광체 (이하 적절히 「청색 형광체」라고 한다) 가 발하는 형광의 구체적인 파장의 범위를 예시하면, 피크 파장이 통상 420nm 이상, 바람직하게는 440nm 이상, 또한, 통상 480nm 이하, 바람직하게는 470nm 이하가 바람직하다.

[0346] 이러한 청색 형광체로서는, 규칙적인 결정 성장 형상으로서 거의 육각 형상을 갖는 성장 입자로 구성되어, 청색 영역의 발광을 행하는 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$ 로 표시되는 유로퓸 부활 바륨마그네슘알루미늄네이트계 형광체, 규칙적인 결정 성장 형상으로서 거의 구 형상을 갖는 성장 입자로 구성되어, 청색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl} : \text{Eu}$ 로 표시되는 유로퓸 부활 할로인산칼슘계 형광체, 규칙적인 결정 성장 형상으로서 거의 입방체 형상을 갖는 성장 입자로 구성되어, 청색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Cl} : \text{Eu}$ 로 표시되는 유로퓸 부활 알칼리 토류 클로로보레이트계 형광체, 과단면을 갖는 과단 입자로 구성되어, 청록색 영역의 발광을 행하는 $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba})\text{Al}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 또는 $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba})_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25} : \text{Eu}$ 로 표시되는 유로퓸 부활 알칼리 토류 알루미늄네이트계 형광체 등을 들 수 있다.

[0347] 또한, 그 밖에, 청색 형광체로서는, $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7 : \text{Sn}$ 등의 Sn 부활 인산염 형광체, $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25} : \text{Eu}$, $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$, $\text{BaAl}_8\text{O}_{13} : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 알루미늄산염 형광체, $\text{SrGa}_2\text{S}_4 : \text{Ce}$, $\text{CaGa}_2\text{S}_4 : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 티오갈레이트 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$, $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$, Tb , Sm 등의 Eu 부활 알루미늄산염 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$, Mn 등의 Eu, Mn 부활 알루미늄산염 형광체, $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba}, \text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2 : \text{Eu}$, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_5(\text{PO}_4)_3(\text{Cl}, \text{F}, \text{Br}, \text{OH}) : \text{Eu}$, Mn , Sb 등의 Eu 부활 할로인산염 형광체, $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$, $(\text{Sr}, \text{Ba})_3\text{MgSi}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 규산염 형광체, $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부활 인산염 형광체, $\text{ZnS} : \text{Ag}$, $\text{ZnS} : \text{Ag}$, Al 등의 황화물 형광체, $\text{Y}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}$ 등의 Ce 부활 규산염 형광체, CaWO_4 등의 텅스텐산염 형광체, $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{BPO}_5 : \text{Eu}$, Mn , $(\text{Sr}, \text{Ca})_{10}(\text{PO}_4)_6 \cdot n\text{B}_2\text{O}_3 : \text{Eu}$, $2\text{SrO} \cdot 0.84\text{P}_2\text{O}_5 \cdot 0.16\text{B}_2\text{O}_3 : \text{Eu}$ 등의 Eu, Mn 부활 붕산인산염 형광체, $\text{Sr}_2\text{Si}_3\text{O}_8 \cdot 2\text{SrCl}_2 : \text{Eu}$ 등의 Eu 부

활 할로규산염 형광체 등을 이용하는 것도 가능하다.

[0348] 또한, 청색 형광체로서는, 예를 들어, 나프탈산이미드계, 벤조옥사졸계, 스티릴계, 쿠마린계, 피라졸린계, 트리아졸계 화합물의 형광 색소, 틀류 착물 등의 유기 형광체 등을 이용하는 것도 가능하다.

[0349] [III-1-1-4. 황색 형광체]

[0350] 황색의 형광을 발하는 형광체 (이하 적절히 「황색 형광체」라고 한다.)가 발하는 형광의 구체적인 파장의 범위를 예시하면, 통상 530nm 이상, 바람직하게는 540nm 이상, 보다 바람직하게는 550nm 이상, 또한, 통상 620nm 이하, 바람직하게는 600nm 이하, 보다 바람직하게는 580nm 이하의 파장 범위에 있는 것이 적합하다. 황색 형광체의 발광 피크 파장이 너무 짧으면 황색 성분이 적어져 연색성이 떨어지는 반도체 발광 디바이스가 될 가능성이 있고, 너무 길면 반도체 발광 디바이스의 휘도가 저하될 가능성이 있다.

[0351] 이러한 황색 형광체로서는, 예를 들어, 각종 산화물계, 질화물계, 산질화물계, 황화물계, 산황화물계 등의 형광체를 들 수 있다. 특히, $RE_3M_3O_{12} : Ce$ (여기서, RE 는 Y, Tb, Gd, Lu, Sm 의 적어도 1 종류의 원소를 나타내고, M 은 Al, Ga, Sc 의 적어도 1 종류의 원소를 나타낸다.) 나 $M^2_3M^3_2M^4_3O_{12} : Ce$ (여기서, M^2 는 2 개의 금속 원소, M^3 은 3 개의 금속 원소, M^4 는 4 개의 금속 원소) 등으로 표시되는 가넷 구조를 갖는 가넷계 형광체, $AE_2M^5O_4 : Eu$ (여기서, AE 는 Ba, Sr, Ca, Mg, Zn 의 적어도 1 종류의 원소를 나타내고, M^5 는 Si, Ge 의 적어도 1 종류의 원소를 나타낸다.) 등으로 표시되는 오르토실리케이트계 형광체, 이러한 계의 형광체의 구성 원소의 산소의 일부를 질소로 치환한 산질화물계 형광체, $AEAlSiN_3 : Ce$ (여기서, AE 는 Ba, Sr, Ca, Mg, Zn 의 적어도 1 종류의 원소를 나타낸다.) 등의 $CaAlSiN_3$ 구조를 갖는 질화물계 형광체 등의 Ce 로 부활한 형광체 등을 들 수 있다.

[0352] 또한, 그 밖에, 황색 형광체로서는, $CaGa_2S_4 : Eu(Ca, Sr)Ga_2S_4 : Eu, (Ca, Sr)(Ga, Al)_2S_4 : Eu$ 등의 황화물계 형광체, $Cax(Si, Al)_{12}(O, N)_{16} : Eu$ 등의 $SiAlON$ 구조를 갖는 산질화물계 형광체 등의 Eu 로 부활한 형광체를 이용하는 것도 가능하다.

[0353] [III-1-1-5. 기타 형광체]

[0354] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 것 이외의 형광체를 함유시키는 것도 가능하다. 예를 들어, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 이온형의 형광 물질이나 유기·무기의 형광 성분을 균일·투명하게 용해·분산시킨 형광 유리로 할 수도 있다.

[0355] [III-1-2. 형광체의 입경]

[0356] 본 발명에 사용하는 형광체의 입경은 특별히 제한은 없지만, 중앙 입경 (D_{50}) 으로, 통상 0.1 μm 이상, 바람직하게는 2 μm 이상, 더욱 바람직하게는 5 μm 이상이다. 또한, 통상 100 μm 이하, 바람직하게는 50 μm 이하, 더욱 바람직하게는 20 μm 이하이다. 형광체의 중앙 입경 (D_{50}) 이 상기 범위에 있는 경우에는, 후술하는 반도체 발광 디바이스에 있어서, 반도체 발광 소자로부터 발하는 광이 충분히 산란된다. 또한, 반도체 발광 소자로부터 발하는 광이 충분히 형광체 입자에 흡수되기 때문에, 파장 변환이 고효율로 행해짐과 함께, 형광체로부터 발해지는 광이 전체 방향으로 조사된다. 이것에 의해, 복수 종류의 형광체로부터의 일차광을 혼색하여 백색으로 할 수 있음과 함께, 균일한 백색이 얻어지기 때문에, 반도체 발광 디바이스가 발하는 합성광에 있어서, 균일한 백색광과 조도가 얻어진다. 한편, 형광체의 중앙 입경 (D_{50}) 이 상기 범위보다 큰 경우에는, 형광체가 발광부의 공간을 충분히 메울 수 없기 때문에, 후술하는 반도체 발광 디바이스에 있어서, 반도체 발광 소자로부터의 광이 충분히 형광체에 흡수되지 않을 가능성이 있다. 또한, 형광체의 중앙 입경 (D_{50}) 이 상기 범위보다 작은 경우에는, 형광체의 발광 효율이 저하되기 때문에, 반도체 발광 디바이스의 조도가 저하될 가능성이 있다.

[0357] 형광체 입자의 입도 분포 (QD) 는, 반도체 발광 디바이스용 부재 중에서의 입자의 분산 상태를 가지런히 하기 위하여 작은 편이 바람직하지만, 작게 하기 위해서는 분급 수율이 떨어져 비용 상승으로 연결되므로, 통상 0.03 이상, 바람직하게는 0.05 이상, 더욱 바람직하게는 0.07 이상이다. 또한, 통상 0.4 이하, 바람직하게는 0.3 이하, 더욱 바람직하게는 0.2 이하이다.

- [0358] 또한, 본 발명에 있어서, 중앙 입경 (D_{50}) 및 입도 분포 (QD) 는, 중량 기준 입도 분포 곡선으로부터 얻을 수 있다. 상기 중량 기준 입도 분포 곡선은, 레이저 회절·산란법에 의해 입도 분포를 측정하여 얻어지는 것으로, 구체적으로는, 예를 들어 이하와 같이 측정할 수 있다.
- [0359] [중량 기준 입도 분포 곡선의 측정 방법]
- [0360] (1) 기온 25℃, 습도 70% 의 환경하에 있어, 에틸렌글리콜 등의 용매에 형광체를 분산시킨다.
- [0361] (2) 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치 (호리바 제작소 LA-300) 에 의해, 입경 범위 0.1 μ m ~ 600 μ m 에서 측정한다.
- [0362] (3) 이 중량 기준 입도 분포 곡선에 있어서 적산치가 50% 일 때의 입경치를 중앙 입경 D_{50} 이라고 표기한다. 또한, 적산치가 25% 및 75% 일 때의 입경치를 각각 D_{25} , D_{75} 라고 표기하고, $QD=(D_{75}-D_{25})/(D_{75}+D_{25})$ 라고 정의한다. QD 가 작은 것은 입도 분포가 좁은 것을 의미한다.
- [0363] 또한, 형광체 입자의 형상도, 반도체 발광 디바이스용 부재의 형성에 영향을 주지 않는 한, 예를 들어, 형광체 부 형성액 (형광체를 함유하는 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 말하고, 형광체 조성물과 동일한 것을 가리킨다) 의 유동성 등에 영향을 주지 않는 한, 특별히 한정되지 않는다.
- [0364] [III-1-3. 형광체의 표면 처리]
- [0365] 본 발명에 사용하는 형광체는, 내수성을 높이는 목적으로, 또는 반도체 발광 디바이스용 부재 중에서 형광체의 불필요한 응집을 막는 목적으로, 표면 처리되어 있어도 된다. 이러한 표면 처리의 예로서는, 일본 공개특허공보 2002-223008호에 기재된 유기 재료, 무기 재료, 유리 재료 등을 이용한 표면 처리, 일본 공개특허공보 2000-96045호 등에 기재된 금속 인산염에 의한 피복 처리, 금속 산화물에 의한 피복 처리, 실리카 코트 등의 공지된 표면 처리 등을 들 수 있다.
- [0366] 표면 처리의 구체예를 들면, 예를 들어 형광체의 표면에 상기 금속 인산염을 피복시키려면, 이하의 (i) ~ (iii) 의 표면 처리를 실시한다.
- [0367] (i) 소정량의 인산칼륨, 인산나트륨 등의 수용성의 인산염과, 염화칼슘, 황산스트론튬, 염화망간, 질산아연 등의 알칼리 토금속, Zn 및 Mn 중 적어도 1 종의 수용성의 금속염 화합물을 형광체 현탁액 중에 혼합하여, 교반한다.
- [0368] (ii) 알칼리 토금속, Zn 및 Mn 중 적어도 1 종의 금속의 인산염을 현탁액 중에서 생성시킴과 함께, 생성된 이러한 금속 인산염을 형광체 표면에 침착시킨다.
- [0369] (iii) 수분을 제거한다.
- [0370] 또한, 표면 처리의 다른 예 중 적합한 예를 들면, 실리카 코트로서는, 물 유리를 중화시켜 SiO_2 를 석출시키는 방법, 알콕시실란을 가수 분해한 것을 표면 처리하는 방법 (예를 들어, 일본 공개특허공보 평3-231987호) 등을 들 수 있고, 분산성을 높이는 점에 있어서는 알콕시실란을 가수 분해한 것을 표면 처리하는 방법이 바람직하다.
- [0371] [III-1-4. 형광체의 혼합 방법]
- [0372] 본 발명에 있어서, 형광체 입자를 첨가하는 방법은 특별히 제한되지 않는다. 형광체 입자의 분산 상태가 양호한 경우이면, 상기 서술한 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 후혼합하기만 하면 된다. 즉, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액과 형광체를 혼합하여, 형광체부 형성액을 준비하고, 이 형광체부 형성액을 이용하여 반도체 발광 디바이스용 부재를 제작하면 된다. 형광체 입자의 응집이 일어나기 쉬운 경우에는, 가수 분해전의 원료 화합물을 함유하는 반응용 용액 (이하 적절히 「가수 분해전 용액」 이라고 한다.) 에 형광체 입자를 미리 혼합하고, 형광체 입자의 존재하에서 가수 분해·중축합을 행하면, 입자의 표면이 일부 실란 커플링 처리되어, 형광체 입자의 분산 상태가 개선된다.
- [0373] 또한, 형광체 중에는 가수 분해성인 것도 있지만, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 도포전의 액 상태 (반도체 발광 디바이스용 부재 형성액) 에 있어서, 수분은 실라놀체로서 잠재적으로 존재하고, 유리된 수분은 거의 존재하지 않기 때문에, 그러한 형광체라도 가수 분해하지 않고 사용하는 것이 가능하다. 또한, 가수 분해·중축합 후의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 탈수·탈알코올 처리를 행하고 나서 사용하면, 그러

한 형광체와의 병용이 용이해지는 이점도 있다.

[0374] 또한, 형광체 입자나 무기 입자 (후술한다) 를 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 분산시키는 경우에는, 입자 표면에 분산성 개선을 위해 유기 배위자에 의한 수식을 실시하는 것도 가능하다. 종래, 반도체 발광 디바이스용 부재로서 이용되어 온 부가형 실리콘 수지는, 이러한 유기 배위자에 의해 경화 저해를 받기 쉬워, 이러한 표면 처리를 실시한 입자를 혼합·경화할 수 없었다. 이것은, 부가 반응형 실리콘 수지에 사용되고 있는 백금계의 경화 촉매가, 이들 유기 배위자와 강한 상호 작용을 갖고, 히드로실릴화의 능력을 잃어, 경화 불량을 일으키기 때문이다. 이러한 피독 물질로서는 N, P, S 등을 함유하는 유기 화합물 외에, Sn, Pb, Hg, Bi, As 등의 중금속의 이온성 화합물, 아세틸렌기 등, 다중 결합을 포함하는 유기 화합물 (플릭스, 아민류, 염화비닐, 황 가황 고무) 등을 들 수 있다. 이에 대하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 이들 피독 물질에 의한 경화 저해를 일으키기 어려운 축합형의 경화 기구에 의하는 것이다. 이 때문에, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 유기 배위자에 의해 표면 개질된 형광체 입자나 무기 입자, 또한 착물 형광체 등의 형광 성분과의 혼합 사용의 자유도가 커, 형광체 바인더나 고굴절률 나노 입자 도입 투명 재료로서 우수한 특징을 구비하는 것이다.

[0375] [III-1-5. 형광체의 함유율]

[0376] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 형광체의 함유율은, 본 발명의 효과를 현저히 해치지 않는 한 임의이지만, 그 적용 형태에 의해 자유롭게 선정할 수 있다. 백색 LED 나 백색 조명 등의 용도에 이용하는 백색 발광의 반도체 발광 디바이스를 예를 들면, 형광체를 균일하게 분산시켜 반도체 발광 소자를 함유하는 패키지의 오목부 전체를 메워 포팅(potting)하는 경우에는, 형광체 총량으로서 통상 0.1 중량% 이상, 바람직하게는 1 중량% 이상, 보다 바람직하게는 5 중량% 이상, 또한, 통상 35 중량% 이하, 바람직하게는 30 중량% 이하, 보다 바람직하게는 28 중량% 이하이다.

[0377] 또한, 동일 용도에서 형광체를 고농도로 분산시킨 것을, 반도체 발광 디바이스의 반도체 발광 소자의 발광면에서 먼 곳 (예를 들어, 반도체 발광 소자를 함유하는 오목부를 투명 봉지체로 메운 패키지 개구면이나, LED 기밀 봉지용 유리 덮개·렌즈·도광판 등의 외부 광학 부재의 출광면 등) 에 박막형으로 도포하는 경우에는, 통상 5 중량% 이상, 바람직하게는 7 중량% 이상, 보다 바람직하게는 10 중량% 이상, 또한, 통상 90 중량% 이하, 바람직하게는 80 중량% 이하, 보다 바람직하게는 70 중량% 이하이다.

[0378] 또한, 일반적으로, 반도체 발광 소자의 발광색과 형광체의 발광색을 혼색하여 백색을 얻는 경우, 반도체 발광 소자의 발광색을 일부 투과시키게 되기 때문에, 형광체 함유율은 저농도가 되어, 상기 범위의 하한 부근의 영역이 된다. 한편, 반도체 발광 소자의 발광을 모두 형광체 발광색으로 변환하여 백색을 얻는 경우에는, 고농도의 형광체가 바람직하기 때문에, 형광체 함유율은 상기 범위의 상한 부근의 영역이 된다. 형광체 함유율이 이 범위보다 많으면 도포 성능이 악화되거나, 광학적인 간섭 작용에 의해 형광체의 이용 효율이 낮아지고, 반도체 발광 디바이스의 휘도가 낮아지거나 할 가능성이 있다. 또한, 형광체 함유율이 이 범위보다 적으면, 형광체에 의한 파장 변환이 불충분해져, 목적으로 하는 발광색을 얻을 수 없게 될 가능성이 있다.

[0379] 이상, 백색 발광의 반도체 발광 디바이스 용도에 대하여 예시했지만, 구체적인 형광체 함유율은 목적색, 형광체의 발광 효율, 혼색 형식, 형광체 비중, 도포 막두께, 디바이스 형상에 따라 다양하여, 이에 한정되지 않는다.

[0380] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액은 에폭시 수지나 실리콘 수지 등 종래의 반도체 발광 디바이스용 형성액과 비교하여 저점도이며, 또한 형광체나 무기 입자와의 용합이 좋아, 고농도의 형광체나 무기 입자를 분산시켜도 충분히 도포 성능을 유지할 수 있는 이점을 갖는다. 또한, 필요에 따라서 중합도의 조정이나 에어로실 등 틱소재를 함유시킴으로써 고점도로 하는 것도 가능하고, 목적의 형광체 함유량에 따른 점도의 조정폭이 크고, 도포 대상물의 종류나 형상 또한 포팅·스핀 코트·인쇄 등의 각종 도포 방법에 유연하게 대응할 수 있는 도포액을 제공할 수 있다.

[0381] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 형광체의 함유율은, 형광체 조성이 특정되어 있으면, 형광체 함유 시료를 분쇄 후 예비 소성시켜 탄소 성분을 제거한 후에 불산 처리에 의해 규소 성분을 규불산으로 하여 제거하고, 잔사를 회황산에 용해시켜 주성분의 금속 원소를 수용액화하고, ICP 나 염광 분석, 형광 X선 분석 등의 공지된 원소 분석 방법에 의해 주성분 금속 원소를 정량하여, 계산에 의해 형광체 함유율을 구할 수 있다. 또한, 형광체 형상이나 입경이 균일하고 비중을 이미 알고 있으면 도포물 단면의 화상 해석에 의해 단위 면적당의 입자 개수를 구하여 형광체 함유율로 환산하는 간이법도 이용할 수 있다.

[0382] 또한, 형광체부 형성액에 있어서의 형광체의 함유율은, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 형광체의 함유

율이 상기 범위에 들어가도록 설정하면 된다. 따라서, 형광체부 형성액이 건조 공정에 있어서 증량 변화하지 않는 경우에는 형광체부 형성액에 있어서의 형광체의 함유율은 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 형광체의 함유율과 동일해진다. 또한, 형광체부 형성액이 용매 등을 함유하고 있는 경우 등, 형광체부 형성액이 건조 공정에 있어서 증량 변화하는 경우에는, 그 용매 등을 제거한 형광체부 형성액에 있어서의 형광체의 함유율이 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 형광체의 함유율과 동일해지도록 하면 된다.

[0383] [III-2. 무기 입자 (필러) 의 병용]

[0384] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 반도체 발광 디바이스에 사용하는 경우 등에 있어서는, 광학적 특성이나 작업성을 향상시키기 위하여, 또한, 이하의 <1> ~ <5> 중 임의의 효과를 얻는 것을 목적으로 하여, 추가로 무기 입자를 함유시켜도 된다.

[0385] <1> 반도체 발광 디바이스용 부재에 광산란 물질로서 무기 입자를 혼입하고, 반도체 발광 디바이스의 광을 산란시킴으로써, 형광체에 닿는 반도체 발광 소자의 광량을 증가시켜, 파장 변환 효율을 향상시킴과 함께, 반도체 발광 디바이스로부터 외부로 방출되는 광의 지향각을 넓힌다.

[0386] <2> 반도체 발광 디바이스용 부재에 결합체로서 무기 입자를 배합함으로써, 크랙의 발생을 방지한다.

[0387] <3> 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에, 점도 조정제로서 무기 입자를 배합함으로써, 당해 형성액의 점도를 높게 한다.

[0388] <4> 반도체 발광 디바이스용 부재에 무기 입자를 배합함으로써, 그 수축을 저감시킨다.

[0389] <5> 반도체 발광 디바이스용 부재에 무기 입자를 배합함으로써, 그 굴절률을 조정하여, 광추출 효율을 향상시킨다.

[0390] 이 경우에는, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에, 형광체의 분말과 마찬가지로, 무기 입자를 목적에 따라 적당량 혼합하면 된다. 이 경우, 혼합하는 무기 입자의 종류 및 양에 따라 얻어지는 효과가 다르다.

[0391] 예를 들어, 무기 입자가 입경 약 10nm 의 초미립자형 실리카 (일본 아에로질 주식회사 제조, 상품명: AEROSIL #200) 의 경우, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액의 텍스트로픽성이 증대하기 때문에, 상기 <3> 의 효과가 크다.

[0392] 또한, 무기 입자가 입경이 약 수 μ m 인 파쇄 실리카 혹은 진구형 실리카의 경우, 텍스트로픽성의 증가는 거의 없고, 반도체 발광 디바이스용 부재의 골재로서의 기능이 중심이 되므로, 상기 <2> 및 <4> 의 효과가 크다.

[0393] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재와는 굴절률이 상이한 입경 약 1 μ m 의 무기 입자를 이용하면, 반도체 발광 디바이스용 부재와 무기 입자의 계면에 있어서의 광산란이 커지므로, 상기 <1> 의 효과가 크다.

[0394] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재보다 굴절률이 큰 입경 3 ~ 5nm, 구체적으로는 발광 파장 이하의 입경을 갖는 무기 입자를 이용하면, 반도체 발광 디바이스용 부재의 투명성을 유지한 채 굴절률을 향상시킬 수 있으므로, 상기 <5> 의 효과가 크다.

[0395] 따라서, 혼합하는 무기 입자의 종류는 목적에 따라 선택하면 된다. 또한, 그 종류는 단일해도 되고, 복수종을 조합해도 된다. 또한, 분산성을 개선하기 위하여 실란 커플링제 등의 표면 처리제로 표면 처리되어 있어도 된다.

[0396] [III-2-1. 무기 입자의 종류]

[0397] 사용하는 무기 입자의 종류로서는, 실리카, 티탄산바륨, 산화티탄, 산화지르코늄, 산화니오브, 산화알루미늄, 산화세륨, 산화이트륨 등의 무기 산화물 입자나 다이아몬드 입자가 예시되지만, 목적에 따라 다른 물질을 선택할 수도 있어, 이들에 한정되는 것은 아니다.

[0398] 무기 입자의 형태는 분체형, 슬러리형 등, 목적에 따라 어떠한 형태이어도 되지만, 투명성을 유지할 필요가 있는 경우에는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재와 굴절률을 동등하게 하거나, 수계·용매계의 투명 줄로 하여 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 첨가하거나 하는 것이 바람직하다.

[0399] 또한, 무기 입자는 1 종을 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.

[0400] [III-2-2. 무기 입자의 중앙 입경]

[0401] 이들 무기 입자 (1 차 입자) 의 중앙 입경은 특별히 한정되지 않지만, 통상, 형광체 입자의 1/10 이하

정도이다. 구체적으로는, 목적에 따라 이하의 중앙 입경의 것이 이용된다. 예를 들어, 무기 입자를 광산란체로서 이용한다면, 그 중앙 입경은 0.1 ~ 10 μ m 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 골재로서 이용한다면, 그 중앙 입경은 1nm ~ 10 μ m 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 증점제 (틱소제) 로서 이용한다면, 그 중앙 입경은 10 ~ 100nm 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 굴절률 조정제로서 이용한다면, 그 중앙 입경은 1 ~ 10nm 가 적합하다.

[0402] [III-2-3. 무기 입자의 혼합 방법]

[0403] 본 발명에 있어서, 무기 입자를 혼합하는 방법은 특별히 제한되지 않지만, 통상적으로는 형광체와 마찬가지로 유성 교반 믹서 등을 이용하여 탈포하면서 혼합하는 것이 추천된다. 예를 들어, 에어로실과 같은 응집되기 쉬운 소립자를 혼합하는 경우에는, 입자 혼합 후 필요에 따라 비즈 밀이나 3 본 롤 등을 이용하여 응집 입자의 해체를 실시하고 나서 형광체 등의 혼합이 용이한 대립자 성분을 혼합해도 된다.

[0404] [III-2-4. 무기 입자의 함유율]

[0405] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율은, 본 발명의 효과를 현저히 해치지 않는 한 임의이지만, 그 적용 형태에 따라 자유롭게 선정할 수 있다. 예를 들어, 무기 입자를 광산란체로서 이용하는 경우에는, 그 함유율은 0.01 ~ 10 중량% 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 골재로서 이용하는 경우에는, 그 함유율은 1 ~ 50 중량% 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 증점제 (틱소제) 로서 이용하는 경우에는, 그 함유율은 0.1 ~ 20 중량% 가 적합하다. 또한, 예를 들어, 무기 입자를 굴절률 조정제로서 이용하는 경우에는, 그 함유율은 10 ~ 80 중량% 가 적합하다. 무기 입자의 양이 너무 적으면 소망하는 효과가 얻어지지 않게 될 가능성이 있고, 너무 많으면 경화물의 밀착성, 투명성, 경도 등의 제특성에 악영향을 미칠 가능성이 있다.

[0406] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액은 에폭시 수지나 실리콘 수지 등 종래의 반도체 발광 디바이스용 형성액과 비교하여 저점도이며, 또한 형광체나 무기 입자와의 용합이 좋아, 고농도의 무기 입자를 분산시켜도 충분히 도포 성능을 유지할 수 있는 이점을 갖는다. 또한, 필요에 따라서 중합도의 조정이나 에어로실 등 틱소제의 것을 함유시킴으로써 고점도로 하는 것도 가능하고, 목적의 무기 입자 함유량에 따른 점도의 조정 폭이 크고, 도포 대상물의 종류나 형상 또한 팻팅·스핀 코트·인쇄 등의 각종 도포 방법에 유연하게 대응할 수 있는 도포액을 제공할 수 있다.

[0407] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율은, 전출한 형광체 함유량과 동일하게 측정할 수 있다.

[0408] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 있어서의 무기 입자의 함유율은, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율이 상기 범위에 들어가도록 설정하면 된다. 따라서, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액이 건조 공정에 있어서 중량 변화하지 않는 경우에는 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 있어서의 무기 입자의 함유율은 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율과 동일해진다. 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액이 용매 등을 함유하고 있는 경우 등, 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액이 건조 공정에 있어서 중량 변화하는 경우에는, 그 용매 등을 제외한 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 있어서의 무기 입자의 함유율이 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율과 동일해지도록 하면 된다.

[0409] [III-3. 도전성 필러의 병용]

[0410] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 반도체 발광 디바이스에 사용하는 경우 등에 있어서는, 도전성을 부여하여 인쇄나 팻팅 등의 기술을 이용하여 뿔납 사용 온도보다 저온에서 전기 회로를 형성시키는 것을 목적으로 하여, 도전성 필러를 함유시켜도 된다.

[0411] 사용하는 도전성 필러의 종류로서는, 은 가루, 금 가루, 백금 가루, 팔라듐 가루 등의 귀금속 가루, 구리 가루, 니켈 가루, 알루미늄 가루, 붓소 가루, 스테인리스 가루 등의 비(卑)귀금속 가루, 은 등의 귀금속으로 도금, 합금화한 비귀금속 가루, 귀금속이나 비(卑)금속으로 피복된 유기 수지 가루나 실리카 가루, 그 밖에 카본 블랙, 그라파이트 가루 등의 카본계 필러 등이 예시되는데, 목적에 따라 다른 물질을 선택할 수도 있고, 이들에 한정되는 것은 아니다. 또한, 도전성 필러는 1 종을 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.

[0412] 도전성 필러의 공급 형태는 분체형, 슬러리형 등, 목적에 따라 어떠한 형태이어도 되지만, 투명성을 유지할 필

요가 있는 경우나, 미세한 배선을 인쇄 형성할 필요가 있는 경우에는, 응집이 없는 수계·용매계의 투명 졸 혹은 재분산이 용이한 표면 수식 부착 나노 입자 분말로서 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액에 첨가하는 것이 바람직하다.

[0413] 이들 금속 가루의 형상으로서, 플레이크형 (인편형), 구형, 좁쌀형, 수지(樹枝)형 (덴드라이트형), 구형의 1차 입자가 3차원형으로 응집된 형상 등이 있다. 이 중, 도전성, 비용, 신뢰성의 면에서 은 가루를 주체로 하는 것이 바람직하고, 도전성의 면에서, 은 가루에 소량의 카본 블랙 및/또는 그라파이트 가루를 병용하는 것이 보다 바람직하다. 또한, 도전성, 신뢰성의 면에서 플레이크형, 구형의 은 가루를 사용하는 것이 바람직하고, 플레이크형과 구형의 은 가루를 병용하는 것이 가장 바람직하다. 또한, 필요에 따라, 실리카, 탭크, 마이커, 황산바륨, 산화인듐 등의 무기 필러 등을 소량 배합해도 된다.

[0414] 은 가루와 카본 블랙 및/또는 그라파이트 미분말의 바람직한 배합비 (질량비) 는 은 가루와 카본 블랙 및/또는 그라파이트 미분말의 합계량을 100 질량비로 했을 때, 은 가루로서의 상한은 바람직하게는 99.5 질량비 이하, 보다 바람직하게는 99 질량비 이하이다. 은 가루로서의 하한은 85 질량비 이상, 보다 바람직하게는 90 질량비 이상이다.

[0415] 도전성 필러의 중앙 입경은 특별히 한정되지 않지만, 통상 0.1 μ m 이상, 바람직하게는 0.5 μ m 이상, 더욱 바람직하게는 1 μ m 이상이며, 통상 50 μ m 이하, 바람직하게는 20 μ m 이하, 더욱 바람직하게는 10 μ m 이하이다. 또한, 특히 투명성이나 미세 가공성이 요구되는 경우에는 통상 3nm 이상, 바람직하게는 10nm 이상이며, 통상 150nm 이하, 바람직하게는 100nm 이하이다.

[0416] 또한, 도전성 필러의 함유율은 그 도전성 필러와 바인더 수지의 합계량을 100 중량% 로 했을 때, 통상 50 중량% 이상, 바람직하게는 75 중량% 이상, 보다 바람직하게는 80 질량비 이상이다. 또한, 접착성, 잉크의 점성의 관점에서, 통상 95 중량% 이하, 바람직하게는 93 중량% 이하, 보다 바람직하게는 90 중량% 이하이다. 도전성 필러의 양이 너무 적으면 소망하는 효과가 얻어지지 않게 될 가능성이 있고, 너무 많으면 경화물의 밀착성, 투명성, 경도 등의 제특성에 악영향을 미칠 가능성이 있다.

[0417] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액은 에폭시 수지나 실리콘 수지 등 종래의 반도체 발광 디바이스용 형성액과 비교하여 저점도 또한 형광체나 무기 입자와의 용합이 좋아, 고농도의 무기 입자를 분산시켜도 충분히 도포 성능을 유지할 수 있는 특징을 갖는다. 또한 필요에 따라서 중합도의 조정이나 에어로실 등 틱소제를 함유시킴으로써 고점도로 하는 것도 가능하고, 목적의 무기 입자 함유량에 따른 점도의 조정폭이 크고, 도포 대상물의 종류나 형상 또는 풋팅·스핀 코트·인쇄 등의 각종 도포 방법에 유연하게 대응할 수 있는 도포액을 제공할 수 있다.

[0418] 또한, 반도체 발광 디바이스용 부재에 있어서의 무기 입자의 함유율은, 전출한 형광체 함유량과 동일하게 측정할 수 있다.

[0419] [III-4. 다른 부재와의 조합]

[0420] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 단독으로 봉지 재료로서 이용해도 되지만, 유기 형광체, 산소나 수분에 의해 열화되기 쉬운 형광체, 반도체 발광 디바이스를 봉지하는 경우 등, 보다 엄밀하게 산소나 수분으로부터의 차단이 요구되는 용도에 있어서는, 본 발명의 부재에 의해 형광체의 유지나 반도체 발광 소자의 봉지·광취출을 실시하고, 추가로 그 외측에 유리판이나 에폭시 수지 등의 고기밀 소재에 의한 기밀 봉지를 실시하거나, 진공 봉지를 실시해도 된다. 이 경우의 디바이스 형상은 특별히 제한 없고, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 의한 봉지체, 도포물 혹은 도포면이 실질적으로 금속·유리·고기밀성 수지 등의 고기밀 소재에 의해 외계로부터 보호 차단되어 산소나 수분의 유통이 없는 상태로 되어 있으면 된다.

[0421] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기 서술한 바와 같이 밀착성이 양호하기 때문에, 반도체 발광 디바이스용 접착제로서 이용할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어, 반도체 소자와 패키지를 접착시키는 경우, 반도체 소자와 서브 마운트를 접착시키는 경우, 패키지 구성 요소끼리를 접착시키는 경우, 반도체 발광 디바이스와 외부 광학 부재를 접착시키는 경우 등에, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 도포, 인쇄, 풋팅하는 것 등에 의해 이용할 수 있다. 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 특히 내광성, 내열성이 우수하기 때문에, 장시간 고온이나 자외광에 노출되는 고출력의 반도체 발광 디바이스용 접착제로서 이용했을 경우, 장기 사용에 견디어 높은 신뢰성을 갖는 반도체 발광 디바이스를 제공할 수 있다.

[0422] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 이것만으로 충분히 밀착성을 담보할 수 있는 것이지만, 더욱 밀착성을 담보하는 것을 목적으로 해, 반도체 발광 디바이스용 부재와 직접 접하는 표면에 밀착성 개선을 위한

표면 처리를 실시해도 된다. 이러한, 표면 처리로서는, 예를 들어 프라이머나 실란 커플링제를 이용한 밀착 개선층의 형성, 산이나 알칼리 등의 약품을 이용한 화학적 표면 처리, 플라즈마 조사나 이온 조사·전자선 조사를 이용한 물리적 표면 처리, 샌드 블라스트나 에칭·미립자 도포 등에 의한 조면화 처리 등을 들 수 있다. 밀착성 개선을 위한 표면 처리로서는, 그 밖에 예를 들어, 일본 공개특허공보 평5-25300호, 이나가키 노리히로 저 「표면 화학」 Vol.18 No.9, pp21-26, 쿠로사키 카즈오 저 「표면 화학」 Vol.19 No.2, pp44-51(1998) 등에 개시되는 공지된 표면 처리 방법을 들 수 있다.

[0423] [IV. 반도체 발광 디바이스]

[0424] 이하, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용한 반도체 발광 디바이스(본 발명의 반도체 발광 디바이스)에 대하여, 실시형태를 이용하여 설명한다. 또한, 이하의 각 실시형태에서는, 반도체 발광 디바이스를 적절히 「발광 장치」라 약칭하는 것으로 한다. 또한, 어느 부위에 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용할지에 대해서는, 모든 실시형태의 설명의 후에 정리하여 설명한다. 단, 이들 실시형태는 어디까지나 설명의 편의를 위하여 이용하는 것이며, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 적용한 발광 장치(반도체 발광 디바이스)의 예는, 이들 실시형태에 한정되는 것은 아니다.

[0425] [IV-1. 기본 개념]

[0426] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용한 반도체 발광 디바이스는, 예를 들어, 이하의 A), B)의 적용예가 있다. 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 어느 적용예에 있어서도, 종래의 반도체 발광 디바이스용 부재와 비교하여, 우수한 광내구성 및 열내구성을 나타내고, 크랙이나 박리가 일어나기 어렵고, 휘도의 저하가 적다. 따라서, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 의하면, 장기간에 걸쳐 신뢰성이 높은 부재를 제공할 수 있다.

[0427] A) 발광 소자의 발광색을 그대로 이용하는 반도체 발광 디바이스.

[0428] *B) 발광 소자의 근방에 형광체부를 배치하여, 발광 소자로부터의 광에 의해 형광체부 중의 형광체나 형광체 성분을 여기시켜, 형광을 이용하여 소망하는 파장의 광을 발광하는 반도체 발광 디바이스.

[0429] A)의 적용예에 있어서는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 높은 내구성, 투명성 및 봉지재 성능을 살려, 단독 사용으로 고내구 봉지재, 광취출막, 각종 기능성 성분 유지체로서 이용할 수 있다. 특히, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 상기 무기 입자 등을 유지하는 기능성 성분 유지체로서 이용하여, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 투명 고굴절 성분을 유지시킨 경우에는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 발광 소자 출광면과 밀착시켜 사용하고, 또한, 발광 소자에게 가까운 굴절률로 함으로써, 발광 소자 출광면에서의 반사를 저감시켜, 보다 높은 광취출 효율을 얻는 것이 가능해진다.

[0430] 또한, B)의 적용예에 있어서도, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 상기의 A)의 적용예와 동일한 우수한 성능을 발휘할 수 있고, 또한, 형광체나 형광체 성분을 유지함으로써 고내구성이고 광취출 효율이 높은 형광체부를 형성할 수 있다. 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에, 형광체나 형광체 성분에 더하여 투명고굴절 성분을 아울러 유지시킨 경우, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 굴절률을 발광 소자나 형광체의 굴절률 근방으로 함으로써, 계면 반사를 저감시켜, 보다 높은 광취출 효율을 얻을 수 있다.

[0431] 이하에, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 적용한 각 실시형태의 기본 개념에 대하여, 도 49(a), 도 49(b)를 참조하면서 설명한다. 또한, 도 49(a) 및 도 49(b)는 각 실시형태의 기본 개념의 설명도이며, 도 49(a)는 상기의 A)의 적용예에 대응하고, 도 49(b)는 상기의 B)의 적용예에 대응하고 있다.

[0432] 각 실시형태의 발광 장치(반도체 발광 디바이스)(1A, 1B)는, 도 49(a), 도 49(b)에 나타내듯이, LED 칩으로 이루어지는 발광 소자(2)와, 발광 소자(2)의 근방에 배치된 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재(3A, 3B)를 구비하고 있다.

[0433] 단, 도 49(a)에 나타내는 바와 같은, 상기 A)의 적용예에 대응한 실시형태(실시형태 A-1, A-2)에 있어서는, 발광 장치(1A)는 반도체 발광 디바이스용 부재(3A)에 형광체나 형광체 성분을 함유하지 않는다. 이 경우, 반도체 발광 디바이스용 부재(3A)는, 발광 소자(2)의 봉지, 광취출 기능, 기능성 성분 유지 등의 각 기능을 발휘한다. 또한, 이하의 설명에 있어서, 형광체나 형광체 성분을 함유하지 않는 반도체 발광 디바이스용 부재(3A)를, 적절히 「투명 부재」라고 부른다.

- [0434] 한편, 도 49(b)에 나타내는 바와 같은, 상기 B)의 적용예에 대응한 실시형태(실시형태 B-1 ~ B-40)에 있어서는, 발광 장치(1B)는 반도체 발광 디바이스용 부재(3B)에 형광체나 형광체 성분을 함유한다. 이 경우, 반도체 발광 디바이스용 부재(3B)는, 도 49(a)의 반도체 발광 디바이스용 부재(3A)가 발휘할 수 있는 제기능에 더하여 파장 변환 기능도 발휘할 수 있다. 또한, 이하의 설명에 있어서, 형광체나 형광체 성분을 함유하는 반도체 발광 디바이스용 부재(3B)를, 적절히 「형광체부」라고 부른다. 또한, 형광체부는, 그 형상이나 기능 등에 따라, 적절히 부호 33, 34 등으로 나타내는 경우도 있다.
- [0435] 발광 소자(2)는, 예를 들어, 청색광 내지 자외광을 방사하는 LED 칩에 의해 구성되지만, 이들 이외의 발광색의 LED 칩이어도 된다.
- [0436] 또한, 투명 부재(3A)는, 발광 소자(2)의 고내구성 봉지재, 광취출막, 제기능 부가막 등의 기능을 발휘하는 것이다. 투명 부재(3A)는 단독으로 이용해도 되지만, 형광체나 형광체 성분을 제거하면 본 발명의 효과를 현저히 해치지 않는 한 임의의 첨가제를 함유시킬 수 있다.
- [0437] 한편, 형광체부(3B)는, 발광 소자(2)의 고내구성 봉지재, 광취출막, 제기능 부가막 등의 기능을 발휘할 수 있음과 함께, 발광 소자(2)로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 파장 변환 기능을 발휘하는 것이다. 형광체부(3B)는, 발광 소자(2)로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 형광 물질을 적어도 함유하고 있으면 된다. 이러한 형광 물질의 예로서는, 상기에 예시한 각종 형광체를 들 수 있다. 형광체부(3B)의 발광색으로서는, 적색(R), 녹색(G), 청색(B)의 3원색은 물론, 형광등과 같은 백색이나 전구와 같은 황색도 가능하다. 요컨대, 형광체부(3B)는 여기광과는 상이한 소망하는 파장의 광을 방사하는 파장 변환 기능을 갖고 있다.
- [0438] 도 49(a)에 나타내는 상기 서술한 발광 장치(1A)에서는, 발광 소자(2)로부터 방사된 광(4)은 투명 부재(3A)를 투과하여, 발광 장치(1A)의 외부로 방사된다. 따라서, 발광 장치(1A)에서는, 발광 소자(2)로부터 방사된 광(4)은 발광 소자(2)로부터 방사되었을 때의 발광색 그대로 이용된다.
- [0439] 한편, 도 49(b)에 나타내는 발광 장치(1B)에서는, 발광 소자(2)로부터 방사된 광의 일부(4a)는 형광체부(3B)를 그대로 투과하여, 발광 장치(1B)의 외부로 방사된다. 또한, 발광 장치(1B)에서는, 발광 소자(2)로부터 방사된 광의 다른 일부(4b)가 형광체부(3B)에 흡수되어 형광체부(3B)가 여기되고, 형광체부(3B)에 함유되는 형광체 입자, 형광 이온, 형광 염료 등의 형광 성분 특유의 파장의 광(5)이 발광 장치(1B)의 외부로 방사된다.
- [0440] 따라서, 발광 장치(1B)로부터는, 발광 소자(2)에서 발광하여 형광체부(3B)를 투과한 광(4a)과 형광체부(3B)에서 발광한 광(5)의 합성광(6)이, 파장 변환된 광으로서 방사되게 되어, 발광 소자(2)의 발광색과 형광체부(3B)의 발광색으로 발광 장치(1B)전체로서의 발광색이 정해지게 된다. 또한, 발광 소자(2)에서 발광하여 형광체부(3B)를 투과하는 광(4a)은 반드시 필요한 것은 아니다.
- [0441] [IV-2. 실시형태]
- [0442] [A. 형광을 이용하지 않는 실시형태]
- [0443] [실시형태 A-1]
- [0444] 본 실시형태의 발광 장치(1A)는, 도 1에 나타내듯이, 프런트 배선(17)이 실시된 절연 기판(16)상에 발광 소자(2)가 표면 실장되어 있다. 이 발광 소자(2)는 발광층부(21)의 p형 반도체층(도시하지 않음) 및 n형 반도체층(도시하지 않음) 각각이, 도전 와이어(15, 15)를 통하여 프런트 배선(17, 17)에 전기적으로 접속되어 있다. 또한, 도전 와이어(15, 15)는 발광 소자(2)로부터 방사되는 광을 방해하지 않도록, 단면적이 작은 것이 이용되고 있다.
- [0445] 여기서, 발광 소자(2)로서는, 자외 ~ 적외역까지 어떠한 파장의 광을 발하는 것을 이용해도 되지만, 여기에서는, 질화갈륨계의 LED 칩을 이용하고 있는 것으로 한다. 또한, 이 발광 소자(2)는, 도 1에 있어서의 하면측에 n형 반도체층(도시하지 않음), 상면측에 p형 반도체층(도시하지 않음)이 형성되어 있고, p형 반도체층측으로부터 광출력을 취출하므로 도 1의 상방을 전방으로 하여 설명한다.
- [0446] 또한, 절연 기판(16)상에는 발광 소자(2)를 둘러싼 틀형의 틀재(18)가 고착되어 있고, 틀재(18)의 내측에는 발광 소자(2)를 봉지·보호하는 봉지부(19)가 형성되어 있다. 이 봉지부(19)는 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재인 투명 부재(3A)에 의해 형성된 것으로, 상기의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성

역으로 꺾음을 행함으로써 형성할 수 있다.

- [0447] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1A) 는, 발광 소자 (2) 와 투명 부재 (3A) 를 구비하고 있기 때문에, 발광 장치 (1A) 의 광내구성, 열내구성을 향상시킬 수 있다. 또한, 봉지부 (19) 에 크랙이나 박리가 일어나기 어렵기 때문에, 봉지부 (19) 의 투명성을 높이는 것이 가능해진다.
- [0448] 또한, 종래에 비해 광색 얼룩이나 광색 편차를 줄일 수 있음과 함께, 외부로의 광의 취출 효율을 높일 수 있다. 즉, 봉지부 (19) 를, 흐림이나 탁함 없이 투명성이 높은 것으로 할 수 있기 때문에, 광색의 균일성이 우수하고, 발광 장치 (1A) 간의 광색 편차도 거의 없어, 발광 소자 (2) 의 광의 외부로의 취출 효율을 종래에 비해 높일 수 있다. 또한, 발광 물질의 내광성을 높일 수 있어, 종래에 비해 발광 장치 (1A) 의 장수명화를 도모하는 것이 가능해진다.
- [0449] [실시형태 A-2]
- [0450] 본 실시형태의 발광 장치 (1A) 는, 도 2 에 나타내듯이, 발광 소자 (2) 의 전면을 투명 부재 (3A) 가 덮고 있으며, 또한, 그 투명 부재 상에, 투명 부재 (3A) 와는 상이한 재료로 봉지부 (19) 가 형성된 것 외에는, 상기의 실시형태 A-1 과 동일하게 구성되어 있다. 또한, 발광 소자 (2) 표면의 투명 부재 (3A) 는, 광취출막, 봉지막으로서 기능하는 투명한 박막이며, 예를 들어, 발광 소자 (2) 의 칩 형성시에 상기의 반도체 발광 디바이스용 부재 형성액을 스핀 코팅 등으로 도포함으로써 형성할 수 있다. 또한, 실시형태 A-1 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.
- [0451] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1A) 에 있어서도, 실시형태 A-1 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 와 투명 부재 (3A) 를 구비하고 있기 때문에, 발광 장치 (1A) 의 광내구성, 열내구성을 향상시킬 수 있고, 봉지부 (19) 에 크랙이나 박리가 일어나기 어렵기 때문에, 봉지부 (19) 의 투명성을 높이는 것이 가능해진다.
- [0452] 또한, 실시형태 A-1 과 동일한 이점을 얻는 것도 가능하다.
- [0453] [B. 형광을 이용한 실시형태]
- [0454] [실시형태 B-1]
- [0455] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 는, 도 3(a) 에 나타내듯이, LED 칩으로 이루어지는 발광 소자 (2) 와 투광성의 투명한 재료를 포탄형으로 성형한 몰드부 (11) 를 구비하고 있다. 몰드부 (11) 는 발광 소자 (2) 를 덮고 있으며, 발광 소자 (2) 는 도전성 재료에 의해 형성한 리드 단자 (12, 13) 에 전기적으로 접속되어 있다. 리드 단자 (12, 13) 는 리드 프레임에 의해 형성되어 있다.
- [0456] 발광 소자 (2) 는, 질화갈륨계의 LED 칩이며, 도 3(a) 에 있어서의 하면측에 n 형 반도체층 (도시하지 않음), 상면측에 p 형 반도체층 (도시하지 않음) 이 형성되어 있고, p 형 반도체층측으로부터 광출력을 취출하므로 도 3(a) 및 도 3(b) 의 상방을 전방으로 하여 설명한다. 발광 소자 (2) 의 후면은 리드 단자 (13) 의 전단부에 장착된 미러 (꺾부)(14) 에 대하여 다이 본드에 의해 접합되어 있다. 또한, 발광 소자 (2) 는, 상기 서술한 p 형 반도체층 및 n 형 반도체층 각각에 도전 와이어 (예를 들어, 금 와이어)(15, 15) 가 본딩에 의해 접속되고, 이 도전 와이어 (15, 15) 를 통하여 발광 소자 (2) 와 리드 단자 (12, 13) 가 전기적으로 접속되어 있다. 또한, 도전 와이어 (15, 15) 는 발광 소자 (2) 로부터 방사되는 광을 방해하지 않도록 단면적이 작은 것이 이용되고 있다.
- [0457] 미러 (14) 는 발광 소자 (2) 의 측면 및 후면으로부터 방사된 광을 전방에 반사하는 기능을 갖고, LED 칩으로부터 방사된 광 및 미러 (14) 에 의해 전방에 반사된 광은, 렌즈로서 기능하는 몰드부 (11) 의 전단부를 통과하여 몰드부 (11) 로부터 전방으로 방사된다. 몰드부 (11) 는 미러 (14), 도전 와이어 (15, 15), 리드 단자 (12, 13) 의 일부와 함께, 발광 소자 (2) 를 덮고 있으며, 발광 소자 (2) 가 대기 중의 수분 등과 반응하는 것에 의한 특성의 열화가 방지되어 있다. 각 리드 단자 (12, 13) 의 후단부는 각각 몰드부 (11) 의 후면에서 외부로 돌출되어 있다.
- [0458] 그런데, 발광 소자 (2) 는, 도 3(b) 에 나타내듯이, 질화갈륨계 반도체로 이루어지는 발광층부 (21) 가, 형광체부 (3B) 상에 반도체 프로세스를 이용하여 형성되어 있고, 형광체부 (3B) 의 후면에는 반사층 (23) 이 형성되어 있다. 발광층부 (21) 로부터의 발광에 의한 광은 전체 방위로 방사되지만, 형광체부 (3B) 에 흡수된 일부의 광은 형광체부 (3B) 를 여기하여, 상기 형광 성분 특유의 파장의 광을 방사한다. 이 형광체부 (3B) 에서 발광한 광은 반사층 (23) 에 의해 반사되어 전방으로 방사된다. 따라서, 발광 장치 (1B) 는, 발광층부 (21)

로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광의 합성광이 얻어지게 된다.

[0459] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 는, 발광 소자 (2) 와, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 형광체부 (3B) 를 구비하여 이루어진다. 여기서, 형광체부 (3B) 로서 투광성이 우수한 것을 이용하면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광의 일부가 그대로 외부로 방사됨과 함께, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광의 다른 일부에 의해 발광 중심이 되는 형광 성분이 여기되어 당해 형광 성분 특유의 발광에 의한 광이 외부로 방사되기 때문에, 발광 소자 (2) 로부터 방사되는 광과 형광체부 (3B) 의 형광 성분으로부터 방사되는 광의 합성광을 얻을 수 있고, 또한, 종래에 비해 광색 얼룩이나 광색 편차를 줄일 수 있음과 함께, 외부로의 광의 추출 효율을 높일 수 있다. 즉, 형광체부 (3B) 로서, 흐림이나 탁함 없이 투명성이 높은 것을 이용하면, 광색의 균일성이 우수하고, 발광 장치 (1B) 간의 광색 편차도 거의 없어, 발광 소자 (2) 의 광의 외부로의 추출 효율을 종래에 비해 높일 수 있다. 또한, 발광 물질의 내광성을 높일 수 있어, 종래에 비해 발광 장치 (1B) 의 장수명화를 도모하는 것이 가능해진다.

[0460] 또한, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 형광체부 (3B) 가 발광 소자 (2) 를 형성하는 기관에 겸용되고 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터의 광의 일부에 의해 형광체부 중의 발광 중심이 되는 형광체를 효율적으로 여기할 수 있어, 당해 형광 성분 특유의 발광에 의한 광의 휘도를 높일 수 있다.

[0461] [실시형태 B-2]

[0462] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 는, 도 4 에 나타내듯이, 프린트 배선 (17) 이 실시된 절연 기관 (16) 상에 발광 소자 (2) 가 표면 실장되어 있다. 여기서, 발광 소자 (2) 는, 실시형태 B-1 과 동일한 구성이며, 질화갈륨계 반도체로 이루어지는 발광층부 (21) 가 형광체부 (3B) 상에 형성되고, 형광체부 (3B) 의 후면에 반사층 (23) 이 형성되어 있다. 또한, 발광 소자 (2) 는 발광층부 (21) 의 p 형 반도체층 (도시하지 않음) 및 n 형 반도체층 (도시하지 않음) 각각이, 도전 와이어 (15, 15) 를 통하여 프린트 배선 (17, 17) 에 전기적으로 접속되어 있다.

[0463] 또한, 절연 기관 (16) 상에는 발광 소자 (2) 를 둘러싸는 틀형의 틀재 (18) 가 고착되어 있고, 틀재 (18) 의 내측에는 발광 소자 (2) 를 봉지·보호하는 봉지부 (19) 가 형성되어 있다.

[0464] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에 있어서도, 실시형태 B-1 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 와, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 형광체부 (3B) 를 구비하여 이루어지므로, 발광 소자 (2) 로부터의 광과 형광체로부터의 광의 합성광을 얻을 수 있다. 또한, 실시형태 B-1 과 마찬가지로, 종래에 비해 광색 얼룩이나 광색 편차를 줄일 수 있음과 함께, 외부로의 광의 추출 효율을 높일 수 있어, 장수명화를 도모하는 것도 가능해진다.

[0465] [실시형태 B-3]

[0466] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 실시형태 B-2 에서 설명한 틀재 (18)(도 4 참조) 를 이용하지 않고, 도 5 에 나타내듯이, 봉지부 (19) 의 형상이 상이하다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0467] 본 실시형태에 있어서의 봉지부 (19) 는, 발광 소자 (2) 를 봉지하는 원추대형의 봉지 기능부 (19a) 와 봉지부 (19) 의 전단부에 있어서 렌즈로서 기능하는 렌즈형의 렌즈 기능부 (19b) 로 구성되어 있다.

[0468] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-2 에 비해 부품 점수를 줄일 수 있어, 소형화 및 경량화를 도모할 수 있다. 게다가, 봉지부 (19) 의 일부에 렌즈로서 기능하는 렌즈 기능부 (19b) 를 형성함으로써, 지향성이 우수한 배광을 얻을 수 있다.

[0469] [실시형태 B-4]

[0470] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 6 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 6 에 있어서의 상면) 에 발광 소자 (2) 를 수납하는 오목 지점 (16a) 이 형성되어 있고, 오목 지점 (16a) 의 저부에 발광 소자 (2) 가 실장되고, 오목 지점 (16a) 내에 봉지부 (19) 를 형성하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 절연 기관 (16) 에 형성된 프린트 배선 (17, 17) 은 오목 지점 (16a) 의 저부까지 연장되고, 도전 와이어 (15, 15) 를 통하여 발광 소자 (2) 의 질화갈륨계 반도체로 이루어지는 발광층부 (21) 에 전기적으로 접속되어 있다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

- [0471] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는 봉지부 (19) 가 절연 기관 (16) 의 상면에 형성된 오목 지점 (16a) 을 충전함으로써 형성되어 있으므로, 실시형태 B-2 에서 설명한 틀재 (18)(도 5 참조) 나 실시형태 B-3 에서 설명한 성형용 금형을 이용하지 않고 봉지부 (19) 를 형성할 수 있어, 실시형태 B-2, B-3 에 비해 발광 소자 (2) 의 봉지 공정을 간편하게 실시할 수 있다는 이점이 있다.
- [0472] [실시형태 B-5]
- [0473] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 7 에 나타내듯이, 발광 소자 (2) 가 절연 기관 (16) 에 소위 플립 칩 실장되어 있는 점에 특징이 있다. 즉, 발광 소자 (2) 는 발광층부 (21) 의 p 형 반도체층 (도시하지 않음) 및 n 형 반도체층 (도시하지 않음) 각각의 표면층에 도전성 재료로 이루어지는 범프 (24, 24) 가 형성되어 있고, 발광층부 (21) 가 페이스 다운으로 범프 (24, 24) 를 통하여 절연 기관 (16) 의 프린트 배선 (17, 17) 과 전기적으로 접속되어 있다. 따라서, 본 실시형태에 있어서의 발광 소자 (2) 는, 절연 기관 (16) 에 가장 가까운 층에 발광층부 (21) 가 배치되고, 절연 기관 (16) 으로부터 가장 먼 층에 반사층 (23) 이 배치되어, 발광층부 (21) 와 반사층 (23) 사이에 형광체부 (3B) 가 개재되게 된다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.
- [0474] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 반사층 (23) 에서 도 7 에 있어서의 하방 (후방) 으로 반사된 광은, 오목 지점 (16a) 의 내주면에서 반사되어 동일 도면에 있어서의 상방 (전방) 으로 방사된다. 여기서, 오목 지점 (16a) 의 내주면으로서 프린트 배선 (17, 17) 이외의 부위에는, 반사율이 높은 재료로 이루어지는 반사층을 별도로 형성하는 것이 바람직하다.
- [0475] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는 절연 기관 (16) 에 형성된 프린트 배선 (17, 17) 과 발광 소자 (2) 를 접속하기 위하여 실시형태 B-4 와 같은 도전 와이어 (15, 15) 를 필요로 하지 않기 때문에, 실시형태 B-4 에 비해 기계적 강도 및 신뢰성을 향상시키는 것이 가능해진다.
- [0476] [실시형태 B-6]
- [0477] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-5 와 거의 동일하고, 도 8 에 나타내듯이, 실시형태 B-5 에서 설명한 반사층 (23) 을 형성하지 않은 점이 상이하다. 요컨대, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 발광층부 (21) 에서 발광한 광 및 형광체부 (3B) 에서 발광한 광이 봉지부 (19) 를 투과하여 그대로 전방으로 방사되게 된다. 또한, 실시형태 B-5 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.
- [0478] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-5 에 비해 부품 점수를 삭감할 수 있어 제조가 용이해진다.
- [0479] [실시형태 B-7]
- [0480] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-1 과 거의 동일하고, 도 9 에 나타내듯이, 발광 소자 (2) 를 덮는 몰드부 (11) 를 구비하고 있고, 몰드부 (11) 를 형광체부와 일체로 형성하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 실시형태 B-1 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.
- [0481] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 제조시에는, 몰드부 (11) 를 형성하지 않은 생산 도중인 물건을 형광체부 형성액을 모은 성형 금형 중에 침지시켜, 형광체부 형성액 (중축합체) 을 경화시키는 방법 등에 의해 몰드부 (11) 를 형성하고 있다.
- [0482] 그리고, 본 실시형태에서는, 몰드부 (11) 가 형광체부와 일체로 형성되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 몰드부 (11) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다.
- [0483] [실시형태 B-8]
- [0484] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-1 과 거의 동일하고, 도 10 에 나타내듯이, 몰드부 (11) 의 외면에 후면이 개구된 컵형의 형광체부 (3B) 가 장착되어 있는 점에 특징이 있다. 즉, 본 실시형태에서는, 실시형태 B-1 과 같이 발광 소자 (2) 에 형광체부 (3B) 를 형성하는 대신에, 몰드부 (11) 의 외주를 따른 형상의 형광체부 (3B) 를 형성하고 있는 것이다. 또한, 실시형태 B-1 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.
- [0485] 본 실시형태에 있어서의 형광체부 (3B) 는, 실시형태 B-7 에서 설명한 형광체부 형성액 (중축합체) 을 경화시키

는 방법에 의해 박막으로서 형성해도 되고, 혹은 미리 고체의 형광체부를 컵형으로 성형 가공한 부재를 몰드부 (11) 에 장착하도록 해도 된다.

[0486] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-7 의 발광 장치 (1B) 와 같이 몰드부 (11) 전체를 형광체부와 일체로 형성하는 경우에 비해, 형광체부의 재료 사용량의 삭감을 도모할 수 있어, 저비용화를 도모할 수 있다.

[0487] [실시형태 B-9]

[0488] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은, 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 11 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 11 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 둘러싸도록 배치된 틀형의 틀재 (18) 를 구비하고 있으며, 틀재 (18) 의 내측 봉지부 (19) 를 실시형태 B-2 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일한 형광체부에 의해 형성하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0489] 그리고, 본 실시형태에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다.

[0490] [실시형태 B-10]

[0491] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은, 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 12 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 12 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 둘러싸도록 배치된 틀형의 틀재 (18) 를 구비하고 있으며, 틀재 (18) 의 내측의 봉지부 (19) 를 실시형태 B-2 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일한 형광체부에 의해 형성하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0492] 그리고, 본 실시형태에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다.

[0493] 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에 형광체부 (3B) 가 형성되고, 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 전체 방위에 형광체부가 존재하게 되어, 형광체부의 여기, 발광을 실시형태 B-9 에 비해 한층 더 효율적으로 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0494] [실시형태 B-11]

[0495] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 13 에 나타내듯이, 투광성 재료로 이루어지는 봉지부 (19) 의 상면에, 미리 렌즈형으로 성형한 형광체부 (33) 를 배치하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부 (33) 는, 실시형태 B-2 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일한 재질로 이루어지고, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0496] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 형광체부 (33) 가 파장 변환 기능뿐만 아니라, 렌즈로서의 기능을 갖게 되어, 렌즈 효과에 의한 발광의 지향성 제어를 실시할 수 있다.

[0497] [실시형태 B-12]

[0498] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 14 에 나타내듯이, 투광성 재료로 이루어지는 봉지부 (19) 의 상면에, 미리 렌즈형으로 성형한 형광체부 (33) 를 배치하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부 (33) 는, 실시형태 B-2 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일한 재질로 이루어지고, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0499] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 형광체부 (33) 가 파장 변환 기능뿐만 아니라, 렌즈로서의 기능을 갖게 되어, 렌즈 효과에 의한 발광의 지향성 제어를 실시할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에 형광체부 (3B) 가 형성되어 있으므로, 형광체부의 여기, 발광을 실시형태 B-11 에 비해 한층 더 효율적으로 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0500] [실시형태 B-13]

[0501] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-3 과 거의 동일하고, 도 15 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 상면측에 있어서 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 를 구비하고 있으며, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는, 실시형태 B-3 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 를 봉지하는 원추대형의 봉지 기능부 (19a) 와 봉지부 (19) 의 전단부에 있어서 렌즈로서 기능하는 렌즈형의 렌즈 기능부 (19b) 로 구성되어 있다. 또한, 실시형태 B-3 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0502] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 발광 소자 (2) 를 봉지·보호하는 기능뿐만 아니라, 발광 소자 (2) 로부터의 광을 파장 변환하는 파장 변환 기능, 발광의 지향성을 제어하는 렌즈 기능을 갖게 된다. 또한, 봉지부 (19) 의 내광성을 높일 수 있어, 장수명화를 도모할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에 형광체부 (3B) 가 형성되고, 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 전체 방위에 형광체부가 존재하게 되어, 형광체부의 여기, 발광을 실시형태 B-12 에 비해 한층 더 효율적으로 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0503] [실시형태 B-14]

[0504] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-3 과 거의 동일하고, 도 16 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 16 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 를 구비하고 있으며, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는 실시형태 B-3 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 를 봉지하는 원추대형의 봉지 기능부 (19a) 와 봉지부 (19) 의 전단부에 있어서 렌즈로서 기능하는 렌즈형의 렌즈 기능부 (19b) 로 구성되어 있다. 또한, 실시형태 B-3 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0505] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 발광 소자 (2) 를 봉지·보호하는 기능뿐만 아니라, 발광 소자 (2) 로부터의 광을 파장 변환하는 파장 변환 기능, 발광의 지향성을 제어하는 렌즈 기능을 갖게 된다. 또한, 봉지부 (19) 의 내광성을 높일 수 있어, 장수명화를 도모할 수 있다.

[0506] [실시형태 B-15]

[0507] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-3 과 거의 동일하고, 도 17 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 상면측에 있어서 발광 소자 (2) 를 덮는 돛형의 형광체부 (34) 를 배치하고, 형광체부 (34) 의 외면측에 투광성 수지로 이루어지는 봉지부 (19) 가 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는 실시형태 B-3 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지 기능부 (19a) 와 봉지부 (19) 의 전단부에 있어서 렌즈로서 기능하는 렌즈형의 렌즈 기능부 (19b) 로 구성되어 있다. 또한, 실시형태 B-3 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0508] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-13, B-14 에 비해 형광체부 (34) 의 재료 사용량을 저감할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 를 덮는 돛형의 형광체부 (34) 가 배치되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 외부로부터의 수분 등에 의한 발광 소자 (2) 의 열화를 보다 확실히 방지할 수 있어, 장수명화를 도모할 수 있다.

[0509] [실시형태 B-16]

[0510] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-3 과 거의 동일하고, 도 18 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 상면측에 있어서 발광 소자 (2) 를 덮는 돛형의 형광체부 (34) 를 배치하고, 형광체부 (34) 의 외면측에 봉지부 (19) 가 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는 실시형태 B-3 과 마찬가지로, 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지 기능부 (19a) 와 봉지부 (19) 의 전단부에 있어서 렌즈로서 기능하는 렌즈형의 렌즈 기능부 (19b) 로 구성되어 있다. 또한, 실시형태 B-3 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0511] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-13, B-14 에 비해 형광체부 (34) 의 재료 사용량을 저감할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 를 덮는 돛형의 형광체부 (34) 가 배치되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 외부로부터의 수분 등에 의한 발광 소자 (2) 의 열화를 보다 확실히 방지할 수 있어, 장수명화를 도모할 수 있다. 또한,

본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에 형광체부 (3B) 가 형성되고, 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 전체 방위에 형광체부가 존재하게 되어, 형광체부의 여기, 발광을 실시형태 B-15 에 비해 한층 더 효율적으로 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0512] [실시형태 B-17]

[0513] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 19 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 19 에 있어서의 상면) 에 형성한 오목 지점 (16a) 의 저부에 배치된 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고 있고, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0514] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에 형광체부 (3B) 가 형성되고, 발광 소자 (2) 를 덮는 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있으므로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 전체 방위에 형광체부가 존재하게 되어, 형광체부의 여기, 발광을 실시형태 B-15 에 비해 한층 더 효율적으로 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0515] [실시형태 B-18]

[0516] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 20 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 20 에 있어서의 상면) 에 형성한 오목 지점 (16a) 의 저부에 배치된 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고 있고, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부 (3B) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0517] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부 (3B) 로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다.

[0518] [실시형태 B-19]

[0519] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 21 에 나타내듯이, 봉지부 (19) 의 표면 (광추출면) 에 미리 렌즈형으로 성형한 형광체부 (33) 를 배치하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부 (33) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0520] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 형광체부 (33) 가 파장 변환 기능뿐만 아니라, 렌즈로서의 기능을 갖게 되어, 렌즈 효과에 의한 발광의 지향성 제어를 실시할 수 있다.

[0521] [실시형태 B-20]

[0522] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 22 에 나타내듯이, 봉지부 (19) 의 상면 (광추출면) 에 미리 렌즈형으로 성형한 형광체부 (33) 를 배치하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 형광체부 (33) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0523] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 형광체부 (33) 가 파장 변환 기능뿐만 아니라, 렌즈로서의 기능을 갖게 되어, 렌즈 효과에 의한 발광의 지향성 제어를 실시할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 후면에도 형광체부 (3B) 가 배치되어 있으므로, 실시형태 B-19 에 비해 형광체부의

여기, 발광이 한층 더 효율적에 행해진다는 이점이 있다.

[0524] [실시형태 B-21]

[0525] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-5 와 거의 동일하고, 도 23 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 23 에 있어서의 상면) 에 형성한 오목 지점 (16a) 의 저부에 배치된 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고 있고, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는, 미리, 도 24 에 나타내듯이, 외주 형상이 오목 지점 (16a) 에 대응하는 형상으로서 발광 소자 (2) 에 대응하는 부위에 발광 소자 (2) 를 수납하기 위한 오목부 (19c) 를 갖는 형상으로 가공한 것을, 발광 소자 (2) 가 실장된 절연 기관 (16) 의 오목 지점 (16a) 에 장착하고 있으므로, 봉지 공정을 간편화할 수 있다. 또한, 봉지부 (19) 를 형성하는 형광체부 (3B) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-5 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0526] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부 (3B) 로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다. 또한, 본 실시형태에서는, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 으로부터 전방으로 방사된 광이 반사층 (23) 에 의해 일단, 오목 지점 (16a) 의 내저면측을 향하여 반사되므로, 오목 지점 (16a) 의 내저면 및 내주면에 반사층을 형성해 두면, 오목 지점 (16a) 의 내저면 및 내주면에서 다시 반사되어 전방으로 방사되게 되어 광로 길이를 길게 취할 수 있어, 형광체부 (3B) 에 의해 효율적으로 여기, 발광을 실시할 수 있다는 이점이 있다.

[0527] [실시형태 B-22]

[0528] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-5 와 거의 동일하고, 도 25 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 25 에 있어서의 상면) 에 형성한 오목 지점 (16a) 의 저부에 배치된 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고 있고, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는, 미리, 도 26 에 나타내듯이, 외주 형상이 오목 지점 (16a) 에 대응하는 형상으로서 발광 소자 (2) 에 대응하는 부위에 발광 소자 (2) 를 수납하기 위한 오목부 (19c) 를 갖는 형상으로 가공한 것을, 발광 소자 (2) 가 실장된 절연 기관 (16) 의 오목 지점 (16a) 에 장착하고 있으므로, 봉지 공정을 간편화할 수 있다. 또한, 봉지부 (19) 를 형성하는 형광체부 (3B) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-5 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0529] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있으므로, 형광체부 (3B) 로서 후술하는 바와 같이 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용함으로써, 봉지부 (19) 의 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성 등을 높이거나, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리를 억제하거나 하는 것이 가능해진다.

[0530] [실시형태 B-23]

[0531] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-6 과 거의 동일하고, 도 27 에 나타내듯이, 발광 소자 (2) 의 상면에, 미리 막대형으로 가공한 형광체부 (3B) 를 배치하고 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 발광 소자 (2) 및 형광체부 (3B) 의 주위에는 투광성 재료로 이루어지는 봉지부 (19) 가 형성되어 있고, 형광체부 (3B) 는 일단면 (도 27 에 있어서의 하단면) 이 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 에 밀착되어 타단면 (도 27 에 있어서의 상단면) 이 노출되어 있다. 또한, 실시형태 B-6 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0532] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 상기 일단면이 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 에 밀착하는 형광체부 (3B) 가 막대형으로 형성되어 있으므로, 발광층부 (21) 에서 발광한 광을 형광체부 (3B) 의 상기 일단면을 통과하여 형광체부 (3B) 에 효율적으로 도입할 수 있어, 도입한 광에 의해 여기된 형광체부 (3B) 의 발광을 형광체부 (3B) 의 상기 타단면을 통과하여 외부에 효율적으로 방사시킬 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 를 비교적 대径의 막대형으로 형성하여 1 개만 이용하고 있지만, 도 28 에 나타내듯이 형광체부 (3B) 를 비교적 소径의 파이버형으로 형성하여 복수개의 형광체부 (3B) 를 늘어놓아 배치하도록 해도 된다. 또한, 형광체부 (3B) 의 단면 형상은 원형에 한정하지 않고, 예를 들어 사각 형상으로 형성해도 되고, 그 밖의

형상으로 형성해도 됨은 물론이다.

[0533] [실시형태 B-24]

[0534] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-23 과 거의 동일하고, 도 29 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 오목 지점 (16a) 내에 형성한 봉지부 (19) 를 구비하고, 봉지부 (19) 가 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있는 점에 특징이 있다. 여기서, 봉지부 (19) 는, 미리, 도 30 에 나타내듯이, 외주 형상이 오목 지점 (16a) 에 대응하는 형상으로서 발광 소자 (2) 에 대응하는 부위에 발광 소자 (2) 를 수납하기 위한 관통공 (19d) 을 갖는 형상으로 가공한 것을, 발광 소자 (2) 가 실장된 절연 기관 (16) 의 오목 지점 (16a) 에 장착하고 있으므로, 봉지 공정을 간편화할 수 있다. 또한, 봉지부 (19) 를 형성하는 형광체부 (3B) 는 실시형태 B-1 에서 설명한 형광체부 (3B) 와 동일하게 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 소망하는 파장의 광을 발광하는 것이다. 또한, 실시형태 B-23 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0535] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 봉지부 (19) 도 형광체부 (3B) 에 의해 형성되어 있으므로, 장수명화 및 발광의 고효율화를 도모할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 를 비교적 대경의 막대형으로 형성하여 1 개만 이용하고 있지만, 도 31 에 나타내듯이 형광체부 (3B) 를 비교적 소경의 파이버형으로 형성하여 복수개의 형광체부 (3B) 를 늘어놓아 배치하도록 해도 된다. 또한, 형광체부 (3B) 의 단면 형상은 원형에 한정하지 않고, 예를 들어 사각 형상으로 형성해도 되고, 그 밖의 형상으로 형성해도 됨은 물론이다.

[0536] [실시형태 B-25]

[0537] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-2 와 거의 동일하고, 도 32 에 나타내듯이 절연 기관 (16) 의 일면 (도 32 에 있어서의 상면) 측에 배치된 틀재 (18) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 틀재 (18) 의 내측의 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF₂ · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-2 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0538] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

[0539] 따라서, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 로부터 청색광이 방사됨과 함께, 형광체 분말로부터 황색광이 방사되어, 어느 발광색과도 상이한 백색광을 얻을 수 있다.

[0540] 또한, 기존의 형광체 분말이나 형광체부의 형광체 입자에서는 각각에 발광 가능한 재료가 한정되어 있어, 어느 일방만으로는 소망하는 광색이 얻어지지 않는 경우도 있어, 이러한 경우에는 본 실시형태는 매우 유효하다. 즉, 형광체부 (3B) 만으로 소망하는 광색 특성이 얻어지지 않는 경우에는, 형광체부 (3B) 에 결합되어 있는 적당한 광색 특성을 갖는 형광체 분말을 병용하여 보완함으로써, 소망하는 광색 특성의 발광 장치 (1B) 를 실현할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다. 여기서, 형광체부 (3B) 와 형광체 분말에서 발광색을 거의 동일한 색으로 하는 경우에는, 예를 들어, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 적색광을 발광하는 P₂O₅ · SrF₂ · BaF₂ : Eu³⁺ 를 이용함과 함께, 형광체 분말로서 적색광을 발광하는 Y₂O₃ : Eu³⁺ 를 이용하면, 적색 발광의 고효율화를 도모할 수 있다. 이 형광체부 (3B) 와 형광체 분말의 조합은 일례이며, 다른 조합을 채용해도 됨은 물론이다.

[0541] [실시형태 B-26]

[0542] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-3 과 거의 동일하고, 도 33 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 33 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자

(2)의 발광층부(21)가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부(19)로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG:Ce³⁺ 형광체의 분말)이 분산되어, 봉지부(19)가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부(3B)의 형광체 입자로서 불인산염계 유리(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅·AlF₃·MgF·CaF₂·SrF₂·BaCl₂:Eu²⁺)를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-3 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0543] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치(1B)에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자(2)로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부(19)에 분산되어 있으므로, 발광 소자(2)로부터 방사된 광과 형광체부(3B)로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자(2)의 발광층부(21)의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자(2)로부터 방사된 광에 의해 형광체부(3B)와 봉지부(19)중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부(3B)의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부(3B)의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부(3B)의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0544] [실시형태 B-27]

[0545] 본 실시형태의 발광 장치(1B)의 기본 구성은 실시형태 B-4 와 거의 동일하고, 도 34 에 나타내듯이, 절연 기관(16)의 상면에 형성된 오목 지점(16a)에 충전되어 발광 소자(2)를 봉지하는 봉지부(19)를 구비하고, 발광 소자(2)의 발광층부(21)가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부(19)로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG:Ce³⁺ 형광체의 분말)이 분산되어, 봉지부(19)가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부(3B)의 형광체 입자로서 불인산염계 유리(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅·AlF₃·MgF·CaF₂·SrF₂·BaCl₂:Eu²⁺)를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-4 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0546] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치(1B)에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자(2)로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부(19)에 분산되어 있으므로, 발광 소자(2)로부터 방사된 광과 형광체부(3B)로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자(2)의 발광층부(21)의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자(2)로부터 방사된 광에 의해 형광체부(3B)와 봉지부(19)중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부(3B)의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부(3B)의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부(3B)의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0547] [실시형태 B-28]

[0548] 본 실시형태의 발광 장치(1B)의 기본 구성은 실시형태 B-5 와 거의 동일하고, 도 35 에 나타내듯이, 절연 기관(16)의 일면(도 35 에 있어서의 상면)에 형성된 오목 지점(16a)에 충전되어 발광 소자(2)를 봉지하는 봉지부(19)를 구비하고, 발광 소자(2)의 발광층부(21)가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부(19)로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG:Ce³⁺ 형광체의 분말)이 분산되어, 봉지부(19)가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부(3B)의 형광체 입자로서 불인산염계 유리(예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅·AlF₃·MgF·CaF₂·SrF₂·BaCl₂:Eu²⁺)를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-5 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0549] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치(1B)에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자(2)로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부(19)에 분산되어 있으므로, 발광 소자(2)로부터 방사된 광과 형광체부(3B)로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0550] [실시형태 B-29]

[0551] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-6 과 거의 동일하고, 도 36 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 36 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다.

또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-6 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0552] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0553] [실시형태 B-30]

[0554] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-1 과 거의 동일하고, 도 37(a), 도 37(b) 에 나타내듯이, 포탄형의 몰드부 (11) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 몰드부 (11) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 몰드부 (11) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-1 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0555] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 몰드부 (11) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 몰드부 (11) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0556] [실시형태 B-31]

[0557] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-8 과 거의 동일하고, 도 38 에 나타내듯이, 포탄형의 몰드부 (11) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21)(도 38 에서는 도시를 생략하고 있다.) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 몰드부 (11) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근

자의광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 몰드부 (11) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자의외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-8 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0558] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 몰드부 (11) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자의외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 몰드부 (11) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0559] [실시형태 B-32]

[0560] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-11 과 거의 동일하고, 도 39 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 39 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자의외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자의외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (33) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자의외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-11 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0561] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (33) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자의외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (33) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (33) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0562] [실시형태 B-33]

[0563] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-15 와 거의 동일하고, 도 40 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 40 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자의외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자의외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (34) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자의외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-15 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0564] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (34) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (34) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (34) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (34) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (34) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0565] [실시형태 B-34]

[0566] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-19 와 거의 동일하고, 도 41 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 41 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다.

또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (33) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-19 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0567] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (33) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (33) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (33) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0568] [실시형태 B-35]

[0569] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-12, B-22 와 거의 동일하고, 도 42 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 일면 (도 42 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaIn 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (33) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-12, B-22 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0570] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (33) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (33) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (33) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (33) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0571] [실시형태 B-36]

[0572] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-12 와 거의 동일하고, 도 43 에 나타내듯이, 절연 기관 (16) 의 상면측에 있어서 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부

(21) 가 AlGaN 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-12 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0573] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0574] [실시형태 B-37]

[0575] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-16 과 거의 동일하고, 도 44 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 44 의 상면) 측에 있어서 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaN 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (34) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-16 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0576] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (34) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (34) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (34) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (34) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (34) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0577] [실시형태 B-38]

[0578] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-20 과 거의 동일하고, 도 45 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 45 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaN 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다.

또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-20 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0579] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형

광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다.

즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0580] [실시형태 B-39]

[0581] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-5, B-12 와 거의 동일하고, 도 46 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 46 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaN 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-5, B-12 와 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0582] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다. 즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0583] [실시형태 B-40]

[0584] 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 의 기본 구성은 실시형태 B-20, B-21 과 거의 동일하고, 도 47 에 나타내듯이, 절연 기판 (16) 의 일면 (도 47 에 있어서의 상면) 에 형성된 오목 지점 (16a) 에 충전되어 발광 소자 (2) 를 봉지하는 봉지부 (19) 를 구비하고, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 가 AlGaN 계에서 근자외광을 발광하는 것으로서, 봉지부 (19) 로서 이용하는 투광성 재료 중에 형광체 분말 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 황색광을 발광하는 YAG : Ce³⁺ 형광체의 분말) 이 분산되어, 봉지부 (19) 가 형광체부로서 기능하고 있는 점에 특징이 있다. 또한, 본 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 의 형광체 입자로서 불인산염계 유리 (예를 들어, 근자외광에 의해 여기되어 청색광을 발광하는 P₂O₅ · AlF₃ · MgF · CaF₂ · SrF₂ · BaCl₂ : Eu²⁺) 를 이용하고 있다. 또한, 실시형태 B-20, B-21 과 동일한 구성 요소에는 동일한 부호를 부여하고 설명을 생략한다.

[0585] 그리고, 본 실시형태의 발광 장치 (1B) 에서는, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 로부터의 광에 의해 여기되어 발광하는 형광체 분말이 봉지부 (19) 에 분산되어 있으므로, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광과 형광체부 (3B) 로부터 방사된 광과 형광체 분말로부터 방사된 광의 합성광으로 이루어지는 광출력이 얻어진다. 즉, 실시형태 B-25 와 마찬가지로, 발광 소자 (2) 의 발광층부 (21) 의 재료로서 근자외광을 발광하는 재료를 선택해 두면, 발광 소자 (2) 로부터 방사된 광에 의해 형광체부 (3B) 와 봉지부 (19) 중의 형광체 분말의 쌍방이 여기되어 각각이 고유의 발광을 띠고, 그 합성광이 얻어지게 된다. 또한, 본 실시형태에 있어서도, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색과 다르게 하고 있지만, 형광체 분말의 발광색을 형광체부 (3B) 의 발광색에 맞추어 두면, 형광체부 (3B) 의 발광에 형광체 분말의 발광이 중첩되어, 광출력을 증가시킬 수 있어, 발광 효율을 높일 수 있다.

[0586] 그런데, 상기 각 실시형태에서는, 형광체부 (3B) 를 소망하는 형상으로 가공하고 있지만, 도 48 에 나타내듯이, 형광체부 (3B) 를 직경이 가시 과장보다 약간 큰 구형으로 형성하고 다수의 형광체부 (3B) 를 투광성 재료로 이루어지는 고체 매질 (35) 중에 분산시켜 상기 각 실시형태에 있어서의 형광체부 대신에 이용하도록 하면, 가시

과장역에서의 형광체부의 투명성을 유지하면서도 형광체부의 재료 사용량의 저감화를 도모할 수 있어, 저비용화를 도모할 수 있다.

[0587] 또한, 상기 각 실시형태의 발광 장치 (1B) 는 1 개의 발광 소자 (2) 밖에 구비하고 있지 않지만, 복수개의 발광 소자 (2) 에 의해 1 단위의 모듈을 구성하고, 모듈의 적어도 일부에 발광 물질로서의 형광체부를 근접하여 배치하도록 해도 됨은 물론이다. 또한, 예를 들어 실시형태 B-1 에서 설명한 바와 같은 포단형의 몰드부 (11) 를 구비하는 발광 장치의 경우에는 복수개의 발광 장치를 동일 프린트 기관에 실장하여 1 단위의 모듈을 구성하도록 해도 된다. 또한, 예를 들어 실시형태 B-2 에서 설명한 바와 같은 표면 실장형의 발광 장치에 대해서는 복수개의 발광 소자 (2) 를 동일한 절연 기관 (16) 상에 배치하여 1 단위의 모듈을 구성하도록 해도 된다.

[0588] [반도체 발광 디바이스용 부재의 적용]

[0589] 이상 설명한 각 실시형태 A-1, A-2, B-1 ~ B-40 의 발광 장치 (반도체 발광 디바이스)(1A, 1B) 에 있어서, 본 발명의 반도체 발광 디바이스 부재를 적용하는 개소는 특별히 제한되지 않는다. 상기의 각 실시형태에 있어서는, 투명 부재 (3A) 나 형광체부 (3B, 33, 34) 등을 형성하는 부재로서 본 발명의 반도체 발광 디바이스 부재를 적용한 예를 나타냈지만, 이것 이외에도, 예를 들어 상기 서술한 몰드부 (11), 틀재 (18), 봉지부 (19) 등을 형성하는 부재로서 적합하게 이용할 수 있다. 이러한 부재로서 본 발명의 반도체 발광 디바이스 부재를 이용함으로써, 상기 서술한 우수한 봉지성, 투명성, 내광성, 내열성, 막형성성, 장기간 사용에 수반하는 크랙이나 박리의 억제 등의 각종의 효과를 얻는 것이 가능해진다.

[0590] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스 부재를 적용하는 경우에는, 본 발명을 적용하는 개소에 따라, 적절히 변형을 추가하는 것이 바람직하다. 예를 들어, 형광체부 (3B, 33, 34) 에 본 발명을 적용하는 경우에는, 상기 서술한 형광체 입자 또는 형광체 이온이나 형광 염료 등의 형광 성분을 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 혼합하여 이용하면 된다. 이것에 의해, 상기에 든 각종 효과에 더하여, 형광체의 유지성을 높인다는 효과를 얻을 수 있다.

[0591] 또한, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 내구성이 우수하므로, 형광체를 함유하지 않고 단독으로 사용해도, 광내구성 (자외선 내구성) 이나 열내구성이 우수한 봉지 재료 (무기계 접착제 용도) 로서, 발광 소자 (LED 칩 등) 를 봉지하는 것이 가능하다.

[0592] 또한, 앞서 서술한 무기 입자를 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재에 혼합하여 이용하면, 상기에 든 각종 효과에 더하여, 무기 입자의 병용의 설명에 있어서 앞서 서술한 효과를 얻는 것이 가능해진다. 특히, 무기 입자를 병용함으로써, 발광 소자의 굴절률과 가까운 굴절률이 되도록 조정된 것은, 적합한 광추출 막으로서 작용한다.

[0593] [반도체 발광 디바이스의 용도 등]

[0594] 반도체 발광 디바이스는, 예를 들어, 발광 장치에 이용할 수 있다. 반도체 발광 디바이스를 발광 장치에 이용하는 경우, 당해 발광 장치는, 적색 형광체, 청색 형광체 및 녹색 형광체의 혼합물을 함유하는 형광체 함유층을, 광원 상에 배치하면 된다. 이 경우, 적색 형광체는, 청색 형광체, 녹색 형광체와는 반드시 동일한 층 중에 혼합되지 않아도 되며, 예를 들어, 청색 형광체와 녹색 형광체를 함유하는 층 위에 적색 형광체를 함유하는 층이 적층되어 있어도 된다.

[0595] 발광 장치에 있어서, 형광체 함유층은 광원의 상부에 형성될 수 있다. 형광체 함유층은, 광원과 봉지 수지부 사이의 접촉층으로서, 또는 봉지 수지부의 외측의 코팅층으로서, 또는 외부 캡의 내측의 코팅층으로서 제공될 수 있다. 또한, 봉지 수지내에 형광체를 함유시킨 형태를 취할 수도 있다.

[0596] 사용되는 봉지 수지로서는, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재를 이용할 수 있다. 또한, 그 밖의 수지를 사용할 수도 있다. 그러한 수지로서는, 통상, 열가소성 수지, 열경화성 수지, 광경화성 수지 등을 들 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어, 폴리메타크릴산메틸 등의 메타크릴 수지; 폴리스티렌, 스티렌-아크릴로니트릴 공중합체 등의 스티렌 수지; 폴리카보네이트 수지; 폴리에스테르 수지; 페녹시 수지; 부티랄 수지; 폴리비닐알코올; 에틸셀룰로오스, 셀룰로오스아세테이트, 셀룰로오스아세테이트부티레이트 등의 셀룰로오스계 수지; 에폭시 수지; 페놀 수지; 실리콘 수지 등을 들 수 있다. 또한, 무기계 재료, 예를 들어, 금속 알콕시드, 세라믹 전구체 폴리머 혹은 금속 알콕시드를 함유하는 용액을 졸-겔법에 의해 가수 분해 중합하여 이루어지는 용액 또는 이들의 조합을 고체화 한 무기계 재료, 예를 들어 실록산 결합을 갖는 무기계 재료를 이용할 수 있다. 또한, 봉지 수지는 1 종을 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.

- [0597] 봉지 수지에 대한 형광체의 사용량은 특별히 한정되는 것은 아니지만, 통상, 봉지 수지 100 중량부에 대하여 0.01 중량부 이상, 바람직하게는 0.1 중량부 이상, 보다 바람직하게는 1 중량부 이상, 또한, 통상 100 중량부 이하, 바람직하게는 80 중량부 이하, 보다 바람직하게는 60 중량부 이하이다.
- [0598] 또한, 봉지 수지에 형광체나 무기 입자 이외의 성분을 함유시킬 수도 있다. 예를 들어, 색조 보정용의 색소, 산화 방지제, 인계 가공 안정제 등의 가공·산화 및 열안정화제, 자외선 흡수제 등의 내광성 안정화제 및 실란 커플링제를 함유시킬 수 있다. 또한, 이들 성분은 1 종으로 이용해도 되며, 2 종 이상을 임의의 조합 및 비율로 병용해도 된다.
- [0599] 광원에 제한은 없지만, 350nm ~ 500nm 의 범위에 피크 파장을 갖는 광을 발광하는 것이 바람직하고, 구체적으로는, 발광 다이오드 (LED) 또는 레이저 다이오드 (LD) 등을 들 수 있다. 그 중에서도, GaN 계 화합물 반도체를 사용한, GaN 계 LED 나 LD 가 바람직하다. 왜냐하면, GaN 계 LED 나 LD 는, 이 영역의 광을 발하는 SiC 계 LED 등에 비하여, 발광 출력이나 외부 양자 효율이 현격히 커, 상기 형광체와 조합함으로써, 매우 저전력으로 매우 밝은 발광이 얻어지기 때문이다. 예를 들어, 20mA 의 전류 부하에 대하여, 통상 GaN 계 LED 나 LD 는 SiC 계의 100 배 이상의 발광 강도를 갖는다. GaN 계 LED 나 LD 에 있어서는, $Al_xGa_{1-x}N$ 발광층, GaN 발광층, 또는 $In_xGa_{1-x}N$ 발광층을 갖고 있는 것이 바람직하다. GaN 계 LED 에 있어서는, 이들 중에서 $In_xGa_{1-x}N$ 발광층을 갖는 것이 발광 강도가 매우 강하기 때문에 특히 바람직하고, GaN 계 LD 에 있어서는, $In_xGa_{1-x}N$ 층과 GaN 층의 다중 양자 우물 구조인 것이 발광 강도가 매우 강하기 때문에 특히 바람직하다.
- [0600] 또한, 상기에 있어서 X+Y 의 값은 통상 0.8 ~ 1.2 의 범위의 값이다. GaN 계 LED 에 있어서, 이들 발광층에 Zn 이나 Si 를 도펀트한 것이나 도펀트가 없는 것이 발광 특성을 조절하는 데 있어서 바람직한 것이다.
- [0601] GaN 계 LED 는 이들 발광층, p 층, n 층, 전극, 및 기판을 기본 구성 요소로 한 것으로서, 발광층을 n 형과 p 형의 $Al_xGa_{1-x}N$ 층, GaN 층, 또는 $In_xGa_{1-x}N$ 층 등으로 샌드위치로 한 헤테로 구조를 갖고 있는 것이 발광 효율이 높아 바람직하고, 또한 헤테로 구조를 양자 우물 구조로 한 것이 발광 효율이 더욱 높아, 보다 바람직하다.
- [0602] 발광 장치는, 백색광을 발하는 것으로서, 장치의 발광 효율이 20lm/W 이상, 바람직하게는 22lm/W 이상, 보다 바람직하게는 25lm/W 이상이며, 특히 바람직하게는 28lm/W 이상이고, 평균 연색 평가지수 Ra 가 80 이상, 바람직하게는 85 이상, 보다 바람직하게는 88 이상이다.
- [0603] 발광 장치는 단독으로, 또는 복수개를 조합함으로써, 예를 들어, 조명 램프, 액정 패널용 등의 백 라이트, 초박형 조명 등의 여러가지 조명 장치, 화상 표시 장치로서 사용할 수 있다.
- [0604] 실시예
- [0605] 이하, 실시예를 들어 본 발명을 보다 구체적으로 설명하는데, 그것들은 본 발명의 설명을 목적으로 하는 것으로서, 본 발명을 이들 형태에 한정하는 것을 의도한 것은 아니다.
- [0606] [I. 분석 방법]
- [0607] 후술하는 각 실시예 및 각 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 이하의 순서로 분석을 행하였다.
- [0608] [I-1. 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정]
- [0609] 각 실시예 및 각 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 이하의 조건으로 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정 및 파형 분리 해석을 행하였다. 얻어진 파형 데이터로부터, 각 실시예 및 각 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 각각의 피크의 반값폭 및 실라늘 함유율을 구하였다.
- [0610] <장치 조건>
- [0611] 장치 : Chemagnetics 사 Infinity CMX-400 핵 자기 공명 분광 장치
- [0612] ^{29}Si 공명 주파수 : 79.436MHz
- [0613] 프로브 : 7.5mm ϕ CP/MAS 용 프로브
- [0614] 측정 온도 : 실온
- [0615] 시료 회전수 : 4kHz

- [0616] 측정법 : 싱글 펄스법
- [0617] ¹H 디커플링 주파수 : 50kHz
- [0618] ²⁹Si 플립각 : 90°
- [0619] ²⁹Si 90° 펄스폭 : 5.0μs
- [0620] 반복 시간 : 600s
- [0621] 적산 횟수 : 128 회
- [0622] 관측폭 : 30kHz
- [0623] 브로드닝 팩터 : 20Hz
- [0624] <데이터 처리법>
- [0625] 실시예 1 및 비교예 1, 3 의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대해서는, 512 포인트를 측정 데이터로서 입력하고, 8192 포인트에 제로 필링하여 푸리에 변환하였다. 한편, 실리콘 수지로 이루어지는 비교예 2 의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대해서는, 피크가 매우 샤프하였으므로, 2048 포인트를 측정 데이터로서 입력하고, 8192 포인트에 제로 필링하여 푸리에 변환하였다.
- [0626] <파형 분리 해석법>
- [0627] 푸리에 변환 후의 스펙트럼의 각 피크에 대하여 로렌츠 파형 및 가우스 파형 혹은 양자의 혼합에 의해 작성한 피크 형상의 중심 위치, 높이, 반값폭을 가변 파라미터로 하여, 비선형 최소 이승법에 의해 최적화 계산을 행하였다.
- [0628] 또한, 피크의 동정은 AICHe Journal, 44(5), p.1141, 1998년 등을 참고로 하였다.
- [0629] [I-2. 특정 금속 원소의 합계 함유율의 측정]
- [0630] 특정 금속 원소 (Si, Al, Zr, Ti, Y, Nb, B) 의 합계 함유율은, 하기 (a), (b) 의 방법에 의해 각 원소의 함유율을 측정하고, 그 합계량에 의해 산출하였다.
- [0631] (a) 규소 함유율의 측정 :
- [0632] 각 실시예 및 각 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재의 단독 경화물을 100μm 정도로 분쇄하고, 백금 도가니 중에서 대기 중, 450℃ 에서 1 시간, 이어서 750℃ 에서 1 시간, 950℃ 에서 1.5 시간 유지하여 소성시키고, 탄소 성분을 제거한 후, 얻어진 잔사 소량에 10 배량 이상의 탄산나트륨을 첨가하고 버너 가열하여 용융시키고, 이것을 냉각시켜 탈염수를 첨가하고, 다시 염산으로 pH 를 중성 정도로 조정하면서 규소로서 수 ppm 정도가 되도록 부피를 일정하게 하여, ICP 분석을 행하였다.
- [0633] (b) 규소 이외의 금속 함유율의 측정 :
- [0634] 각 실시예 및 각 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재의 단독 경화물을 100μm 정도로 분쇄하고, 백금 도가니 중에서 대기 중, 450℃ 에서 1 시간, 이어서 750℃ 에서 1 시간, 950℃ 에서 1.5 시간 유지하여 소성시키고, 탄소 성분을 제거한 후, 얻어진 잔사 소량에 불화수소산을 첨가하여 가열하고, 건조(바싹 말림)시켰다. 이것에 희황산을 첨가하여 잔사를 용해시키고, 탈염수를 첨가하여 각 금속 원소로서 수 ppm 이 되도록 부피를 일정하게 하였다. 이 수용액을 이용하여 ICP 발광 분석을 행하였다.
- [0635] [I-3. 굴절률 측정]
- [0636] 실시예 및 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재의 단독 경화물을 수십 μm 정도의 분말형으로 분쇄하고, 예측되는 굴절률 근방의 굴절률을 갖는 굴절률 표준액 (굴절액) 수 점에 분산시켜 자연광하에서 관찰한 결과, 부유되는 분말이 광산란 없이 투명해져, 육안으로 확인할 수 없게 되는 액의 굴절률을 바인더의 굴절률로 하였다 (액침법).
- [0637] [I-4. 투과율의 측정]
- [0638] 실시예 및 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재의, 흠집이나 요철에 의한 산란이 없는 두께 약 0.5mm 의 평활

한 표면의 단독 경화물막을 이용하여, 자외 분광 광도계 (시마즈 제작소 제조 UV-3100) 를 사용하여, 파장 300 nm ~ 700nm 에 있어서 투과율 측정을 행하였다. 또한, 표 2 에는, 파장 400nm 에 있어서의 투과율을 나타낸다.

[0639] [I-5. 내열 시험]

[0640] 실시예 및 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 테플론 (등록 상표) 살레를 이용하여 제작한 직경 5cm, 막두께 약 1.0mm 의 샘플을 온도 200℃ 의 통풍 건조기 중에서 유지하였다.

[0641] [I-6. 자외 내광성 시험]

[0642] 실시예 및 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재에 대하여, 테플론 (등록 상표) 살레를 이용하여 제작한 직경 5cm, 막두께 약 1.0mm 의 샘플을 이용하여, 하기 조건으로 자외광을 조사하여, 조사 전후의 막의 모습을 비교하였다.

[0643] 조건 : 마츠시타 전공 제조 수은 크세논 램프 UV 조사 장치 Aicure SPOT TYPE ANUP5204 (광파이버 출광면에 있어서의 출력 28000W/m²) 에 파장 385nm 이하 UV 광 컷 필터를 조합하여 사용하였다. 조사 섬유 끝과 UV 컷 필터 사이에 틈이 없이, 필터와 샘플 표면 사이에 틈이 없이 24 시간 조사하였다. 또한, 조사면에 조사된 광의 조도를 우시오 전기사 제조 436nm 수광 소자 조도계 UVD-436PD (감도 파장역 360nm ~ 500nm) 로 측정된 결과, 4500W/m² 였다.

[0644] 또한, 샘플 수광면의 조도 측정에 이용하는 조도계는, JISZ8103 「표준기 또는 계측기가 보다 고위의 측정 표준에 의해 차례대로 교정되어, 국가 표준·국제 표준으로 연결되는 경로가 확립되어 있는 것」에 기초하여, 국가 표준·국제 표준에 기초하여 조도값이 매겨진 표준 광원에 의해 교정받은 것, 또는 동일 표준 광원으로부터의 값을 옮긴 참조용 광원이나 조도계에 의해 간접적으로 교정받은 것이야 한다. 또한, 열화의 검출법은 육안에 의해 분명한 경우에는 육안에 의한 상대효과를 이용할 수 있지만, 평가 결과가 근접해 있는 경우에는 상보적으로 투과율계·현미 분광 장치에 의한 투과율이나 황색도 (YI 값) 의 측정, 헤이즈미터에 의한 탁도의 측정, 색차계에 의한 색도의 수치화 등의 수단을 이용함으로써 변화의 유무를 수치화하여 구할 수 있다. 이들 측정 수단을 이용하는 경우에는, 샘플에 대한 자외광 조사 면적을 고려하여, 스폿 조사와 같이 조사 면적이 미소한 경우에는 조사 면적에 대응하는 미소 면적에서 측정할 수 있는 기기를 선정한다.

[0645] [I-7. 밀착성 평가 방법]

[0646] (1) 실시예 및 비교예의 반도체 발광 디바이스용 부재의 경화 전의 가수 분해·중축합액 (반도체 발광 디바이스용 부재 형성액) 을 직경 9mm, 옴목부의 깊이 1mm 의 Ag 도금 표면의 구리제 컵에 적하하고, 소정의 경화 조건으로 경화시켜 측정용 샘플 (반도체 발광 디바이스용 부재) 을 제작하였다.

[0647] (2) 두께 1mm, 세로 25mm, 가로 70mm 의 알루미늄판에 방열용 실리콘 그리스를 얇게 도포하여, 얻어진 측정용 샘플을 늘어놓아 온도 85℃, 습도 85% 의 분위기 (이하 적절히 「흡습 환경」이라고 한다) 하에서 1 시간 흡습시켰다.

[0648] (3) 흡습시킨 측정용 샘플을, 상기 (2) 의 흡습 환경하로부터 꺼내어, 실온 (20 ~ 25℃) 까지 냉각시켰다. 260℃ 로 설정한 핫 플레이트 상에, 흡습시키고 냉각시킨 측정용 샘플을 알루미늄판마다 탑재하여, 1 분간 유지하였다. 이 조건에 있어서, 측정용 샘플 실온은 약 50 초에서 260℃ 에 달하고, 그 후 10 초간 260℃ 로 유지하였다.

[0649] (4) 가열 후의 샘플을 알루미늄판마다 스테인리스제, 실온의 냉각판 상에 두어, 실온까지 냉각시켰다. 육안 및 현미경 관찰에 의해, 측정용 샘플의 상기 구리제 컵으로부터의 박리의 유무를 관찰하였다. 약간이라도 박리가 관찰되는 것은 「박리 있음」이라고 한다.

[0650] (5) 측정용 샘플 10 개에 대하여, 각각, 상기 (2), (3) 및 (4) 의 조작을 실시하여, 상기 측정용 샘플의 박리율을 구하였다. 또한, 박리율은 「박리한 측정용 샘플의 개수/전체 측정 샘플수」에 의해 산출되는 비율이다.

[0651] [I-8. 휘도 향상률 시험]

[0652] 실시예 및 비교예에서 얻어진 봉지제액을 이용하여 반도체 발광 디바이스를 제작하였다. 이 때, LED 칩으로서, 발광층으로서 발광 피크 파장이 405nm 및 460nm 인 페이스 업형 GaN 계 반도체를 갖는 것을 이용하여, 각 LED 칩마다 별개의 반도체 발광 디바이스를 제작하였다. 이들 반도체 발광 디바이스에 구동 전류 20mA 를 통전시켜 봉지 전후의 휘도와 비교하여, 하기 식에 따라 휘도 향상률을 산출하였다.

- [0653] 휘도 향상률 = (봉지 후 휘도/봉지 전 휘도)×100 (%)
- [0654] 또한, 반도체 발광 디바이스는 이하와 같이 하여 준비하였다. 즉, 우선, LED 광원으로서는 도 50 에 나타내듯이, 컵 (101) 과 LED 칩 (102) 으로 이루어지는 표면 실장형의 LED 소자 (103) 를 제작하였다. 컵 (101) 은 폴리프탈아미드에 의해 형성된 것으로서, 그 저부에는 도시하지 않는 전극이 형성되어 있다. 또한, 다이 본드제로서 에폭시 수지를 이용하여, LED 칩 (102) 을 컵 (101) 내의 전극 표면에 다이 본딩 기기 (Westbond 사 제조 「매뉴얼 다이 본더」) 로 다이 본드하였다. 또한, LED 칩 (102) 의 상부에는 전극 (도시하지 않음) 이 형성되어 있고, 이 전극과 컵 (101) 의 전극을 일본 아비오닉스사 제조 와이어 본더 「MB-2200」 을 이용하여 금선으로 와이어 본딩하여, 전기적 도통을 취하였다. 다음에, 실시예 및 비교예에서 준비한 가수 분해·중축합액을, 마이크로피펫을 이용하여 컵 (101) 내에 컵 상연과 동등한 높이가 되도록 적하하였다. 이어서, 소정의 온도 조건에서 봉지제액을 경화시켜, 투명 봉지층 (반도체 발광 디바이스용 부재) 을 구비한 반도체 발광 디바이스를 제작하였다.
- [0655] [I-9. 부가형 촉매 함유율 측정 시험]
- [0656] 반도체 발광 디바이스용 부재를 제작하고, 이것을 샘플로 하여, 규소 이외의 특정 금속 함유율의 측정법에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 합계 함유율을 측정하였다.
- [0657] [II. 반도체 발광 디바이스용 부재의 제조]
- [0658] [실시예 1]
- [0659] 페닐트리메톡시실란 6.7g, 디메틸디메톡시실란 2.0g, 물 1.5g, 굴절률 조정제로서 입자경이 5nm 인 실리카지르코니아 코팅 부착 티타니아졸 (고형분 20 중량% 의 메탄올 분산액) 28.0g, 촉매로서 5% 아세틸아세톤알루미늄염 메탄올 용액 1.80g 을 밀폐 가능한 용기에 넣어 혼합하고, 밀봉하여 스티어러로 교반하면서 50℃ 의 온수 배스에서 8 시간 가열한 후에 실온으로 되돌려, 가수 분해·중축합액을 조액하였다. 이 액의 가수 분해율은 120% 이다.
- [0660] 또한, 상기 서술한 가수 분해·중축합액 4.1ml 를 직경 5cm 의 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 방폭로 중, 미풍하, 40℃ 에서 4 시간 유지하고, 이어서 40℃ 에서 65℃ 까지 3 시간에 걸쳐 승온시켜 제 1 건조를 실시한 후, 150℃ 에서 3 시간 유지하여 제 2 건조를 실시한 결과, 두께 약 0.5mm 의 독립적인 원형 반투명 유리막을 얻었다. 이 샘플을 이용하여 상기 서술한 투과율의 측정, 내열 시험 및 자외내광 시험을 실시하였다. 또한, 이 샘플을 막자사발을 이용하여 분쇄하고, 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률의 측정 및 특정 금속 원소 함유율의 측정을 실시하였다. 또한, 원형 반투명 유리막을 제조하는 과정에서 얻은 가수 분해·중축합액을 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 연속 점등 시험에 의해 500 시간 경과 후의 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2 에 나타낸다.
- [0661] [실시예 2]
- [0662] 토시바 실리콘사 제조 양 말단 실라놀디메틸실리콘 오일 XC96-723 을 50.0g, 페닐트리메톡시실란 5.0g, 촉매로서 지르코늄테트라-n-프로폭시드 용액 (지르코늄테트라-n-프로폭시드의 75 중량% n-프로판올 용액 5 중량부를 톨루엔 95 중량부로 희석한 것) 11.0g 을 교반 날개와 콘덴서를 장착한 3 구 콜벤 중에 계량하여, 실온에서 대기압하 15 분 교반하고, 초기 가수 분해를 실시한 후에 약 50℃ 에서 8 시간 교반하면서 가열하였다. 이 후 반응액을 실온까지 냉각시켜, 가지형 플라스크로 옮기고, 증발기를 이용하여 50℃, 1mPa 에서 30 분간 용매 및 반응에 의해 생긴 알코올이나 수분, 저비 규소 성분을 증류 제거하여, 무용제의 봉지제액을 얻었다. 카프릴산에 의해 소수화 표면 처리된 지르코니아 입자 분말 (ZrO₂ 함유율 73 중량%, 용매 분산시의 평균 입자경 4nm) 1.0g 을 50ml 의 냉각관을 구비한 가지형 플라스크에 칭량하고, 10g 의 톨루엔을 첨가하여 완전히 용해시켜 투명액으로 하였다. 또한, 0.1g 의 디페닐디메톡시실란 (아즈막스) 을 첨가하고 질소 분위기하, 90℃ 에서 3 시간 가열 교반하였다. 일단, 용액을 냉각 후, 진술한 봉지제액을 3.9g 첨가하자 백탁되었지만, 곧바로 투명하게 용해되었다. 이 용액을 다시 질소 분위기하, 90℃, 3h 가열 교반하였다. 그 후, 50℃ 에서 용매를 감압증류 제거하여, 유기 무기 하이브리드 봉지제를 제작하였다. 이 액 2g 을 직경 5cm 의 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 방폭로 중, 미풍하, 110℃ 에서 1 시간, 계속해서 150℃ 에서 3 시간 유지한 결과, 두께 약 1mm 의 독립적인 원형 투명 엘라스토머형 막이 얻어졌다.
- [0663] 이 샘플을 이용하여 상기 서술한 투과율의 측정, 내열 시험 및 자외내광 시험을 실시하였다. 또한, 이 샘플

을 막자사발을 이용하여 분쇄하고, 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률의 측정 및 특정 금속 원소 함유율의 측정을 실시하였다. 또한, 원형 반투명 유리막을 제조하는 과정에서 얻은 가수 분해·중축합액을 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2에 나타낸다.

[0664] [실시에 3]

[0665] GE 토시바 실리콘 제조 양 말단 실라놀디메틸실리콘 오일 XC96-723 을 70g, 양 말단 실라놀메틸페닐실리콘 오일 YF3804 를 70g, 페닐트리메톡시실란을 14g, 및 촉매로서 지르코늄테트라아세틸아세토네이트 분말을 0.308g 준비하고, 이것을 교반날개와 콘덴서를 장착한 3 구 콜벤 중에 계량하여, 실온에서 15 분 촉매가 충분히 용해될 때까지 교반하였다. 이후, 반응액을 120 도까지 승온시켜, 120 도 전체 환류하에서 2 시간 교반하면서 초기 가수 분해를 실시하였다.

[0666] 계속해서 질소를 SV20 로 불어넣어 생성 메탄올 및 수분, 부생물의 저비 규소 성분을 증류 제거하면서 120℃ 에서 교반하고, 다시 6 시간 중합 반응을 진행시켰다.

[0667] 질소 불어넣기를 정지하고 반응액을 일단 실온까지 냉각시킨 후, 가지형 플라스크에 반응액을 옮기고, 로터리 증발기를 이용하여 오일 베스 상 120℃, 1kPa 로 20 분간 미량으로 잔류하고 있는 메탄올 및 수분, 저비 규소 성분을 증류 제거하여, 무용제의 봉지제액을 얻었다.

[0668] 상기 서술한 봉지제액 2g 을 직경 5cm 의 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 방폭로 중, 미풍하, 110℃ 에서 1 시간 유지하고, 이어서 150℃ 에서 3 시간 유지한 결과, 두께 약 1mm 의 독립적인 원형 투명 엘라스토머형 막이 얻어졌다.

[0669] 이 샘플을 이용하여 상기 서술한 투과율의 측정, 내열 시험 및 자외내광 시험을 실시하였다. 또한, 이 샘플을 막자사발을 이용하여 분쇄하고, 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률의 측정 및 특정 금속 원소 함유율의 측정을 실시하였다. 또한, 원형 반투명 유리막을 제조하는 과정에서 얻은 가수 분해·중축합액을 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2에 나타낸다.

[0670] [비교예 1]

[0671] 메틸실리케이트 (미즈비시 화학사 제조 MKC 실리케이트 MS51) 30.80g, 메탄올 56.53g, 물 6.51g, 굴절률 조정제로서 입자경이 5nm 인 실리카지르코니아 코팅 부착 티타니아졸 (고형분 20 중량% 의 메탄올 분산액) 19.6g, 촉매로서 5% 아세틸아세톤알루미늄염메탄올 용액 6.16g 을, 밀폐 가능한 용기에서 혼합하고, 밀봉하여 스티어러로 교반하면서 50 도의 온수 베스에서 8 시간 가열한 후 실온으로 되돌려, 가수 분해·중축합액을 조액하였다. 이 액의 가수 분해율은 113% 이다.

[0672] 상기 서술한 가수 분해·중축합액 10ml 를 직경 5cm 의 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 실시예 1 과 동일한 조건으로 건조시킨 결과, 두께 약 0.3mm 의 유리막이 얻어졌지만, 건조 도중의 단계에서 대량의 크랙이 발생하여 가루가 되어, 독립적인 원형 투명 유리막으로서 꺼낼 수는 없었다. 또한, 이것을 이용하여 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률의 측정 및 특정 금속 원소 함유율의 측정을 실시하였다. 또한, 원형 반투명 유리막을 제조하는 과정에서 얻은 가수 분해·중축합액을 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2 에 나타낸다.

[0673] [비교예 2]

[0674] 반도체 발광 디바이스용 몰드제로서 사용되고 있는 시판 중인 실리콘 수지 (토레 다우코닝사 제조 JCR6101UP) 를 테플론 (등록 상표) 판 상에 어플리케이터 도공하고, 25℃ 에서 1 시간, 진공 탈기를 행한 후, 150℃ 에서 2 시간 가열하여 경화시킨 후, 이것을 벗겨 두께 1.0mm 의 엘라스토머형 막을 얻었다. 이 막을 이용하여 자외내광성 시험, 내열 시험 및 투과율의 측정에 제공하였다. 또한, 상기 서술한 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률 측정, 특정 금속 원소 함유율의 측정은, 이 샘플을 프리저 밀을 이용하여 분쇄한 것을 이용하여 행하였다. 또한, 상기의 실리콘 수지를 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt

및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2 에 나타낸다.

[0675] [비교예 3]

[0676] 반도체 발광 디바이스용 몰드제로서 사용되고 있는 시판 중인 2 액 경화형 방향족 에폭시 수지를 직경 5cm 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 25℃ 에서 1 시간, 진공 탈기를 행한 후, 120℃ 에서 4 시간 가열하여 경화시킨 결과, 두께 1.0mm 의 푸르스름한 원형 투명 수지막이 독립막으로서 얻어졌다. 이 막을 이용하여 자외내광성 시험, 내열 시험 및 투과도의 측정에 제공하였다. 또한, 상기 서술한 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률의 측정, 특정 금속 원소 함유율의 측정은, 이 샘플을 프리저 밀을 이용하여 분쇄한 것을 이용하여 행하였다. 또한, 상기의 2 액 경화형 방향족 에폭시 수지를 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2 에 나타낸다.

[0677] [비교예 4]

[0678] 반도체 발광 디바이스용 몰드제로서 사용되고 있는 시판 중인 실리콘 수지 (GE 토시바 실리콘사 제조 IVS5332) 를 직경 5cm 의 테플론 (등록 상표) 살레에 넣고, 25℃ 에서 1 시간, 진공 탈기를 행한 후, 150℃ 에서 1 시간 가열하여 경화시킨 후, 이것을 벗겨 두께 1.0mm 의 엘라스토머형 막을 얻었다. 이 막을 이용하여 자외내광성 시험, 내열 시험 및 투과율의 측정에 제공하였다. 또한, 상기 서술한 고체 Si-NMR 스펙트럼 측정, 굴절률 측정, 특정 금속 원소 함유율의 측정은, 이 샘플을 프리저 밀을 이용하여 분쇄한 것을 이용하여 행하였다. 또한, 상기의 실리콘 수지를 이용하여, 밀착성 평가 방법에 의해 박리율을 측정하고, 또한, 휘도 향상률 시험에 의해 휘도의 향상률을 측정하였다. 또한, 부가형 촉매 함유율 측정 시험에 의해, 샘플 중의 Pt 및 Rh 의 함유율도 측정하였다. 결과를 표 2 에 나타낸다.

[0679] [비교예 5]

[0680] 비교예 2 에서 이용한 실리콘 수지 10g 에 실시예 2 에서 이용한 소수화 표면 처리 지르코니아졸 입자 분말 2g 을 혼합하고, 150℃ 에서 2 시간 경화시킨 결과, 전혀 경화되지 않았다. 실리콘 수지의 경화 촉매인 백금 착물이 산화 지르코늄졸의 표면 처리에 이용하고 있는 카프틸산과 반응하여 활성을 잃고, 경화 촉매로서 기능하지 않았기 때문이라고 생각된다. 일반적으로 고굴절률 금속 산화물 입자를 수지에 분산시키기 위해서는 소수화나 분산성 개량을 위해 유기산이나 계면활성제 등의 배위자를 입자 표면 처리에 이용하는 경우가 많지만, 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재는 이러한 배위자에 의해서도 경화 저해를 받는 일이 없어, 표면 처리 방법을 넓게 선택할 수 있다.

[0681] [정리]

[0682] 하기 표 2 에 나타내듯이, 본 발명의 규정을 만족하는 실시예 1 ~ 3 의 반도체 발광 디바이스용 부재는, 메탈록산 결합에 의한 무기 성분을 주체로 한 구조를 갖고, 내열성, 자외내광성이 우수할 뿐만 아니라, 4 관능 실란만으로 이루어지는 비교예 1 의 반도체 발광 디바이스용 부재보다 크랙이 발생하기 어려워 후막화가 용이하다. 또한 에폭시 수지나 실리콘 수지 등의 종래의 수지와 비교하여 고굴절률 금속 산화물 나노 입자를 용이하게 분산시킬 수 있어, 굴절률 조정이 용이한 점에서 유용한 광취출 재료로서 사용할 수 있다.

표 2

		실시에 1	실시에 2	실시에 3	비교예 1	비교예 2	비교예 3	비교예 4	비교예 5
고체 Si-NMR	0~40ppm	복수개	복수개	복수개	0 개	1 개	0 개	복수개	(※※)
	-40~-80ppm	복수개	복수개	복수개	0 개	0 개	0 개	복수개	(※※)
규소 함유율 (중량 %)		13	30	31	35	38	0	22	(※※)
굴절률		1.63	1.47	1.47	1.52	1.41	1.53	1.53	(※※)
실라놀 함유율 (중량 %)		0.6	0.5	0.6	12	0	0	0	(※※)
규소 이외의 특정 금속 함유율(중량 %)		33	10	0.1	12	0	0	0	(※※)
규소+특정 금속 원소 함유율(중량%)		46	40	31	47	38	0	22	(※※)
부가형 촉매 함유 유무 (Pt, Rh로서 0.1ppm 미만 =○, 0.1ppm 이상 =×)		○	○	○	○	×	○	×	(※※)
투과율 at 400nm (%)		62	89	87	(※)	70	84	71	(※※)
내열성 200℃ 500hr	중량 유지율(%)	95	82	94	(※)	94	80	81	(※※)
	투과율 유지율 at 400nm(%)	93	83	100	(※)	93	0	60	(※※)
내 UV 성 (범 조사)2800mW24hr 385nm 이하 컷 필터 부착 : 육안		변화 없음	변화 없음	변화 없음	(※)	미소백탁	탄화	황변, 크랙 발생	(※※)
밀착성 (리플로우 시험) 메탈 박리율(%)		90	10	0	(※)	20	80	50	(※※)
휘도 향상율 405nm		68	151	152	(※)	131	132	165	(※※)
휘도 향상율 460nm		135	158	162	(※)	145	152	172	(※※)

[0683]

[0684] <실시에 및 비교예의 결과>

[0685] ※ 샘플이 가루가 되었기 때문에 측정 불능이었다.

[0686] ※※ 경화되지 않아, 측정 불능이었다.

산업상 이용가능성

[0687] 본 발명의 반도체 발광 디바이스용 부재의 용도는 특별히 제한되지 않고, 반도체 발광 소자 등을 봉지하기 위한 부재 (봉지재) 로 대표되는 각종 용도에 적합하게 사용할 수 있다.

[0688] 본 발명을 특정 양태를 이용하여 상세하게 설명했지만, 본 발명의 의도와 범위를 이탈하지 않고 여러가지 변경이 가능함은 당업자에게 명백하다.

[0689] 또한 본 출원은, 2005년 9월 22 일자로 출원된 일본 특허출원 (일본 특허출원 2005-276756호), 및 2006년 9월 22 일자로 출원된 일본 특허출원 (일본 특허출원 2006-256973호) 에 기초하고 있으며, 그 전체가 인용에 의해 인용된다.

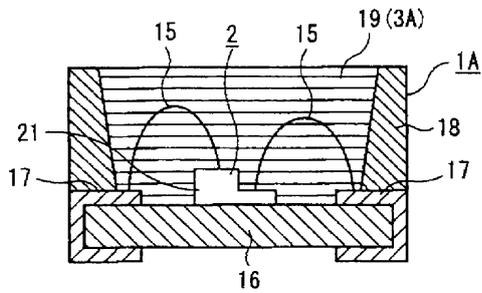
부호의 설명

- [0690] 1, 1A, 1B 발광 장치 (반도체 발광 디바이스)
- 2 발광 소자
- 3A 투명 부재 (반도체 발광 디바이스용 부재)
- 3B 형광체부 (반도체 발광 디바이스용 부재)
- 4a, 4b 발광 소자로부터 방사된 광의 일부
- 5 형광체부에 도포된 발광 이온 특유의 파장의 광
- 11 몰드부
- 12, 13 리드 단자
- 14 미러 (컵부)
- 15 도전 와이어

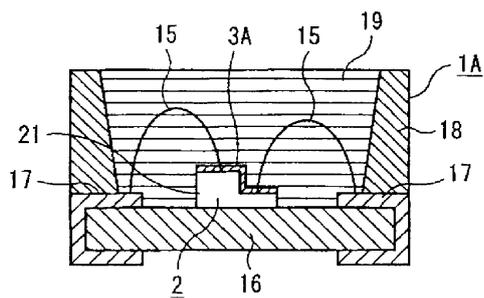
- 16 절연 기판
- 16a 오목 지점
- 17 프린트 배선
- 18 틀재
- 19 봉지부
- 19a 봉지 기능부
- 19b 렌즈 기능부
- 19c 오목부
- 19d 관통공
- 21 발광층부
- 23 반사층
- 24 범프
- 33, 34 형광체부
- 35 고체 매질
- 101 칩
- 102 LED 칩
- 103 LED 소자

도면

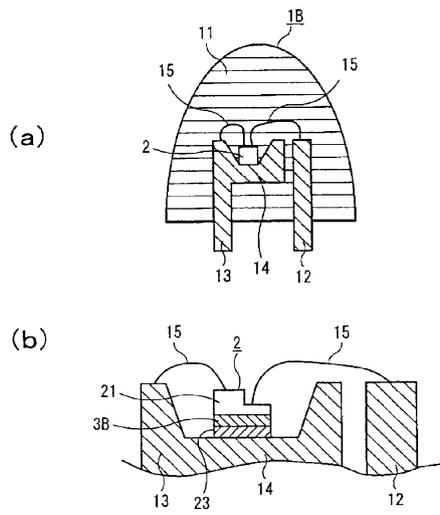
도면1



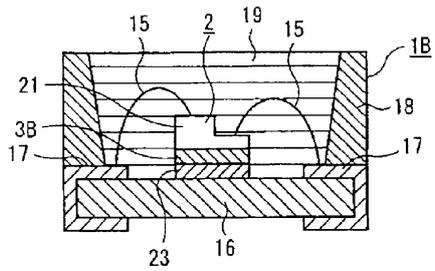
도면2



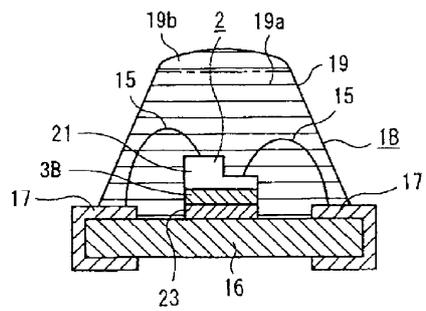
도면3



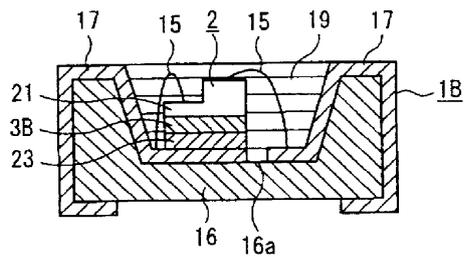
도면4



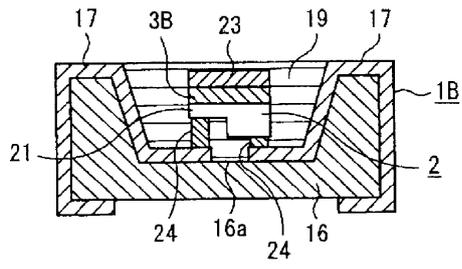
도면5



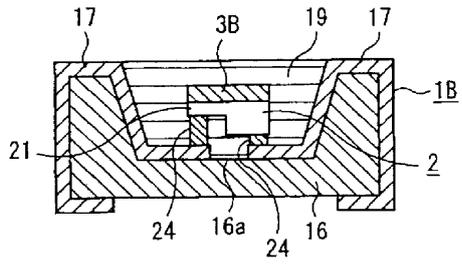
도면6



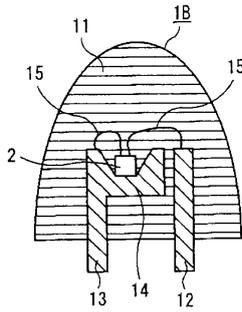
도면7



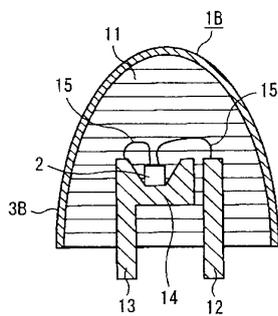
도면8



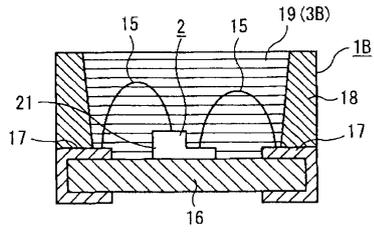
도면9



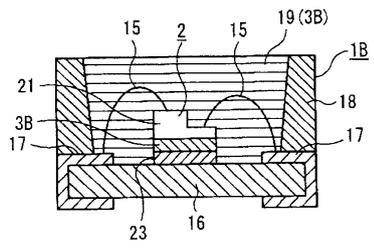
도면10



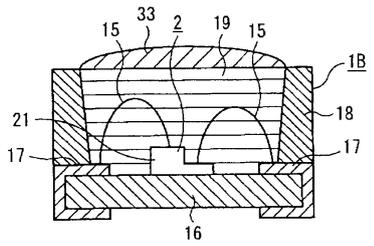
도면11



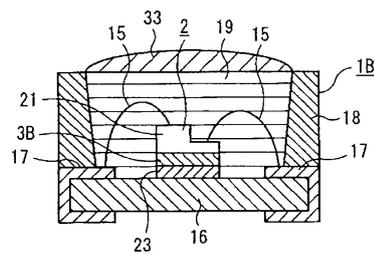
도면12



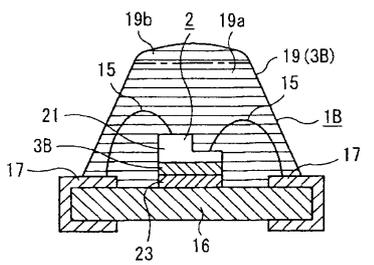
도면13



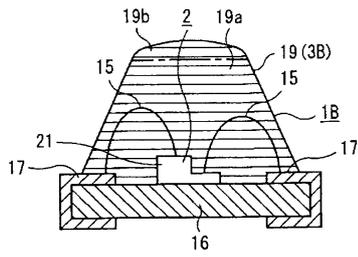
도면14



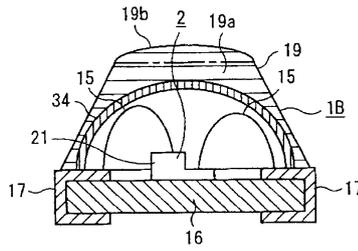
도면15



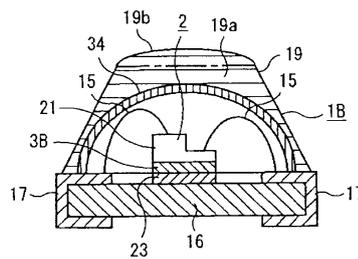
도면16



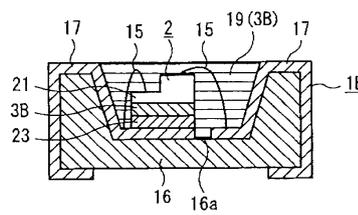
도면17



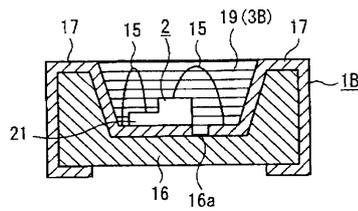
도면18



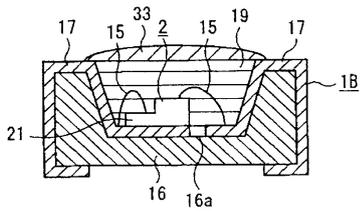
도면19



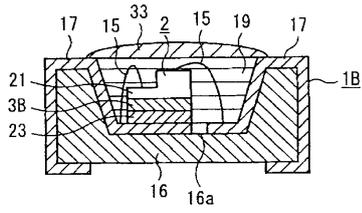
도면20



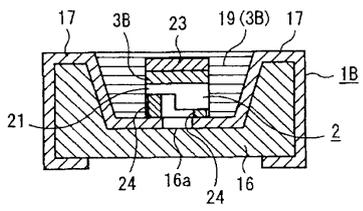
도면21



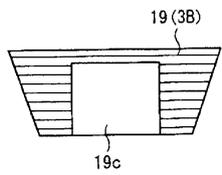
도면22



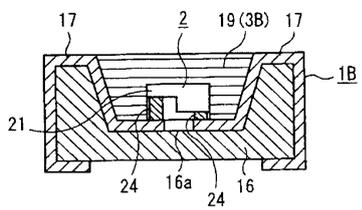
도면23



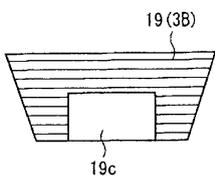
도면24



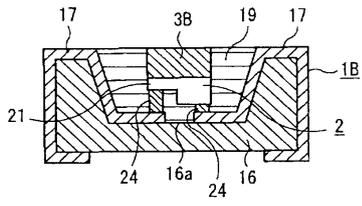
도면25



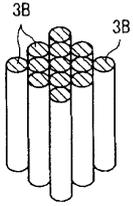
도면26



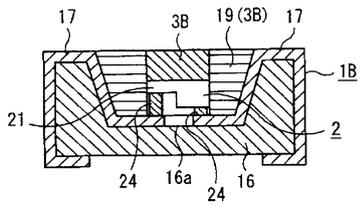
도면27



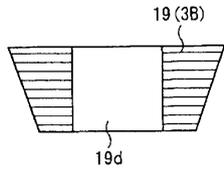
도면28



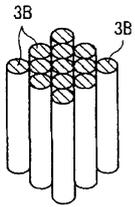
도면29



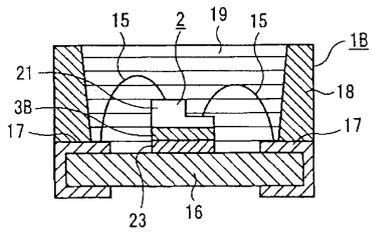
도면30



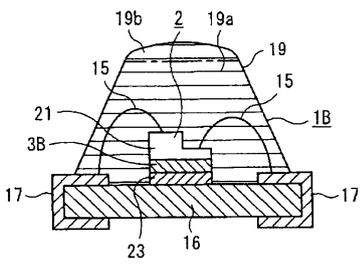
도면31



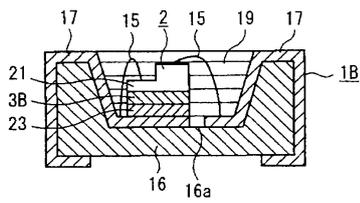
도면32



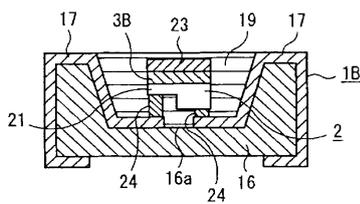
도면33



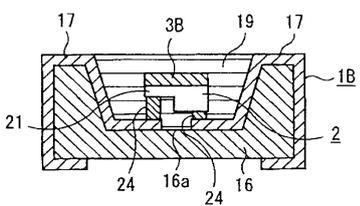
도면34



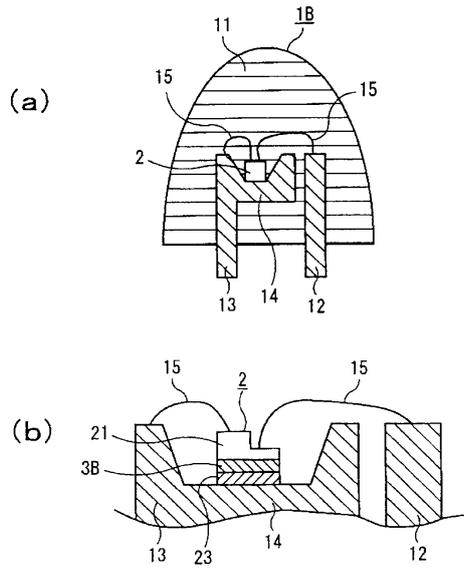
도면35



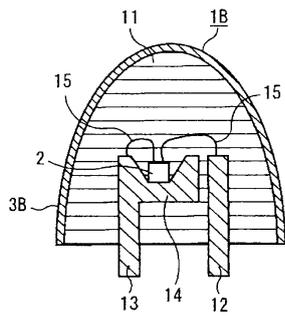
도면36



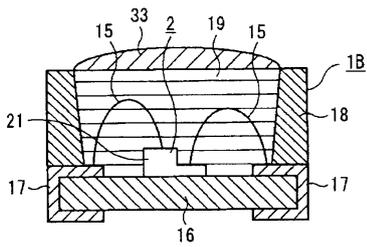
도면37



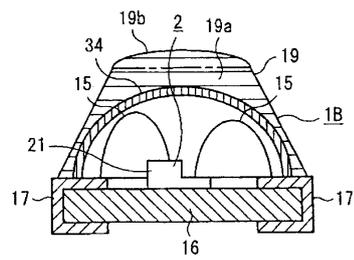
도면38



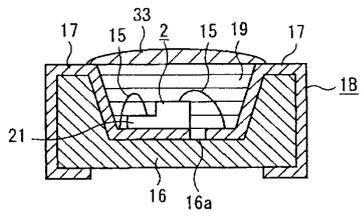
도면39



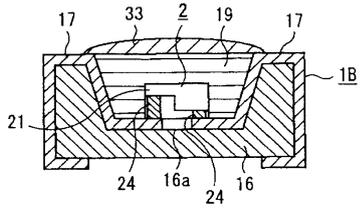
도면40



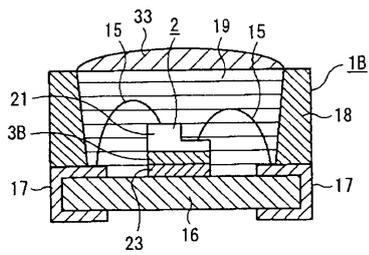
도면41



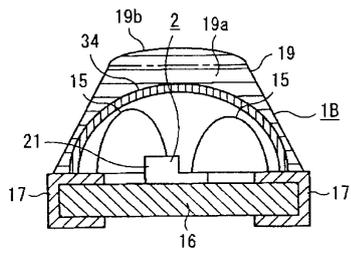
도면42



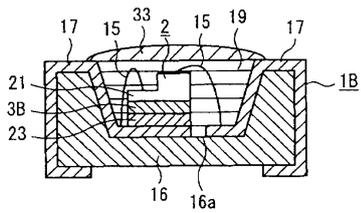
도면43



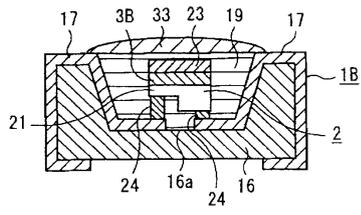
도면44



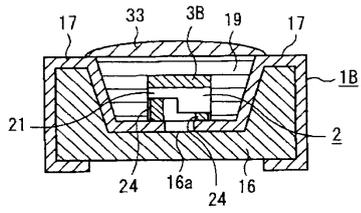
도면45



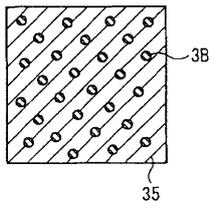
도면46



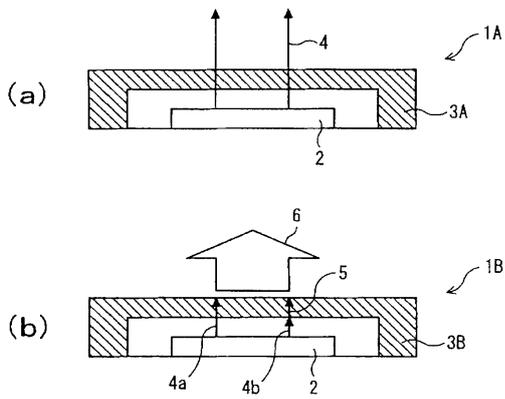
도면47



도면48



도면49



도면50

