



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 101389695 B

(45) 授权公告日 2012. 07. 04

(21) 申请号 200780006355. X

(22) 申请日 2007. 02. 01

(30) 优先权数据

60/776, 575 2006. 02. 24 US

(85) PCT申请进入国家阶段日

2008. 08. 22

(86) PCT申请的申请数据

PCT/US2007/002966 2007. 02. 01

(87) PCT申请的公布数据

W02007/100445 EN 2007. 09. 07

(73) 专利权人 陶氏康宁公司

地址 美国密执安

专利权人 陶氏康宁东丽株式会社

(72) 发明人 T·陈 B·哈克尼斯 江南博司

加藤智子 森田好次 村上正志

寺田匡庆 吉武诚 M·卡明斯

A·W·诺里斯 M·豪厄尔

(74) 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专

利商标事务所 11038

代理人 张钦

(51) Int. Cl.

C08G 77/52(2006. 01)

H01L 33/00(2006. 01)

C08K 5/5425(2006. 01)

C08L 83/07(2006. 01)

C08L 83/04(2006. 01)

(56) 对比文件

CN 1694925 A, 2005. 11. 09, 说明书第

[0040] 段.

WO 2005/033207 A1, 2005. 04. 14, 说明书第

[0001], [0017], [0018], [0045], [0047] 段.

US 2004/0116640 A1, 2004. 06. 17, 说明书第

[0024], [0027], [0028] 段.

审查员 翟燕燕

权利要求书 4 页 说明书 14 页 附图 1 页

(54) 发明名称

用硅氧烷包封的发光器件和用于制备该硅氧烷的可固化的硅氧烷组合物

(57) 摘要

一种组合物,包含:(I) 链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷,或其组合;(II) 具有特定分子量的氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,具有特定分子量的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,或其组合;和(III) 氢化硅烷化催化剂。通过施加组合物到光源上,接着固化,制备发光器件。组合物提供具有适合于用作发光器件的包封剂的机械性能的固化材料。

1. 通过混合包括下述的组分制备的组合物：

(I) 平均组成式为  $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$  的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷，其中  $R^1$  是具有 2-12 个碳原子的链烯基，每一  $R^2$  独立地为甲基或苯基，至少 30mol% 的  $R^2$  是苯基，a 和 b 是使得满足下式的正数： $a+b = 1-2.2$  和  $a/(a+b) = 0.001-0.05$ ；

(II) 分子式为  $HR^3_2 SiO(SiPh_2O)_x SiR^3_2 H$  的氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷，其中 Ph 表示苯基，每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基，x 是 2-8 的整数，和 x 的平均值为 2-4；和

(III) 氢化硅烷化催化剂。

2. 权利要求 1 的组合物，其中组分 (I) 选自：

$ViMe_2SiO(SiMePhO)_n SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiPh_2O)_n SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m SiMe_2Vi$ ，  
 $HexMe_2SiO(SiMePhO)_n SiMe_2Hex$ ，  
 $HexMe_2SiO(SiPh_2O)_n SiMe_2Hex$ ，  
 $HexMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m SiMe_2Hex$ ，  
 $HexMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m SiMe_2Hex$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMePhO)_n SiMePhVi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiPh_2O)_n SiMePhVi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m SiMePhVi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m SiMePhVi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiMePhO)_n (SiMeViO)_m SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m (SiMeViO)_1 SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m (SiMeViO)_1 SiMe_2Vi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMePhO)_n (SiMeViO)_m SiMePhVi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m (SiMeViO)_1 SiMePhVi$ ，  
 $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m (SiMeViO)_1 SiMePhVi$ ，  
 $Me_3SiO(SiMePhO)_n (SiMeViO)_m SiMe_3$ ，  
 $Me_3SiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m (SiMeViO)_1 SiMe_3$ ，  
 $Me_3SiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m (SiMeViO)_1 SiMe_3$ ，  
 $Me_3SiO(SiMePhO)_n (SiMeHexO)_m SiMe_3$ ，  
 $Me_3SiO(SiMe_2O)_n (SiMePhO)_m (SiMeHexO)_1 SiMe_3$ ，  
 $Me_3SiO(SiMe_2O)_n (SiPh_2O)_m (SiMeHexO)_1 SiMe_3$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (PhSiO_{3/2})_q$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (Me_2SiO_{2/2})_q (PhSiO_{3/2})_r$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (MePhSiO_{2/2})_q (PhSiO_{3/2})_r$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (Ph_2SiO_{2/2})_q (PhSiO_{3/2})_r$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (MeSiO_{3/2})_q (PhSiO_{3/2})_r$ ，  
 $(ViMe_2SiO_{1/2})_p (PhSiO_{3/2})_q (SiO_{4/2})_r$ ，

$(\text{HexMePhSiO}_{1/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{MePhSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{MeSiO}_{3/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q (\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  
 $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  
 $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p (\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p (\text{MePhSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p (\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p (\text{MeSiO}_{3/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p (\text{MeViSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p (\text{ViSiO}_{3/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p (\text{MeViSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{MePhSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{MeSiO}_{3/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q (\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p (\text{MePhSiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p (\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p (\text{MeSiO}_{3/2})_q (\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  
 $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p (\text{PhSiO}_{3/2})_q (\text{SiO}_{4/2})_r$ ,

或其组合,其中 n、m、l 是指每一单体单元的平均数,且为小于 200 的正数;p、q 和 r 是指每一单体单元的平均摩尔百分数。

3. 权利要求 1 的组合物,其中基于组合物的重量,组合物含有 0.1-35% 的支化的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷。

4. 权利要求 1 的组合物,其中组分 (II) 选自

$\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMe}_2\text{H}$ 、 $\text{HMePhSiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMePhH}$ 、或其组合。

5. 通过混合包括下述的组分制备的组合物:

(I) 平均组成式为  $\text{H}_a\text{R}^2_b\text{SiO}_{(4-a-b)/2}$  的 Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷,其中每一  $\text{R}^2$  独立地为甲基或苯基,至少 30mol% 的  $\text{R}^2$  是苯基, a 和 b 是使得满足下式的正数:  $a+b = 1-2.2$  和  $a/(a+b) = 0.001-0.05$ ;

(II) 分子式为  $\text{R}^1\text{R}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{R}^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,其中 Ph 表示苯基,每一  $\text{R}^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基,每一  $\text{R}^3$  独立地为甲基或苯基, x 是 2-8 的整数,和 x 的平均值为 2-4;和

(III) 氢化硅烷化催化剂。

6. 权利要求 1-5 任何一项的组合物,进一步包含选自 (IV) 共交联剂, (V) 粘合促进剂, (VI) 填料, (VII) 处理剂, (VIII) 光学活性剂, (IX) 固化改性剂, (X) 流变改性剂, 及其组合的组分。

7. 通过固化权利要求 1-5 任何一项的组合物制备的硅氧烷产品。

8. 一种器件,它包括:

i) 半导体芯片,

ii) 引线框,

iii) 粘结半导体芯片到引线框上的线材,和

iv) 在半导体芯片上涂布的权利要求 7 的硅氧烷产品。

9. 权利要求 8 的器件,其中半导体芯片是发光的。

10. 具有 A 部分和 B 部分的多部分组合物,其中

A 部分包含:

(I) 平均组成式为  $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$  的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷,其中  $R^1$  是具有 2-12 个碳原子的链烯基,每一  $R^2$  独立地为甲基或苯基,至少 30mol% 的  $R^2$  是苯基, a 和 b 是使得满足下式的正数:

$$a+b = 1-2.2 \text{ 和 } a/(a+b) = 0.001-0.05;$$

(III) 氢化硅烷化催化剂,

任选地 (V) 粘合促进剂,

任选地 (VI) 填料,

任选地 (VII) 处理剂,

任选地 (VIII) 固化改性剂,和

任选地 (IX) 流变改性剂;

B 部分包含:

任选地 (I) 链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷,

(II) 分子式为  $HR^3_2 SiO(SiPh_2O)_x SiR^3_2 H$  的氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,其中 Ph 表示苯基,每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基, x 是 2-8 的整数,和 x 的平均值为 2-4;

任选地 (IV) 共交联剂,

任选地 (V) 粘合促进剂

任选地 (VI) 填料

任选地 (VII) 处理剂

任选地 (VIII) 固化改性剂,和

任选地 (IX) 流变改性剂。

11. 具有 A 部分和 B 部分的多部分组合物,其中

A 部分包含:

(II) 分子式为  $R^1 R^3_2 SiO(SiPh_2O)_x SiR^3_2 R^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,其中 Ph 表示苯基,每一  $R^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基,每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基, x 是 2-8 的整数,和 x 的平均值为 2-4;

(III) 氢化硅烷化催化剂，  
任选地 (V) 粘合促进剂，  
任选地 (VI) 填料，  
任选地 (VII) 处理剂，  
任选地 (VIII) 固化改性剂，和  
任选地 (IX) 流变改性剂；

B 部分包含：

(I) 平均组成式为  $H_aR^2_bSiO_{(4-a-b)/2}$  的 Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷，其中每一  $R^2$  独立地为甲基或苯基，至少 30mol% 的  $R^2$  是苯基，a 和 b 是使得满足下式的正数： $a+b = 1-2.2$  和  $a/(a+b) = 0.001-0.05$ ；

任选地 (II) 分子式为  $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷，其中 Ph 表示苯基，每一  $R^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基，每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基，x 是 2-8 的整数，和 x 的平均值为 2-4；和

任选地 (IV) 共交联剂，  
任选地 (V) 粘合促进剂  
任选地 (VI) 填料  
任选地 (VII) 处理剂  
任选地 (VIII) 固化改性剂，和  
任选地 (IX) 流变改性剂。

12. 权利要求 10 或 11 的组合物，其中 A 部分与 B 部分以 0.05 : 1 到 20 : 1 的 A 部分与 B 部分的重量比混合在一起。

## 用硅氧烷包封的发光器件和用于制备该硅氧烷的可固化的硅氧烷组合物

### 相关申请的交叉参考

[0001] 根据 35U. S. C. § 119(e), 本申请要求 2006 年 2 月 24 日提交的美国临时专利申请 No. 60/776575 和 2006 年 1 月 17 日提交的美国临时专利申请 No. 60/759501 的权益。美国临时专利申请 No. 60/776575 和美国临时专利申请 No. 60/759501 在此通过参考引入。

### 技术领域

[0002] 本发明涉及可固化的硅氧烷组合物和用通过固化这些组合物制备的硅氧烷产品包封的发光器件。更特别地, 本发明涉及可氢化硅烷化固化的组合物, 该组合物将固化形成具有光学透明度、高折射指数、抗高温和高机械强度的硅氧烷产品。本发明进一步涉及用该硅氧烷产品包封的可靠的发光器件。

### 背景技术

[0003] 得到光学透明的硅氧烷产品的可固化的硅氧烷组合物因其诸如耐热性和耐光性之类的性能常常用于发光器件中。与常规的材料例如环氧树脂材料(其缺点是在光源产生的热和光的作用下变色)相比, 这种可固化的硅氧烷组合物的优点是可具有高的可靠度。

[0004] 然而, 光学透明的硅氧烷产品的机械和粘合性能可能不如环氧树脂和填充的硅氧烷。这些可引起硅氧烷产品开裂和脱层, 从而导致光输出的下降。解决这一问题所提出的一种方法是使用与硅氧烷产品相容的有机硅树脂作为增韧剂。另一方法是掺入有机聚合物组分或官能团到硅氧烷聚合物结构内, 然而, 硅氧烷的这种改性对于耐热性和耐光性来说可能不合适。

[0005] 本发明涉及通过混合包括下述的组分制备的组合物:(I) 链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, 或其组合;(II) 具有特定分子量的氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷, 具有特定分子量的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷, 或其组合;和 (III) 氢化硅烷化催化剂。组分 (I) 和 (II) 中的至少一种含有链烯基。组分 (I) 和 (II) 中的至少一种含有与硅键合的氢原子。

[0006] 本发明进一步涉及用通过固化可固化的硅氧烷组合物制备的硅氧烷产品包封或涂布的发光器件。

### 发明详述

[0007] 所有用量、比值和百分数以重量计, 除非另有说明。以下是此处所使用的定义的列举。

### 术语的定义和使用

[0008] “发光器件”是指用于发光的器件。发光器件包括发光二极管(LED), 其中用透光

的硅氧烷产品包封作为发光元件在基材上安装的半导体芯片。这种包封有助于保护避免机械振动和灰尘或湿气的侵入。与此同时,它还起到沿着光程改进指数匹配和支持光信号通过其本体传播且没有显著反射或衰减信号的作用。该介质可以是透明的或者含有磷光体或其他添加剂以改性透明度。发光器件还包括其中使用其他发光源例如荧光灯的器件或体系结构。

[0009] “脱层”是指硅氧烷产品从发光器件内的发光元件或其他材料上剥离的倾向。

[0010] “开裂”是指在发光器件内包封剂显示出变形或龟裂或这二者的倾向。

[0011] 缩写“Me”是指甲基。

[0012] 缩写“Ph”是指苯基。

[0013] 缩写“Vi”是指乙烯基。

[0014] 缩写“Hex”是指己烯基。

[0015] “Pa·s”是指帕·秒。

[0016] 缩写“ppm”是指百万分之几份。

### 组分 (I)

[0017] 组分 (I) 可包括平均组成式为  $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$  的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷。链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷可具有直链、支链、环状或树脂状硅氧烷结构。链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷可以是单一组分或含大于一种链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷的组合。组分 (I) 可包括支化的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷和直链的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷。基于组合物的重量,支化的链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷的相对量范围可以是 0.01-35%,或者 1-15%。每一  $R^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基。链烯基例举但不限于乙烯基、烯丙基、丁烯基和己烯基。在链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷内的链烯基可以位于单价、二价和三价硅氧烷单元内。每一  $R^2$  独立地甲基或苯基。至少 30mol% 至 90mol% 的  $R^2$  可以是苯基。在不希望束缚于理论的情况下,认为选择苯基的含量,以便改进组分 (I) 和 (II) 的相容性。组分 (I) 内的甲基和苯基可位于单价、二价和三价硅氧烷单元内。在该式中,  $a$  和  $b$  是满足下述等式的正数:  $a+b = 1-2.2$  和  $a/(a+b) = 0.001-0.05$ 。组分 (I) 可包括诸如下述的聚有机基硅氧烷:  $ViMe_2SiO(SiMePhO)_nSiMe_2Vi$ ,  $ViMe_2SiO(SiPh_2O)_nSiMe_2Vi$ ,  $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_mSiMe_2Vi$ ,  $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_mSiMe_2Vi$ ,  $HexMe_2SiO(SiMePhO)_nSiMe_2Hex$ ,  $HexMe_2SiO(SiPh_2O)_nSiMe_2Hex$ ,  $HexMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_mSiMe_2Hex$ ,  $HexMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_mSiMe_2Hex$ ,  $ViMePhSiO(SiMePhO)_nSiMePhVi$ ,  $ViMePhSiO(SiPh_2O)_nSiMePhVi$ ,  $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_mSiMePhVi$ ,  $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_mSiMePhVi$ ,  $ViMe_2SiO(SiMePhO)_n(SiMeViO)_mSiMe_2Vi$ ,  $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_m(SiMeViO)_1SiMe_2Vi$ ,  $ViMe_2SiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_m(SiMeViO)_1SiMe_2Vi$ ,  $ViMePhSiO(SiMePhO)_n(SiMeViO)_mSiMePhVi$ ,  $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_m(SiMeViO)_1SiMePhVi$ ,  $ViMePhSiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_m(SiMeViO)_1SiMePhVi$ ,  $Me_3SiO(SiMePhO)_n(SiMeViO)_mSiMe_3$ ,  $Me_3SiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_m(SiMeViO)_1SiMe_3$ ,  $Me_3SiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_m(SiMeViO)_1SiMe_3$ ,  $Me_3SiO(SiMePhO)_n(SiMeHexO)_mSiMe_3$ ,  $Me_3SiO(SiMe_2O)_n(SiMePhO)_m(SiMeHexO)_1SiMe_3$ ,  $Me_3SiO(SiMe_2O)_n(SiPh_2O)_m(SiMeHexO)_1SiMe_3$ ,  $(ViMe_2SiO_{1/2})_p(PhSiO_{3/2})_q$ ,  $(ViMe_2SiO_{1/2})_p(Me_2SiO_{2/2})_q$

$(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{HexMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeViSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{ViSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeViSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{ViMeSiO}_{2/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HexMeSiO}_{2/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ , 或其组合。在该式中,  $n$ 、 $m$ 、 $l$  是指在聚合物内每一单体单元的平均数, 是小于 200 的正数, 和  $p$ 、 $q$ 、 $r$  和  $s$  是指在总的平均组成内每一单体单元的平均摩尔百分数。

**[0018]** 或者, 组分 (I) 可包括平均组成式为  $\text{H}_a\text{R}^b\text{SiO}_{(4-a-b)/2}$  的 Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, 其中  $\text{R}^2$ 、 $a$  和  $b$  如上所定义。Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷可具有直链、支链或环状硅氧烷结构。Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷可以是单一组分或含大于一种 SiH 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷的组合。组分 (I) 可包括诸如下述的聚有机基硅氧烷:  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_n\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_n\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMePhO})_n\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_n\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMePhH}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMePhH}$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_3$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_3$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_3$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_3$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_3$ ,  $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_1\text{SiMe}_3$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{HPh}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{HMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeHSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{HSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeHSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p$

$(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{HSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{HMeSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{HMeSiO}_{2/2})_q(\text{MeSiO}_{3/2})_r$ ,  $(\text{HMeSiO}_{2/2})_p(\text{HMeSiO}_{2/2})_q(\text{MeSiO}_{3/2})_r(\text{PhSiO}_{3/2})_s$ , 或其组合。在该式中,  $n$ 、 $m$ 、 $l$ 、 $p$ 、 $q$ 、 $r$  和  $s$  如上所述。

[0019] 制备适合于用作组分 (I) 的直链、支链和环状聚有机基硅氧烷的方法, 例如水解有机基卤代硅烷或有机基烷氧基硅烷和接着进行缩合或平衡, 是本领域众所周知的。

### 组分 (II) 氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷

[0020] 组分 (II) 可包括分子式为  $\text{HR}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{H}$  的氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷。组分 (II) 可以是单一组分或含大于一种氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷的组合。每一  $\text{R}^3$  独立地为甲基或苯基。在该式中, 每一  $x$  为 2-8 的整数, 和  $x$  的平均值为 2-4。组分 (II) 可包括低聚二苯基硅氧烷, 例如  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMe}_2\text{H}$ ,  $\text{HMePhSiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMePhH}$ , 或其组合, 其中  $x$  如上所述。

[0021] 或者, 组分 (II) 可包括分子式为  $\text{R}^1\text{R}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{R}^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷, 其中  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^3$  和  $x$  如上所述。链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷可以是单一组分或含大于一种链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷的组合。链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷例举:  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMe}_2\text{Vi}$ ,  $\text{ViMePhSiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiMePhVi}$ , 或其组合, 其中  $x$  如上所述。

[0022] 制备适合于用作组分 (II) 的低聚二苯基硅氧烷的方法, 例如水解和缩合二苯基二氯硅烷或二苯基烷氧基硅烷和接着进行封端, 是本领域众所周知的。

### 组分 (III) 氢化硅烷化催化剂

[0023] 组分 (III) 是氢化硅烷化催化剂。基于组合物的重量, 组分 (III) 以 0.1-1000ppm 铂族金属, 或者 1-500ppm, 或者 2-200ppm, 或者 5-150ppm 的用量加入到组合物中。合适的氢化硅烷化催化剂是本领域已知的且可商购。组分 (III) 可包括选自铂、铑、钯、钼、钨或铱金属的铂族金属或其有机金属化合物, 或它们的组合。组分 (III) 例举诸如氯铂酸、六水合氯铂酸、二氯化铂之类的化合物, 和所述化合物与低分子量的有机基聚硅氧烷的络合物, 或微包封在基体或核壳型结构内的铂化合物。铂与低分子量有机基聚硅氧烷的络合物包括 1, 3-二乙烯基-1, 1, 3, 3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物。这些络合物可以微包封在树脂基体内。

[0024] 例如, 美国专利 3159601、3220972、3296291、3419593、3516946、3814730、3989668、4784879、5036117 和 5175325 以及 EP0347895B 中公开了用于组分 (III) 的合适的氢化硅烷化催化剂。

[0025] 除了组分 (I)-(III) 以外, 可将任选的组分加入到该组合物中。合适的任选的组分包括 (IV) 共交联剂, (V) 粘合促进剂, (VI) 填料, (VII) 处理剂, (VIII) 光学活性剂, (IX) 固化改性剂, (X) 流变改性剂, 及其组合。

### 组分 (IV) 共交联剂

[0026] 组分 (IV) 是共交联剂。基于组合物的重量,可将 0.01-50 重量份,或者 0.01-25 重量份和或者 1-5 重量份用量的组分 (IV) 加入到组合物中。组分 (IV) 可包括组分 (II) 以外的平均组成式为  $H_cR^4_dSiO_{(4-c-d)/2}$  的氢甲硅烷基官能的聚有机基硅氧烷。每一  $R^4$  独立地为甲基或苯基。至少 30mol% 的  $R^4$  是苯基。在该式中, a 和 b 是满足下述等式的正数:  $c+d = 1-2.2$ , 和  $c/(c+d) = 0.001-0.05$ 。

### 组分 (V) 粘合促进剂

[0027] 组分 (V) 是粘合促进剂。可基于组合物的重量,将用量为 0.01-50 重量份,或者 0.01-10 重量份,或者 0.01-5 重量份的组分 (V) 加入到组合物中。组分 (V) 可包括 (i) 烷氧基硅烷, (ii) 烷氧基硅烷和羟基官能的聚有机基硅氧烷的组合,或 (iii) 它们的组合,或组分 (V) (i)、(ii) 或 (iii) 与过渡金属螯合物的组合。

[0028] 或者,组分 (V) 可包括不饱和或环氧官能的化合物。合适的环氧官能的化合物是本领域已知的且可商购,参见例如美国专利 Nos. 4087585、5194649、5248715 和 5744507 的第 4-5 栏。组分 (V) 可包括不饱和或环氧官能的烷氧基硅烷。例如,不饱和或环氧官能的烷氧基硅烷可具有式  $R^5_eSi(OR^6)_{(4-e)}$ , 其中 e 为 1、2 或 3, 或者 e 为 1。每一  $R^5$  独立地为单价有机基团,条件是至少一个  $R^5$  是不饱和有机基团或环氧官能的有机基团。针对  $R^5$  的环氧官能的有机基团例举 3- 环氧丙氧丙基和 (环氧基环己基) 乙基。针对  $R^5$  的不饱和有机基团例举 3- 甲基丙烯酰氧基丙基、3- 丙烯酰氧基丙基, 和不饱和单价烃基, 例如乙烯基、烯丙基、己烯基、十一碳烯基。每一  $R^6$  独立地为 1-4 个碳原子或者 1-2 个碳原子的未取代的饱和烃基。 $R^6$  例举甲基、乙基、丙基和丁基。

[0029] 合适的环氧官能的烷氧基硅烷的实例包括 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷、3- 环氧丙氧丙基三乙氧基硅烷、(环氧基环己基) 乙基二甲氧基硅烷、(环氧基环己基) 乙基二乙氧基硅烷及其组合。合适的饱和烷氧基硅烷的实例包括乙烯基三甲氧基硅烷、烯丙基三甲氧基硅烷、烯丙基三乙氧基硅烷、己烯基三甲氧基硅烷、十一碳烯基三甲氧基硅烷、3- 甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷、3- 甲基丙烯酰氧基丙基三乙氧基硅烷、3- 丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷、3- 丙烯酰氧基丙基三乙氧基硅烷、及其组合。

[0030] 组分 (V) 可包括环氧官能的硅氧烷, 例如羟基封端的聚有机基硅氧烷与以上所述的环氧官能的烷氧基硅烷的反应产物, 或者羟基封端的聚有机基硅氧烷与环氧官能的烷氧基硅烷的物理共混物。组分 (V) 可包括环氧官能的烷氧基硅烷和环氧官能的硅氧烷的组合。例如, 组分 (V) 例举: 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷和羟基封端的甲基乙烯基硅氧烷与 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷的反应产物的混合物, 或 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷和羟基封端的甲基乙烯基硅氧烷的混合物, 或 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷和羟基封端的甲基乙烯基 / 二甲氧基硅氧烷共聚物的混合物, 或 3- 环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷和羟基封端的甲基乙烯基 / 甲基苯基硅氧烷共聚物的混合物。当以物理共混物而不是以反应产物形式使用时, 这些组分可单独地在多部分套盒内储存。

[0031] 合适的过渡金属螯合物包括钛酸盐、锆酸盐例如乙酰丙酮化锆、铝螯合物、例如乙酰丙酮化铝、及其组合。过渡金属螯合物及其制备方法是本领域已知的, 参见例如美国专利

No. 5248715、EP 0493791A1 和 EP 0497349B1。

### 组分 (VI) 填料

[0032] 组分 (VI) 是填料。加入到组合物中的组分 (VI) 的用量取决于所选填料的类型和所得光学透明度。基于组合物的重量,可将用量为 0.1-50%,或者 0.1-25%的组分 (VI) 加入到组合物中。合适的填料包括增强填料,例如二氧化硅。合适的增强填料是本领域已知的且可商购,例如以名称 CAB-0-SIL 由 Cabot Corporation of Massachusetts 销售的热解法二氧化硅。

[0033] 传导性填料(即导热、导电或既导热又导电的填料)也可用作组分 (VI)。合适的传导性填料包括金属颗粒、金属氧化物颗粒、及其组合。合适的导热填料例举氮化铝、氧化铝、钛酸钡、氧化铍、氮化硼、金刚石、石墨、氧化镁、金属粒状物(例如铜、金、镍或银)、碳化硅、碳化钨、氧化锌、及其组合。

[0034] 传导性填料是本领域已知的且可商购,参见例如美国专利 No. 6169142(第 4 栏,第 7-33 行)。例如, CB-A20S 和 A1-43-Me 是商购于 Showa-Denko 的不同粒度的氧化铝填料,和 AA-04、AA-2 和 AA18 是可商购于 Sumitomo Chemical Company 的氧化铝填料。银填料可商购于美国 Metalor Technologies U. S. A. Corp. of Attleboro, Mass。氮化硼填料可商购于 Advanced Ceramics Corporation, Cleveland, Ohio, U. S. A.。

[0035] 不具体地限定填料颗粒的形状,但在组合物内填料的负载高时,圆形或球形颗粒可防止粘度增加到非所需的水平。

[0036] 可使用具有不同粒度和不同粒度分布的填料的组合。例如,可希望结合具有较大平均粒度的第一填料与具有较小平均粒度的第二填料,其比例满足最紧密堆积理论分布曲线。这可改进堆积效率并可降低粘度和提高传热。

[0037] 所有或一部分填料可包括间隔剂。间隔剂可包括有机颗粒,例如聚苯乙烯、无机颗粒例如玻璃、或其组合。间隔剂可以导热、导电、或者既导热又导电。间隔剂的粒度可以是 25-250 微米。间隔剂可包括单分散的珠粒。间隔剂的用量取决于各种因素,其中包括颗粒的分布,在放置组合物的过程中施加的压力,和放置温度。

### 组分 (VII) 处理剂

[0038] 填料可任选地用组分 (VII) 处理剂进行表面处理。处理剂和处理方法是本领域已知的,参见例如美国专利 6169142(第 4 栏第 42 行 - 第 5 栏第 2 行)。在结合组分 (VI) 与组合物中的其他组分之前可用处理剂处理组分 (VI),或者可就地处理组分 (VI)。

[0039] 处理剂可以是式为  $R^7_fSi(OR^8)_{(4-f)}$  的烷氧基硅烷,其中 f 为 1、2 或 3;或者 f 为 3。每一  $R^7$  独立地为 1-50 个碳原子的取代或未取代的单价烃基。 $R^7$  例举:烷基,例如己基、辛基、十二烷基、十四烷基、十六烷基和十八烷基;芳基,例如苄基、苯基和苯乙基。 $R^7$  可以是饱和或不饱和、支链或非支链以及未取代的基团。 $R^7$  可以是饱和、未支化和未取代的基团。

[0040] 每一  $R^8$  独立地为 1-4 个碳原子或者 1-2 个碳原子的未取代的饱和烃基。处理剂例举己基三甲氧基硅烷、辛基三乙氧基硅烷、癸基三甲氧基硅烷、十二烷基三甲氧基硅烷、十四烷基三甲氧基硅烷、苯基三甲氧基硅烷、苯乙基三甲氧基硅烷、十八烷基三甲氧基硅烷、十八烷基三乙氧基硅烷、及其组合。

[0041] 烷氧基官能的低聚硅氧烷也可用作处理剂。烷氧基官能的低聚硅氧烷及其制备方法是本领域已知的,参见例如 EP1101167A2。例如,合适的烷氧基官能的低聚硅氧烷包括式  $(R^9O)_gSi(OSiR^{10}_2R^{11})_{4-g}$  的那些。在该式中,  $g$  为 1、2 或 3,或者  $g$  为 3。每一  $R^9$  可独立地为烷基。每一  $R^{10}$  可独立地选自 1-10 个碳原子的饱和及不饱和的单价烃基。每一  $R^{11}$  可以是具有至少 11 个碳原子的饱和或不饱和的单价烃基。

[0042] 可用烷基硫醇例如十八烷基硫醇和其他硫醇,和脂肪酸例如油酸、硬脂酸、钛酸酯、钛酸酯偶联剂、锆酸酯偶联剂、及其组合来处理金属填料。

[0043] 用于氧化铝或钝化氮化铝的处理剂可包括烷氧基甲硅烷基官能的烷基甲基聚硅氧烷(例如,  $R^{12}_hR^{13}_iSi(OR^{14})_{(4-h-i)}$  的部分水解缩合物或其共水解缩合物或混合物),其中可水解基团是硅氮烷、酰氧基或肟基的类似材料。在所有这些中,与 Si 相连的基团,例如在上式中的  $R^{12}$  是长链不饱和单价烃基或单价芳族官能的烃基。每一  $R^{13}$  独立地为单价烃基,和每一  $R^{14}$  独立地为 1-4 个碳原子的单价烃基。在上式中,  $h$  为 1、2 或 3,和  $i$  为 0、1 或 2,条件是  $h+i$  为 1、2 或 3。本领域的技术人员可在没有过度实验的情况下优化特定的处理以辅助填料分散。

#### 组分 (VIII) 光学活性剂

[0044] 组分 (VIII) 是光学活性剂。组分 (VIII) 的实例包括光学扩散剂、磷光粉末、光子晶体、量子点、纳米颗粒例如二氧化钛纳米颗粒或碳纳米管、染料例如荧光染料或吸收染料、及其组合。组分 (VIII) 的用量取决于各种因素,其中包括所选的光学活性剂和最终用途。然而,组分 (VIII) 的用量范围基于组合物的重量可以是 0.01-50%,或者是 1-10%。

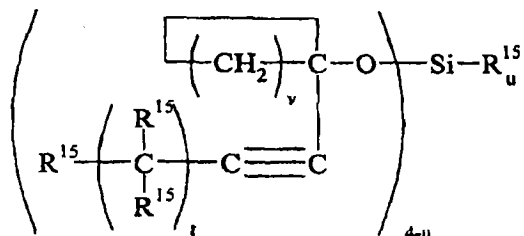
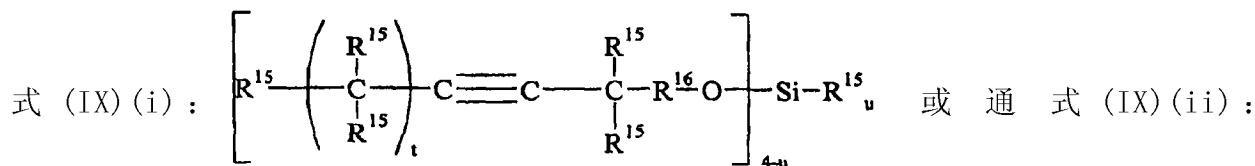
#### 组分 (IX) 固化改性剂

[0045] 组分 (IX) 是固化改性剂。可添加组分 (IX),以延长本发明组合物的寿命或操作时间或者这二者。可添加组分 (IX) 以提高组合物的固化温度。合适的固化改性剂是本领域已知的且可商购。组分 (IX) 例举炔醇、环烯基硅氧烷、烯炔化合物、三唑、膦、硫醇、肼、胺、富马酸酯、马来酸酯、及其组合。在例如 EP0764703A2 和美国专利 5449802 中公开了炔醇的实例,并包括甲基丁炔醇、乙炔基环己醇、二甲基己炔醇、1-丁炔-3-醇、1-丙炔-3-醇、2-甲基-3-丁炔-2-醇、3-甲基-1-丁炔-3-醇、3-甲基-1-戊炔-3-醇、3-苯基-1-丁炔-3-醇、4-乙基-1-辛炔-3-醇、3,5-二甲基-1-己炔-3-醇和 1-乙炔基-1-环己醇、及其组合。

[0046] 环烯基硅氧烷的实例包括甲基乙烯基环硅氧烷,其中例举 1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙烯基环四硅氧烷、1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四己烯基环四硅氧烷、及其组合。烯炔化合物的实例包括 3-甲基-3-戊烯-1-炔、3,5-二甲基-3-己烯-1-炔、及其组合。三唑的实例包括苯并三唑。膦的实例包括三苯基膦。胺的实例包括四甲基乙二胺。富马酸酯的实例包括富马酸二烷酯、富马酸二链烯酯、富马酸二烷氧基烷酯、及其组合。在例如美国专利 Nos. 3445420、3989667、4584361 和 5036117 中公开了合适的固化改性剂。

[0047] 或者,组分 (IX) 可包括甲硅烷化的炔类抑制剂。在不希望束缚于理论的情况下,认为与由不含抑制剂或含炔醇的可氢化硅烷化固化的组合物制备的固化的硅氧烷产品相比,添加甲硅烷化的炔类抑制剂降低由本发明的组

合物制备的固化的硅氧烷产品的泛黄。合适的甲硅烷化炔类抑制剂可具有通

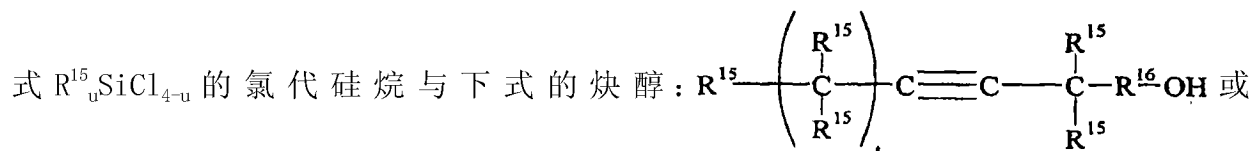


或其组合,其中每一  $\text{R}^{15}$  独立地为氢原子或单价有机

基团,  $\text{R}^{16}$  是共价键或二价烃基,  $u$  为 0、1、2 或 3,  $t$  为 0-10, 和  $v$  为 4-12。或者  $u$  为 1 或 3。或者,在通式 (IX) (i) 中,  $u$  为 3。或者,在通式 (IX) (ii) 中,  $u$  为 1。或者  $t$  为 0。或者  $v$  为 5、6 或 7, 或者  $v$  为 6。针对  $\text{R}^{15}$  的单价有机基团的实例包括如上所述的脂族不饱和的有机基团, 芳族基团, 或不含芳烃和不含脂族不饱和键的单价取代或未取代的烃基。

[0048] 甲硅烷化的炔类抑制剂例举 (3-甲基-1-丁炔-3-氧基) 三甲基硅烷、((1,1-二甲基-2-丙炔基) 氧基) 三甲基硅烷、双 (3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基硅烷、双 (3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 硅烷甲基乙烯基硅烷、双 ((1,1-二甲基-2-丙炔基) 氧基) 二甲基硅烷、甲基 (三 (1,1-二甲基-2-丙炔基氧基)) 硅烷、甲基 (三 (3-甲基-1-丁炔基-3-氧基)) 硅烷、(3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基苯基硅烷、(3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基己烯基硅烷、(3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 三乙基硅烷、双 (3-甲基-1-丁炔基-3-氧基) 甲基三氟丙基硅烷、(3,5-二甲基-1-己炔基-3-氧基) 三甲基硅烷、(3-苯基-1-丁炔基-3-氧基) 二苯基甲基硅烷、(3-苯基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基苯基硅烷、(3-苯基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基乙烯基硅烷、(3-苯基-1-丁炔基-3-氧基) 二甲基己烯基硅烷、(环己基-1-乙炔基-1-氧基) 二甲基己烯基硅烷、(环己基-1-乙炔基-1-氧基) 二甲基乙烯基硅烷、(环己基-1-乙炔基-1-氧基) 二苯基甲基硅烷、(环己基-1-乙炔基-1-氧基) 三甲基硅烷、及其组合。或者,甲硅烷化的炔类抑制剂可包括甲基 (三 (1,1-二甲基-2-丙炔基氧基)) 硅烷、((1,1-二甲基-2-丙炔基) 氧基) 三甲基硅烷、或其组合。

[0049] 可通过本领域已知的使醇甲硅烷化的方法, 例如在酸受体存在下, 使



反应, 制备甲硅烷化的炔类抑制剂。在这些式中,

$u$ 、 $t$ 、 $v$ 、 $\text{R}^{15}$  和  $\text{R}^{16}$  如上所述。在例如 EP0764703A2 和美国专利 5449802 中公开了甲硅烷化的炔类抑制剂的实例及其制备方法。

[0050] 加入到组合物中的组分 (IX) 的用量取决于所使用的特定固化改性剂, 组分 (III) 的性质与用量, 和组分 (II) 的组成。然而, 组分 (IX) 的用量范围基于组合物的重量可以是 0.001-10%, 或者 0.001-5%。

### 组分 (X) 流变改性剂

[0051] 组分 (X) 是流变改性剂。可添加流变改性剂来改变组合物的触变性能。组分 (X) 例举流动控制添加剂、反应性稀释剂、抗沉降剂、 $\alpha$ -烯烃、羟基封端的硅氧烷-有机共聚物 (其中包括但不限于羟基封端的聚环氧丙烷-二甲基硅氧烷共聚物)、及其组合。

### 其他任选的组分

[0052] 除了以上所述的全部或一部分以外, 可添加其他任选的组分, 或者替代它们, 条件是任选的组分不妨碍组合物固化形成硅氧烷产品。其他任选的组分的实例包括但不限于: 酸受体; 抗氧化剂; 稳定剂, 例如氧化镁、氢氧化钙、金属盐添加剂, 例如在 EP0950685A1 中公开的那些, 热稳定剂, 和紫外 (UV) 稳定剂; 阻燃剂; 甲硅烷化试剂, 例如 4-(三甲基甲硅烷氧基)-3-戊烯-2-酮和 N-(叔丁基二甲基甲硅烷基)-N-甲基三氟乙酰胺; 干燥剂, 例如沸石、无水硫酸铝、分子筛 (优选孔径为小于或等于 10 埃)、硅藻土、硅胶和活性炭; 光学扩散剂; 胶态二氧化硅; 和发泡剂, 例如水、甲醇、乙醇、异丙醇、苯甲醇、1,4-丁二醇、1,5-戊二醇、1,7-庚二醇和硅烷醇。

### 总的 SiH : Vi 之比

[0053] 可选择组合物中的各组分, 使得组合物内的与硅键合的氢原子与脂族不饱和基团的总量的摩尔比 ( $\text{SiH}_{\text{总}}/\text{Vi}_{\text{总}}$ ) 大于 0.5, 或者至少为 0.8。  $\text{SiH}_{\text{总}}/\text{Vi}_{\text{总}}$  可以是最多 10.0, 或者最多 5.0, 或者最多 3.0。在不希望束缚于理论的情况下, 认为若  $\text{SiH}_{\text{总}}/\text{Vi}_{\text{总}}$  太低, 则组合物可能不固化或者可能不粘合到一些基底上, 和可能会增加从组合物渗出到其他表面上。在不希望束缚于理论的情况下, 认为若  $\text{SiH}_{\text{总}}/\text{Vi}_{\text{总}}$  太高, 则可能妨碍表面性能, 例如粘合性, 且可能会增加从组合物渗出到其他表面上。

### 套盒

[0054] 组合物可以是单部分组合物或多部分组合物, 例如两部分组合物。在多部分组合物中, 组分 (II) 和任选的组分 (IV) (若存在的话) 储存在独立于组分 (III) 的单独部分内。可将组分 (I) 和 (V)-(VIII) 中的任何一种加入到这两部分的任何一个或两个内。本领域的技术人员在没有过度实验的情况下, 知道如何选择每一部分的组分。

[0055] 当制备多部分组合物时, 它可以套盒形式市售。套盒可进一步包括如何使用套盒、如何结合各部分、或者如何固化所得组合物、或其结合的信息或说明或这二者。例如, 可如下所述制备包括 A 部分和 B 部分的套盒。A 部分包含: (I) 链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, (III) 氢化硅烷化催化剂, 任选地 (V) 粘合促进剂, 任选地 (VI) 填料, 任选地 (VII) 处理剂, 任选地 (VIII) 固化改性剂, 和任选地 (IX) 流变改性剂。B 部分包含: 任选地 (I) 链烯基官能的含苯基的聚有机基硅氧烷, (II) 氢二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷, 任选地 (IV) 共交联剂, 任选地 (V) 粘合促进剂, 任选地 (VI) 填料, 任选地 (VII) 处理剂任

选地 (VIII) 固化改性剂,和任选地 (IX) 流变改性剂。

[0056] 或者,可如下所述制备具有 A 部分和 B 部分的多部分组合物。A 部分包含:(II) 分子式为  $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,其中 Ph 表示苯基,每一  $R^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基,每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基,x 是整数 2-8,和 x 的平均值为 2-4,(III) 氢化硅烷化催化剂,任选地 (V) 粘合促进剂任选地 (VI) 填料任选地 (VII) 处理剂任选地 (VIII) 固化改性剂,和任选地 (IX) 流变改性剂。部分 B 包含:(I) 平均组成式为  $H_aR^2_bSiO_{(4-a-b)/2}$  的 Si-H 官能的含苯基的聚有机基硅氧烷,其中每一  $R^2$  独立地为甲基或苯基,至少 30mol% 的  $R^2$  是苯基,a 和 b 是满足下述等式的正数: $a+b = 1-2.2$  和  $a/(a+b) = 0.001-0.05$ ;任选地 (II) 分子式为  $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$  的链烯基官能的二有机基甲硅烷氧基封端的低聚二苯基硅氧烷,其中 Ph 表示苯基,每一  $R^1$  独立地为具有 2-12 个碳原子的链烯基,每一  $R^3$  独立地为甲基或苯基,x 是整数 2-8,和 x 的平均值为 2-4,任选地 (IV) 共交联剂,任选地 (V) 粘合促进剂任选地 (VI) 填料任选地 (VII) 处理剂任选地 (VIII) 固化改性剂,和任选地 (IX) 流变改性剂。

[0057] 套盒可进一步包括将 A 部分和 B 部分以某一重量比混合在一起的说明书。A 部分和 B 部分可以下述比例混合在一起,A 部分 : B 部分 (A : B) 为 0.05 : 1-20 : 1,或者 0.1 : 1-10 : 1,或者 1 : 1-5 : 1。

### 制备组合物的方法

[0058] 可通过任何方便的方式混合各组分,制备以上所述的组合物。例如,可通过在环境温度下混合所有组分,制备组合物。不具体地限定所使用的混合器,且通过各组分和组合物的粘度来确定。合适的混合器包括但不限于捏合机型曲拐式混合器,双行星式混合器,非侵入混合器,例如,依赖于离心作用的那些,以及双辊和三辊橡胶磨。可在混合之后任选地过滤组合物。本领域的技术人员能在没有过度实验的情况下,根据以上公开和以下列出的实施例中的方法制备组合物。

### 发光器件

[0059] 本发明的组合物可用于其中想要透光性能或粘合性能或机械性能或这二者的宽泛应用中。例如,以上所述的组合物固化形成粘合强度和机械性能高的光学透明的材料。

[0060] 使用本发明的组合物制备的固化的硅氧烷产品在性能上可从硬质树脂变化到弹性体到凝胶,这取决于各种因素,其中包括加入到组合物中的组分 (I) 和 (II) 以及任何任选的组分的类型与浓度。固化的硅氧烷产品优选是软质弹性体或凝胶。使用该组合物制备的固化产品可作为封装剂或作为涂料用于最终应用中。

[0061] 在本发明中,用于发光器件的封装或涂布的技术是本领域众所周知的且可用于本发明中。这种技术包括流延、分配、模塑和类似方法。例如,在发光器件封装在典型地在模具内预形成的未固化的组合物内之后,固化组合物。可通过加热,一段或多段固化这些组合物。例如,在一个实施方案中,可在范围为从室温到 200°C 的温度下进行固化。

[0062] 发光器件耐受焊接条件下的热冲击和在发光条件下的热与光暴露。例如,在 260°C 下焊接 5 分钟之后,固化材料在 400 纳米 (nm) 下的透光率损失小于 10% (试验 -1)。在焊接工艺过程中,固化的组合物没有显示出脱层或者开裂。根据下述可靠度试验条件,在光照

下,还观察到类似的稳定性:在 $-40^{\circ}\text{C}$ 至 $120^{\circ}\text{C}$ 之间500次热循环(试验-2),在 $85^{\circ}\text{C}$ /85%相对湿度下暴露1000小时(试验-3),和在 $150^{\circ}\text{C}$ 下暴露1000小时(试验-4)。

### 实施例

[0063] 对于本领域的普通技术人员来说,这些实施例阐述本发明,且不打算限制权利要求书中列出的本发明的范围。

#### 参考例 1- 制备 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_2\text{SiMe}_2\text{H}$

[0064] 在配有温度计、机械搅拌器、氮气入口管道和冷凝器的4颈1升烧瓶内,在氮气下,装入735.6g二苯基二甲氧基硅烷、45.2g乙酸和670mg三氟甲磺酸。然后在40分钟(min)内温热反应混合物到最多 $55^{\circ}\text{C}$ 。在加热80分钟之后,通过添加4.5g碳酸钙,猝灭反应。蒸发反应混合物,得到60g清澈油。通过从正己烷中重结晶进行纯化,得到纯的 $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_2\text{Me}$ 。

[0065] 在配有温度计、机械搅拌器、等压滴液漏斗和冷凝器的4颈0.5升烧瓶内,在氮气下,装入128g  $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_2\text{Me}$ ,73.8g 1,1,3,3-六甲基二硅氧烷和34.7g乙酸。为了溶解烷氧基硅烷,将100ml甲苯加入到烧瓶中,然后将267mg三氟甲磺酸加入到反应混合物中。温热反应混合物到最多 $50^{\circ}\text{C}$ 。在 $50^{\circ}\text{C}$ 下老化45分钟之后,在30分钟的时间段内缓慢地将28.1g乙酸酐加入到反应混合物中。在添加之后,保持反应混合物在 $40-50^{\circ}\text{C}$ 下2小时。在冷却到 $25^{\circ}\text{C}$ 之后,用170ml甲苯,将反应混合物转移到1-1分液漏斗中。每次用50ml水洗涤有机层共6次。蒸发残留的有机层,得到153g无色液体。

#### 参考例 2- 制备 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$

[0066] 在配有温度计、机械搅拌器、等压滴液漏斗和冷凝器的4颈2升烧瓶内,在氮气下,按顺序装入977.6g二苯基二甲氧基硅烷、1.497g三氟甲磺酸和144g乙酸。在温热反应混合物到 $42^{\circ}\text{C}$ 之后,在15分钟内,在没有任何加热的情况下,反应温度逐渐升高到 $64^{\circ}\text{C}$ 。在反应温度降低到 $62^{\circ}\text{C}$ (20分钟之后)之后,回流反应混合物15分钟。蒸发混合物,以仍然含有三氟甲磺酸的混合物形式得到粗的中间体 $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{OMe}$ 。

[0067] 向上述残余物中添加258g 1,1,3,3-四甲基二硅氧烷。在 $50^{\circ}\text{C}$ 下温热混合物之后,在维持容器温度于 $49-51^{\circ}\text{C}$ 的同时,将192g乙酸缓慢地加入到混合物中。在添加之后,反应温度维持在 $50^{\circ}\text{C}$ 下5分钟。向该反应混合物中缓慢地添加163g乙酸酐,以在水浴辅助下维持温度在 $48-52^{\circ}\text{C}$ 。在添加完成之后,保持反应混合物在 $50^{\circ}\text{C}-51^{\circ}\text{C}$ 下45分钟。在冷却到室温之后,用200ml庚烷将反应混合物转移到2-1分液漏斗中。每次用50ml水洗涤有机层共6次。蒸发残留的有机层,得到1005g无色液体。使用二苯基二甲氧基硅烷、三氟甲磺酸、乙酸和乙酸酐,制备 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ 。

#### 参考例 3- 组合物和固化的组合物的表征

[0068] 通过其在 $25^{\circ}\text{C}$ 下的粘度和在 $25^{\circ}\text{C}$ 下对587nm光的折射指数来表征组合物。通过其在400nm下、10mm的光程长度下的透光率和硬度计A或D硬度来表征通过在 $150^{\circ}\text{C}$ 烘箱中加热组合物1分钟制备的固化的硅氧烷产品。

#### 参考例 4- 制备发光器件

[0069] 如下所述制备图 1 所示的发光二极管器件。采用导电糊剂,将 GaN 化合物半导体(LED) 芯片 2 置于聚邻苯二甲酰胺(PPA) 外壳 1 内并小片粘结到引线框的内部引线 3 部分上,然后用金线 4 线接合半导体芯片。将此处所述的硅氧烷组合物涂布在半导体芯片上,接着在 150℃烘箱内固化 1 小时,形成固化的硅氧烷 5。

#### 参考例 5- 发光器件的可靠度试验

[0070] 根据参考例 3 制备用于透光率%测试的样品,并将该样品分别暴露于下述条件下:(1) 在热板上,在 260℃下加热 5 分钟,(2) 在烘箱内,在 150℃下加热 100 小时,(3) 在 85%相对湿度下,在 85℃下加热 100 小时,和(4) 在 -40℃至 100℃之间施加 500 次热循环试验,和(5) 在 150℃下加热 1000 小时。还根据参考例 4 制备样品,并暴露于相同的条件下。在暴露之后,采用显微镜,针对脱层、开裂或其他变形,观察包封剂的外观。测量在暴露之前和之后的透光率%,并基于起始输出值为 100,获得相对输出值。

#### 实施例 1- 本发明的可固化的硅氧烷组合物

[0071] 通过混合各组分,制备下述物质的混合物: $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{20}\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (44.11%),  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_4\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (8.22%),  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.15}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.45}$  (28.78%) 和  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$  (21.89%)。添加 0.38 份催化剂(它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物,所述混合物的铂含量为 4.0%),1.0 份羟基封端的聚(二甲基硅氧烷/甲基乙烯基硅氧烷)与(环氧丙氧丙基)三甲氧基硅烷作为粘合促进剂,和 0.05 份乙基环己醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中,得到清澈的组合物。

#### 实施例 2- 本发明的可固化的硅氧烷组合物

[0072] 通过混合各组分,制备比率为 40.0 : 31.1 : 27.9 : 1.0 的下述物质的混合物: $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{44}(\text{SiMeViO})_{1.2}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ ,  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$  和  $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ 。添加 0.005 份催化剂(它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物,所述混合物的铂含量为 5.0%),0.1 份羟基封端的聚(甲基苯基硅氧烷/甲基乙烯基硅氧烷)与(环氧丙氧丙基)三甲氧基硅烷作为粘合促进剂,和 0.01 份乙炔基环己-1-醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中,得到清澈的组合物。

#### 实施例 3- 本发明的可固化的硅氧烷组合物

[0073] 通过混合各组分,制备比率为 51.5 : 2.5 : 2.5 : 43.5 的下述物质的混合物: $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ ,  $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_2$ ,  $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_3$  和  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_2\text{SiMe}_2\text{H}$ 。添加 0.01 份催化剂(它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物,所述混合物的铂含量为 5.0%),0.05 份乙炔基环己-1-醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中,得到清澈的组合物。

**对比例 1- 可固化的硅氧烷组合物**

[0074] 通过混合各组分, 制备下述物质的混合物:  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{20}\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (37.54%),  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_4\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (6.11%),  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.15}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.45}$  (43.65%) 和  $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{H})_2$  (12.7%)。添加 0.38 份催化剂 (它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物, 所述混合物的铂含量为 4.0%), 作为粘合促进剂, 和 0.05 份乙炔基环己醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中, 得到清澈的组合物。

**对比例 2- 可固化的硅氧烷组合物**

[0075] 通过混合各组分, 制备比率为 44.4 : 36.3 : 19.4 的下述物质的混合物:  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{50}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ ,  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ , 和  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_4\text{SiMe}_2\text{H}$ 。添加 0.005 份催化剂 (它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物, 所述混合物的铂含量为 5.0%), 0.1 份羟基封端的聚(甲基苯基硅氧烷 / 甲基乙烯基硅氧烷) 与 (环氧丙氧丙基) 三甲氧基硅烷作为粘合促进剂, 和 0.01 份乙炔基环己-1-醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中, 得到清澈的组合物。

**对比例 3- 可固化的硅氧烷组合物**

[0076] 通过混合各组分, 制备比率为 69.5 : 2.8 : 27.7 的下述物质的混合物:  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ ,  $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_2$  和  $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{H})_2$ 。添加 0.01 份催化剂 (它是 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 10% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物, 所述混合物的铂含量为 5.0%), 和 0.05 份乙炔基环己-1-醇作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中, 得到清澈的组合物。

[0077] 根据参考例 3-5, 评价实施例 1-3 和对比例 1-3 中的组合物。表 1 中列出了结果。

**实施例 4**

[0078] 通过混合各组分, 制备下述物质的混合物:  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (54.84%),  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{75}\text{SiMe}_2\text{Vi}$  (20.72%),  $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$  (7.28%),  $(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.4}(\text{Me}_2\text{HSiO}_{1/2})_{0.6}$  (0.51%) 和  $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$  (15.48%)。添加 0.77 份催化剂 (它是 99%  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ , 0.38% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷和 0.62% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷与铂的络合物的混合物, 所述混合物的铂含量为 25.0%), 和 0.39 份抑制剂 (它是 99%  $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$  和 1% 1-乙炔基-1-环己醇的混合物) 作为固化改性剂到 100 份以上所述的混合物中, 得到清澈的组合物。表 2 中列出了结果。表 1

	实施例 1	实施例 2	实施例 3	对比例 1	对比例 2	对比例 3
粘度 (mPa · s)	2000	2000	3300	1600	1700	1150

折射指数	1.5495	1.546	1.545	1.53	1.540	1.531
硬度计 00 硬度	45	-	-	40	-	-
硬度计 A 硬度	-	50	-	-	50	-
硬度计 D 硬度	-	-	45	-	-	55
拉伸强度 (MPa)	-	1.11	-	-	0.57	-
开裂伸长率 (%)	-	81	-	-	56	-
试验 1 外观 /%透光率	没有变化 /100%	没有变化 /100%	没有变化 /99%	没有变化 /96%	没有变化 /98%	脱层 /75%
试验 2 外观 /%透光率	没有变化 /99%	没有变化 /99%	没有变化 /97%	开裂 /56%	脱层 /60%	脱层 /55%
试验 3 外观 /%透光率	没有变化 /100%	没有变化 /99%	没有变化 /98%	开裂 /60%	脱层 /65%	脱层 /65%
试验 4 外观 /%透光率	没有变化 /95%	没有变化 /93%	没有变化 /92%	开裂 /30%	脱层 /45%	脱层 /30%

表 2

	实施例 4
粘度 (mPa · s)	4505
633nm 下的折射指数	1.5494
硬度计 00 硬度	45
硬度计 A 硬度	-
硬度计 D 硬度	-
拉伸强度 (MPa)	-
开裂伸长率 (%)	-
试验 5 外观	没有变化
试验 5 器件缺陷	0%

## 附图

[0079] 图 1 是发光器件的截面视图。参考标记 1 外壳 2 LED 芯片 3 内部引线 4 线材 5 固化的硅氧烷

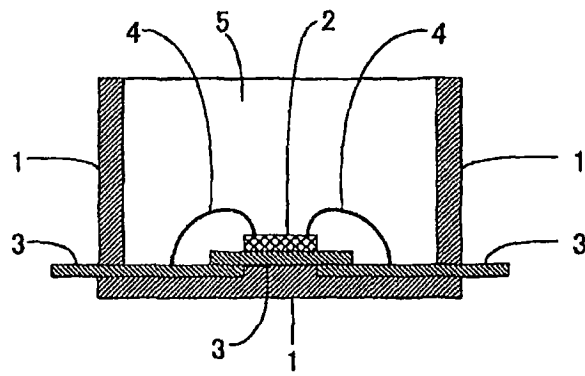


图 1