

(19)



NL Octrooi Centrum

(11)

2005457**(12) C OCTROOI**(21) Aanvraagnummer: **2005457**(22) Aanvraag ingediend: **05.10.2010**

(51) Int.Cl.:

H01L 23/29 (2006.01)**C08L 83/04** (2006.01)**C08L 63/00** (2006.01)**H01L 33/56** (2010.01)

(43) Aanvraag gepubliceerd:

-

(47) Octrooi verleend:
06.04.2012(45) Octrooischrift uitgegeven:
11.04.2012

(73) Octrooihouder(s):

Everlight USA, Inc. te Pineville, North Carolina, Verenigde Staten van Amerika (US).

(72) Uitvinder(s):

Tsung-Yi Chao te Taoyuan (TW).**Wen-Jeng Lee te Taoyuan (TW).****Der-Gun Chou te Taoyuan (TW).****Yen-Cheng Li te Taoyuan (TW).****Meng-Huang Yan te Taoyuan (TW).**

(74) Gemachtigde:

Mr. G.L. Kooy c.s. te Den Haag.(54) **Silicone containing encapsulant.**

(57) The present invention relates to a silicone containing encapsulant composition. One embodiment of the encapsulant composition comprises (a) 30 ~ 60 weight% of an epoxy resin ; (b) 30 ~ 60 weight% of an acid anhydride curing agent ; (c) 0.1 ~ 30 weight% of a Carbinol function silicone resin which can form a homogeneous mixture with (a) and (b) described above ; and (d) 0.1 ~ 5 weight% of a reactive UV absorber or HALS; and reactive anti-oxidant and/or phosphor containing flame retardant. The encapsulant composition can be used for a solid state light emitting device to achieve low internal stress and better -anti-yellowing performance.

SILICONE CONTAINING ENCAPSULANT

BACKGROUND OF THE INVENTION

1. Field of the Invention

The present invention relates to an encapsulant composition and, more particularly, to an encapsulant composition that can be used for a solid state light emitting device.

5 2. Description of Related Art

In the recent years, light emitting diodes (LEDs) have been widely used in many electronic devices such as LCD back-light sources, large displaying devices, and light illuminating equipment. Hence, demands for LEDs with high
10 brightness have increased. Owing to the environmental requirement of various LED application, an encapsulant composition suitable for being used in light emitting devices should have certain characteristics such as being homogeneous, having high transparency, and being capable of long
15 term storage capacity in order to resist to the high temperature when a large electrical current is applied. Conventional transparent encapsulant materials used in LEDs include epoxy or silicone resins, in which the cost of silicone resin is high though it has superior optical
20 characteristics. In contrast, epoxy resin has been widely used due to its low cost. However, epoxy resin has a serious problem that yellowing occurs when it is used as the encapsulant composition of the LEDs. The yellowing of the epoxy resin, caused by the high temperature of the high
25 power operation may influence the transmittance to the short-wavelength light and causing color shift. Therefore, epoxy resin is limited in its application for being used in a high current and high temperature operating environment.

The anti-yellowing of the encapsulant composition such as the epoxy resin is usually obtained by adding an antioxidant. The added antioxidant can remove the peroxide radical to stop the chain reaction, or reduce the degradation speed of the polymers by decomposing the hydroperoxide generated during the degradation. However, it is proved that the anti-yellowing obtained by adding of the antioxidant cannot be satisfactory for long operating time of the LEDs, not only suitable anti-oxidant is hard to find but also some anti-oxidants have high volatility that may result in a migration problem within the encapsulant material.

Besides, internal stress caused by high temperature during high power operation may contribute negative influence to the semiconductor element, cause a short circuit, and reduce the brightness of the applied LEDs. Therefore, for reducing the internal stress of the encapsulant composition, US Patent No. 5,145,889 has disclosed four methods, which comprise: (1) decreasing the glass transition temperature (T_g) of the encapsulant composition; (2) decreasing the linear expansion coefficient of the encapsulant composition; (3) decreasing the Young's modulus of elasticity (E); and (4) decreasing the shrinkage factor (ϵ). In general, decreasing of the glass transition temperature (T_g) will lower the mechanical strength of the encapsulant at high temperature; decreasing of the Young's modulus of elasticity will dramatically decrease the adhesion of the encapsulant to chip, board, or lead frame; besides if the amount of filler increase significantly, the viscosity of the encapsulant will increase too much and is unfavorable to the workability.

In US Patent No. 6,800,373, an encapsulant composition is disclosed, which comprises silicone resin, low molecular weight of alicyclic compounds, aromatic compounds, hetero-cyclic compounds which having epoxy resin functional group, and siloxane surfactant. However, the optical transparency is unsatisfactory, and the siloxane surfactant is neither involved in the reaction nor does it

form a homogeneous mixture with common epoxy encapsulant composition.

Therefore, it is desirable to provide an improved encapsulant composition that can be used for a solid state light emitting device to achieve low internal stress and better anti-yellowing performance.

SUMMARY OF THE INVENTION

10 An object of the present invention is to provide an encapsulant composition for a solid state light emitting device, such as LEDs, which can overcome the problems of yellowing and achieve low internal stress in a long term high temperature operation conditions.

15 To achieve the object, the present invention provide an encapsulant composition comprising: (a) 30 to 60 weight% of an epoxy resin; (b) 30 to 60 weight% of an acid anhydride curing agent; (c) 0.1 to 30 weight% of a Carbinol siloxane resin which can form a homogeneous mixture
20 with the said (a) and (b); and (d) 0.1 to 5 weight% of a reactive UV absorber and/or a reactive hindered amine light stabilizer (HALS).

Also, the present invention provides another encapsulant composition comprising: (a) 30 to 60 weight% of an epoxy resin; (b) 30 to 60 weight% of an acid anhydride
25 curing agent; (c) 0.1 to 30 weight% of a Carbinol siloxane resin which can form a homogeneous mixture with the said (a) and (b); (d) 0.01 to 3.0 weight% of a curing accelerator; (e) 0.1 to 5 weight% of a reactive UV absorber; and
30 (f) 0.1 to 5 weight% of a reactive hindered amine light stabilizer (HALS). Additionally a reactive anti-oxidant and a phosphor containing flame retardant can be selectively used.

Besides, the present invention also provides a silicone containing encapsulant composition comprising: (a) 30
35 to 60 weight% of an epoxy resin; (b) 30 to 60 weight% of an acid anhydride curing agent; (c) 0.1 to 30 weight% of a Carbinol siloxane resin which can form a homogeneous mix-

ture with the said (a) and (b); (d) 0.1 to 5 weight% of a normal UV absorber; and (e) 0.1 to 5 weight% of a normal hindered amine light stabilizer (HALS).

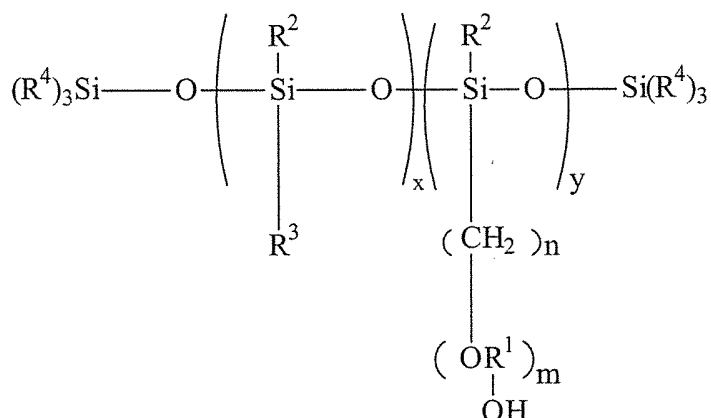
5 BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

DETAILED DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENT

10 The object, technique features, and advantages according to the present invention will explain later in more detail.

15 The present invention provide an encapsulant composition for a solid state light emitting device, such as LEDs, which can achieve low internal stress, and provide better anti-yellowing performance with long term and high temperature operation. Under the presence of epoxy resin and acid anhydride, the present invention introduce a Carbinol siloxane resin to lower the hardness and the internal stress while curing the epoxy resin composition; in addition, the use of Carbinol siloxane resin can prevent the encapsulant from cracking and overcome the problem of low adhesion. The adding of the UV absorber and the hindered amine light stabilizer (HALS) having reactive group may contribute to the increasing of the anti-yellowing ability of the encapsulant.

25 The addition of Carbinol siloxane resin is to react with the unreacted acid anhydride to reduce the yellowing caused by the unreacted acid anhydride left after the polymerization of epoxy resin and acid anhydride, if any. Also, the Carbinol siloxane resin can react with the reactive group of the epoxy resin to increase the elasticity of the encapsulant. Furthermore, any unreacted Carbinol siloxane resin left can serve as a filler to reduce the linear expansion coefficient of the encapsulant. According to the present invention, the Carbinol siloxane resin is a compound of the following formula:



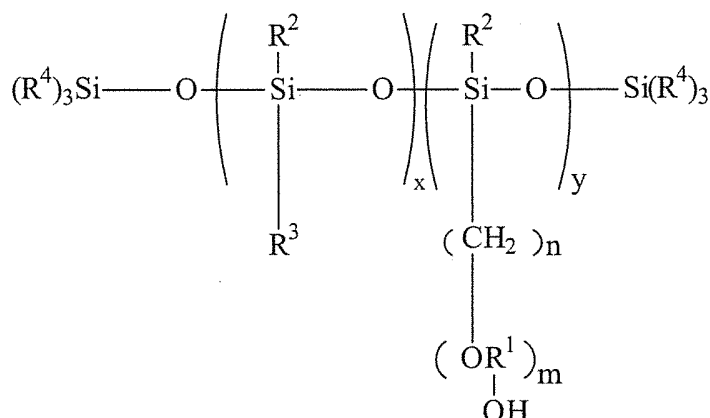
wherein $(\text{R}^1\text{O})_m$ is an alkylene oxide group (when $m=1$) or a poly(alkylene oxide) group (when $m>1$); and R^1 independently represents a linear and branched divalent radical selected from $-\text{C}_2\text{H}_4-$, $-\text{C}_3\text{H}_6-$, $-\text{C}_4\text{H}_8-$. It is to be noted that when m is greater than 1, e.g., 2 or more, the alkylene oxide groups can be the same or different and can form poly(alkylene oxide) homopolymers, random copolymers and block copolymers.

R^2 and R^3 are independently H or C_1 - C_2 alkyl; R^4 is H or C_1 - C_2 alkyl and is the same with or different from R^2 ; x is an integer of 1 to 100; y is an integer of 1 to 100; n is an integer of 1 to 5; and m is an integer of 1 to 40.

Though the Carbinol siloxane resin is advantageous in lower internal stress and linear expansion coefficient, it may not solving all the yellowing problems, therefore by addition of a UV absorber and/or a hindered amine light stabilizer (HALS) having reactive group would be helpful. By controlling the amount of the Carbinol siloxane resin being used, the reactive UV absorber containing an OH or a COOH reactive group may react with the encapsulant to form a polymeric UV absorber. Hence, the volatilization due to the migration of the low molecular weight UV absorbers can be reduced, then the long lasting performance of the UV absorber can be enhanced. Since the anti-yellowing performance of this type encapsulant has been substantially increased, therefore, the long lasting requirement for LEDs can be satisfied.

The encapsulant composition of the present invention comprises: (a) 30 to 60 weight% of an epoxy resin; (b) 30 to 60 weight% of an acid anhydride curing agent; (c) 0.1 to 30 weight% of a Carbinol siloxane resin which can form a homogeneous mixture with the said (a) and (b); and (d) 0.1 to 5 weight% of a reactive UV absorber or a reactive hindered amine light stabilizer (HALS). Also, the present invention provides another encapsulant composition comprising: (a) 30 to 60 weight% of an epoxy resin; (b) 30 to 60 weight% of an acid anhydride curing agent; (c) 0.1 to 30 weight% of a Carbinol siloxane resin which can form a homogeneous mixture with the said (a) and (b); (d) 0.01 to 3.0 weight% of a curing accelerator; (e) 0.1 to 5 weight% of a reactive UV absorber; and (f) 0.1 to 5 weight% of a reactive hindered amine light stabilizer (HALS). Additionally a reactive anti-oxidant and a phosphor containing flame retardant can be selectively used.

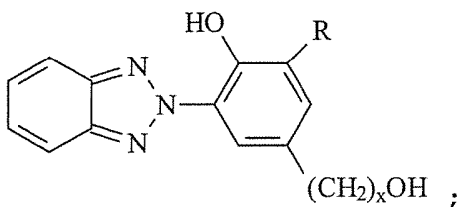
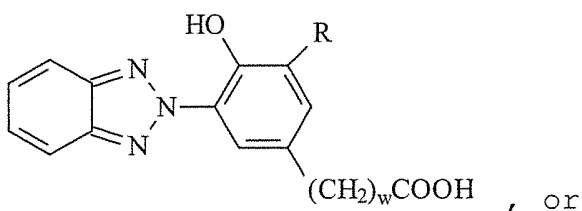
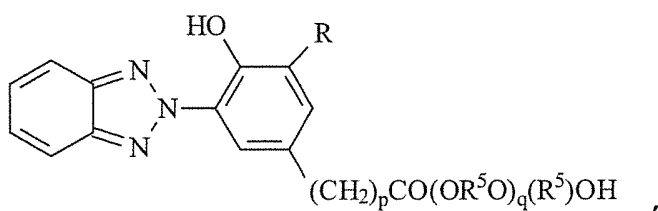
The encapsulant composition of the present invention comprises an epoxy resin and a curing agent as the primary components, a Carbinol siloxane resin for reducing the internal stress of the encapsulant, and a UV absorber or a hindered amine light stabilizer (HALS) having reactive group, additionally a reactive anti-oxidant and a phosphor containing flame retardant can be selectively added to enhance a better anti-yellowing performance. According to the encapsulant composition of the present invention, the (a) epoxy resin may be an aromatic epoxy resin, an alicyclic epoxy resin, or a silicone modified epoxy resin; the (b) acid anhydride curing agent may be methyl hexahydrophthalic anhydride (MHHPA) or hexahydrophthalic anhydride (HHPA); the (c) Carbinol siloxane resin may be a compound of following formula:



wherein $(\text{R}^1\text{O})_m$ is an alkylene oxide group (when $m=1$) or a poly(alkylene oxide) group (when $m>1$); and R^1 independently represents a linear and branched divalent radical selected from $-\text{C}_2\text{H}_4-$, $-\text{C}_3\text{H}_6-$, $-\text{C}_4\text{H}_8-$. It is to be noted that when m is greater than 1, e.g., 2 or more, the alkylene oxide groups can be the same or different and can form poly(alkylene oxide) homopolymers, random copolymers and block copolymers. R^2 and R^3 are independently H or C_1 - C_2 alkyl; and R^4 is H or C_1 - C_2 alkyl and is the same with or different from R^2 . According to a preferred embodiment of the present invention, R^2 and R^4 may be both methyl. x is an integer of 1 to 100; y is an integer of 1 to 100; n is an integer of 1 to 5; and m is an integer of 1 to 40.

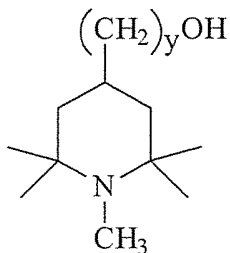
For example, commercially-available products such as Silwet L-7608, CoatOSil 7604, BYK-373, BYK-377, and TEGO-PREN 5842 can serve as the Carbinol siloxane resin herein. According to another encapsulant composition of the present invention, besides the epoxy resin and curing agent as the primary components being used, a Carbinol siloxane resin may be further included to reduce the internal stress of the encapsulant, and a reactive UV absorber or a reactive hindered amine light stabilizer (HALS) having reactive group may be selectively added simultaneously. Also, a reactive anti-oxidant and a phosphor containing flame retardant can be selectively used to enhance anti-yellowing performance of the encapsulant. The detail information of the (a) epoxy resin, the (b) acid anhydride

curing agent, and the (c) Carbinol siloxane resin are described as above. The (d) curing accelerator may be a tetra-alkyl ammonium salt such as tetra-ethylammonium bromide or tetra-n-butylammonium bromide; or a tetra-alkyl
 5 phosphonium salt such as tetra-ethylphosphonium bromide, tetra-n-butylphosphonium bromide, methyltri-butylphosphonium iodide, methyltri-n-butylphosphonium dimethylphosphate, or tetra-ethylphosphonium tetrafluoroborate. The reactive UV absorber may be a compound of the
 10 following formula:



15

wherein p, q, w, x are each independently an integer of 1 to 5; R is H or C₁-C₈ alkyl; R⁵ is a C₂-C₄ alkyl with straight chain or branched chain. The (f) reactive hindered amine light stabilizer (HALS) may be a compound of
 20 the following formula:



wherein y is an integer of 0 to 8.

Besides, the reactive anti-oxidant and the phosphor containing flame retardant can serve as additives to enhance anti-yellowing performance of the encapsulant. The phosphor containing flame retardant may be, for example, triphenylphosphite and 3,4:5,6-Dibenzo-2H-1,2-oxaphosphorin-2-oxide.

The encapsulant composition of the present invention is advantageous in many aspects, such as (1) low internal stress, due to the adding of the Carbinol siloxane resin; (2) excellent anti-yellowing performance, due to the adding of the UV absorber or the hindered amine light stabilizer (HALS) having reactive group and the adding of the reactive anti-oxidant and phosphor containing flame retardant; and (3) long lasting of anti-yellowing performance by forming polymeric UV absorber and/or polymeric hindered amine light stabilizers in situ, thus avoid the possibility of decreasing UV absorbers contain due to the migration and high volatility of common low molecular weight UV absorbers and/or hindered amine light stabilizers.

[Example 1]

[Formulation for table 1] main components

Samples	E1	E2	E3	E4
Epoxy resin(wt%)	52.4	51.2	50.3	48.5
acid anhydride curing agent(wt%)	47.6	47.5	47.0	46.1
Carbinol siloxane resin A (wt%)	-	1.3	2.7	5.4

25

The epoxy resin used herein is Bisphenol A Diglycidyl ether (NPEL-128E, purchased from Nan Ya Plastics Company), the acid anhydride curing agent used herein is methylhexahydrophthalic anhydride (MHHPA), and the Carbinol siloxane resin A used herein is Silwet L-7608 (purchased from GE Silicone Company).

30

Tetra alkyl phosphonium salt(curing accelerator) was added into curing agent(such as MHHPA in Table1) at room temperature and stirring to form a solution(about 0.5 hour), additional components were then added and stirred to get a homogenous mixture. The resulting resin mixture was heated at 120°C for 1.5 hours and then heated at 140°C for 3.5 hours to be cured.

Films thus formed were subjected to the thermal mechanical analysis (TMA, Perkin Elmer DMA7e) to measure their internal stress (α_2/α_1) values at a testing temperature of 25 to 250°C with the heating speed of 5°C/min. Results are listed in table 1 below.

[Table 1]

Samples	E1	E2	E3	E4
α_1	61.1	62.98	73.20	79.74
α_2	187.5	176.08	191.23	192.0
(α_2/α_1)	3.07	2.80	2.61	2.41

[Example 2]

[Formulation for table 2] main components

Samples	E5	E6	E7	E8
epoxy resin(wt%)	52.4	51.4	50.7	49.1
acid anhydride curing agent(wt%)	47.6	47.3	46.6	45.4
Carbinol siloxane resin B(wt%)	-	1.3	2.7	5.5

Following the same procedure as described in Example1, except the Silwet L-7608 was replaced by CoatOSil 7604(purchased from GE Silicone Company). The internal stress (α_2/α_1) values measured are as shown in table 2 below.

[Table 2]

Samples	E5	E6	E7	E8
α_1	61.1	71.2	70.0	80.0
α_2	187.5	191.2	182.6	183.9
(α_2/α_1)	3.07	2.69	2.61	2.30

[Example 3]

[Formulation for table 3] main components

Samples	E9	E10	E11	E12
epoxy resin(wt%)	52.4	51.4	50.7	49.3
Acid anhydride curing agent(wt%)	47.6	47.3	46.6	45.3
carbinol siloxane resin C(wt%)	-	1.3	2.7	5.4

5

Following the same procedure as described in Example 1, except the Carbinol siloxane resin C was BYK-373 (purchased from BYK Company), and the internal stress (α_2/α_1) values measured are as shown in table 3 below.

10 [Table 3]

Samples	E9	E10	E11	E12
α_1	61.1	82.9	83.9	89.7
α_2	187.5	208.0	201.8	194.7
(α_2/α_1)	3.07	2.51	2.41	2.17

15

According to the results shown in the above tables 1 to 3, it is believed that the use of the Carbinol siloxane resin A, B, and C can reduce the hardness of the epoxy resin and reduce the internal stress caused by the different thermo expansion coefficients of the organic material and the inorganic material. In detail, the internal stress (α_2/α_1)

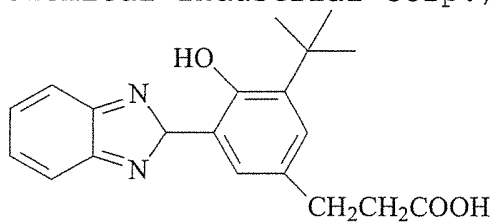
values decrease when the content of the Carbinol siloxane resin increases. The difference between the thermo expansion coefficients below and over the glass transition temperature decreases, which means the internal stress is efficiently reduced and the problem of cracking of the encapsulant and short circuit of the electronics can be overcome.

[Example 4]

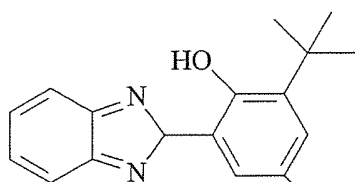
[Formulation for table 4] main components

Samples	E13 (blank)	E14 (experiment group)	E15 (control group)
epoxy resin(wt%)	46.8	46.7	46.7
Carbinol siloxane Resin A(wt%)	5.2	5.1	5.1
acid anhydride curing agent(wt%)	48	48	48
reactive UVA(wt%)	-	0.2	-
normal type UVA(wt%)	-	-	0.2

The epoxy resin used herein is Bisphenol A Diglycidyl ether (NPEL-128E, purchased from Nan Ya Plastics Company), the Carbinol siloxane resin A is Silwet L-7608 (purchased from GE Silicone Company), the acid anhydride curing agent used herein is methylhexahydrophthalic anhydride (MHHPA), the reactive UVA (UV absorber) used herein is SV8A (make by Everlight Chemical Industrial Corp.), and the normal type UVA used herein is EV81 (purchased from Everlight Chemical Industrial Corp.).



(chemical structure of SV8A)



5 CC(C)(C)c1ccc(cc1C2=NC3=CC=CC=C3N2)C(=O)OCC (chemical structure of EV81)

The resin mixtures were prepared similar to the procedure described in the Example 1, except the curing time was heated at 120°C for 2 hours and then heated at 140°C for 4 hour.

10 The films (thickness of 3mm) made from the example 4 are then placed in a QUV Accelerated Weathering Tester (Model QUV/SE with solar Eye Irradiance Control), and the testing conditions were temperature of 70°C; 340nm; and 1.35w/m². A spectrophotometer (SPECTROPHOTOMETER CM-3500d
15 /MINOLTA) is used to measure the yellowness index (YI) for before and after the exposure of UV lights, in which $\Delta YI = YI_t - YI_{t0}$. Results are listed in table 4 below.

[Table 4]

Samples	YI/ _{t0}	168 hours of light expo- sure/YI	336 hours of light exposure /YI	168 hours of light exposure /ΔYI	336 hours of light exposure /ΔYI	judg ment
E13 (blank)	- 0.72	7.49	14.13	8.21	14.85	NOT PASS
E14 (experi ment group)	0.57	1.63	2.52	1.06	1.95	PASS
E15 (con- trol group)	0.68	2.37	3.80	1.69	3.12	NOT PASS

In the above table 4, "NOT PASS" means ΔYI value >3.00 after 336 hours of light exposure; "PASS" means ΔYI value <3.00 after 336 hours of light exposure.

5 [Example 5]

[Formulation for table 5] main components

Samples	E16 (Blank)	E17 (experi- ment group)	E18 (control group)
epoxy resin(wt%)	46.8	46.6	46.6
Carbinol siloxane Resin A(wt%)	5.2	5.1	5.1
acid anhydride curing agent(wt%)	48	48	48
normal type UVA(wt%)	0	0.2	0.2
reactive hindered amine light stabi- lizer (wt%)	-	0.1	-
normal type hin- dered amine light stabilizer (wt%)	-	-	0.1

Using the similar procedure as described in Example 1, the effect of hindered amine light stabilizers were measured.

10 The reactive hindered amine light stabilizer in the present example is IA38 (purchased from Nantong City Zhenxing Fine Chemical Co.,Ltd., China, the normal type hindered amine light stabilizer is EV77 (purchased from Everlight Chemical Industrial Corp.). The measured ΔYI values are as

15 shown in table 5 below.

[Table 5]

Samples	YI/t_0	168 hours of light expo- sure/ YI	336 hours of light exposure / YI	168 hours of light exposure / ΔYI	336 hours of light exposure / ΔYI	judgment
E16 (blank)	-0.72	7.49	14.13	8.21	14.85	NOT PASS
E17 (experiment group)	0.74	0.97	1.49	0.23	0.75	PASS
E18 (control group)	0.45	0.50	1.90	0.05	1.45	PASS

In the above table 5, "NOT PASS" means ΔYI value >3.00 after 336 hours of light exposure; "PASS" means ΔYI value <3.00 after 336 hours of light exposure.

According to the results indicated in the above tables 4 and
5 5, it had shown that adding the UVA and hindered amine light
stabilizer (HALS) with reactive group can achieve an excellent
anti-yellowing efficiency. Although the present invention has
been explained in relation to its preferred embodiment, it is
to be understood that many other possible modifications and
10 variations can be made without departing from the scope of the
invention as hereinafter claimed.

CONCLUSIES

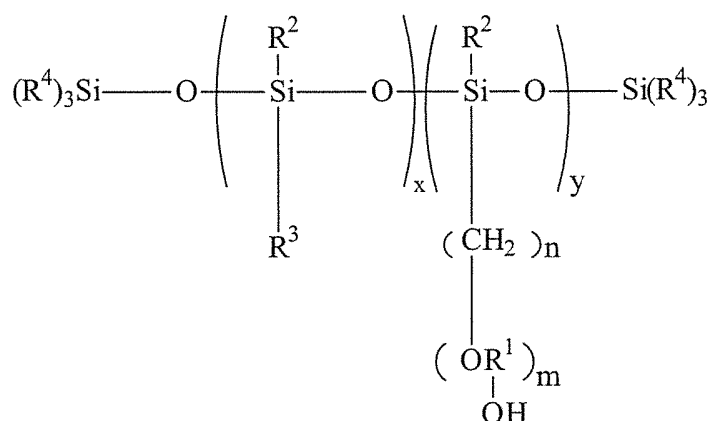
1. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling omvattende:

- (a) 30 tot 60 gew.% van een epoxyhars;
- (b) 30 tot 60 gew.% van een zuuranhydride-hardings-
5 middel;
- (c) 0,1 tot 30 gew.% van een Carbinol siloxaanhars die een homogeen mengsel kan vormen met (a) en (b); en
- (d) 0,1 tot 5 gew.% van een reactief UV-absorptie-
10 middel of een reactieve gehinderd-amine-licht-stabilisator (HALS).

2. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de epoxyhars gekozen is uit de groep bestaande uit een aromatische epoxyhars, een alicyclische epoxyhars of een siliconen-gemodificeerde epoxyhars.
15

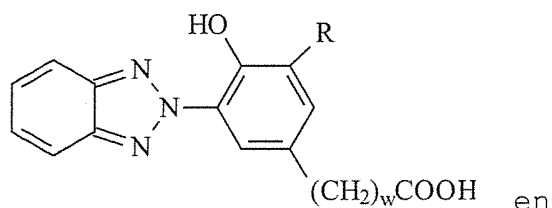
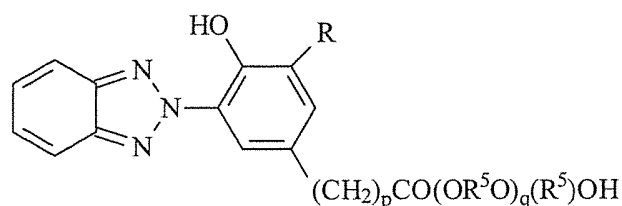
3. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij het zuuranhydride-hardingsmiddel gekozen is uit de groep bestaande uit methylhexahydroftaalzuuranhydride (MHHPA) of hexahydroftaalzuuranhydride (HHPA).
20

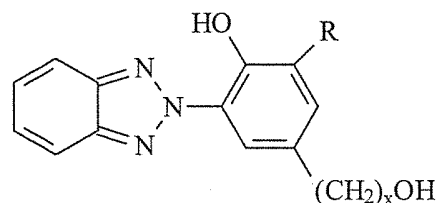
4. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de Carbinol siloxaanhars een verbinding met de volgende formule is:
25



waarin $(R^1O)_m$ staat voor een alkyleenoxidegroep wanneer $m=1$ of voor een poly(alkyleenoxide)groep wanneer $m>1$; R^1 onafhankelijk staat voor een lineaire en vertakte tweewaardige groep gekozen uit $-\text{C}_2\text{H}_4-$, $-\text{C}_3\text{H}_6-$ en $-\text{C}_4\text{H}_8-$; wanneer m groter dan 1 is, de alkyleenoxidegroepen gelijk of van elkaar verschillend zijn en poly(alkyleenoxide)homopolymeren, statistische copolymeren en blokcopolymeren vormen; R^2 en R^3 onafhankelijk staan voor H of C_1 - C_2 -alkyl; R^4 staat voor H of C_1 - C_2 -alkyl en gelijk is aan of verschillend is van R^2 ; x een geheel getal van 1 tot 100 is; y een geheel getal van 1 tot 100 is; n een geheel getal van 1 tot 5 is; en m een geheel getal van 1 tot 40 is.

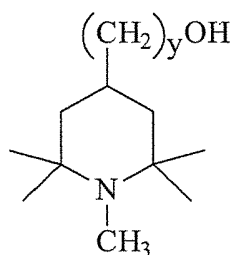
5. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij het reactieve UV-absorptiemiddel er ten minste één is gekozen uit de verbindingen met de volgende formules:





waarin p, q, w, x elk onafhankelijk een geheel getal van 1 tot 5 zijn; R staat voor H of C₁-C₈-alkyl; R⁵ staat voor C₂-C₄-alkyl met rechte of vertakte keten.

- 5 6. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de reactieve gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS) is:



- 10 waarin y een geheel getal van 0 tot 8 is.

7. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, verder omvattende 0,01 tot 3,0 gew.% van een hardingsversneller, waarbij de hardingsversneller gekozen is uit de groep bestaande uit een tetra-
15 alkylammoniumzout en een tetra-alkylfosfoniumzout.

8. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, verder omvattende 0,1 tot 5 gew.% van een reactieve antioxidant en/of fosforbevattende vlamvertrager.

- 20 9. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de siliconenbevattende inkapselingssamenstelling wordt gebruikt in LED-inkapseling.

10. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling omvattende:

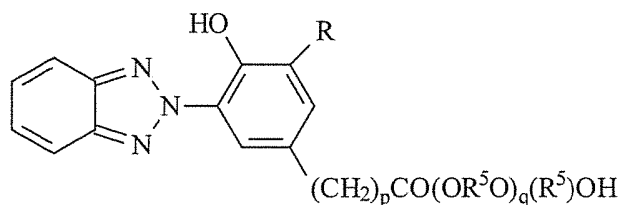
- 25 (a) 30 tot 60 gew.% van een epoxyhars;
 (b) 30 tot 60 gew.% van een zuuranhydride-hardingsmiddel;
 (c) 0,1 tot 30 gew.% van een Carbinol siloxaanhars die een homogeen mengsel kan vormen met (a) en (b);
30 (d) 0,01 tot 3,0 gew.% van een hardingsversneller;

(e) 0,1 tot 5 gew.% van een reactief UV-absorptie-middel; en

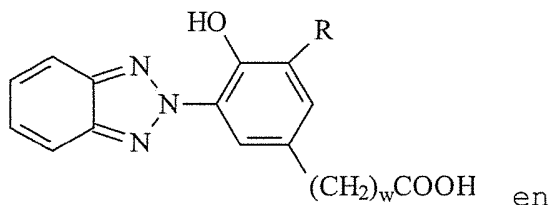
(f) 0,1 tot 5 gew.% van een reactieve gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS).

5 11. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 10, waarbij de hardingsversneller gekozen is uit de groep bestaande uit een tetra-alkylammoniumzout en een tetra-alkylfosfoniumzout.

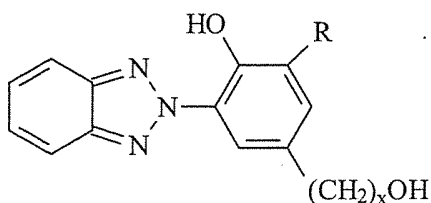
10 12. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 10, waarbij het reactieve UV-absorptiemiddel er ten minste één is gekozen uit de verbindingen met de volgende formules:



15

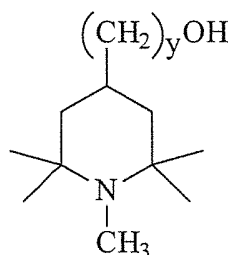


en



20 waarin p, q, w, x elk onafhankelijk een geheel getal van 1 tot 5 zijn; R staat voor H of C₁-C₈-alkyl; R⁵ staat voor C₂-C₄-alkyl met rechte of vertakte keten.

25 13. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 10, waarbij de reactieve gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS) de verbinding met de volgende formule is:



waarin y een geheel getal van 0 tot 8 is.

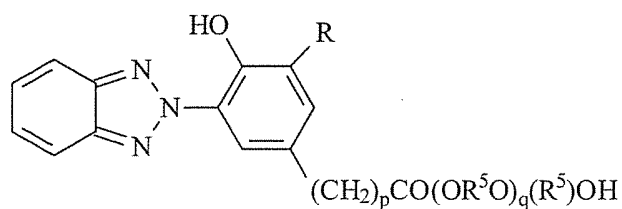
14. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 10, verder omvattende 0,1 tot 5 gew.% van een reactieve antioxidant en/of fosforbevattende vlamvertrager.

15. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de siliconenbevattende inkapselingssamenstelling wordt gebruikt in LED-inkapseling.

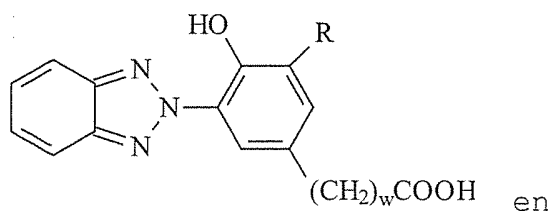
16. Epoxy-inkapselingssamenstelling omvattende:

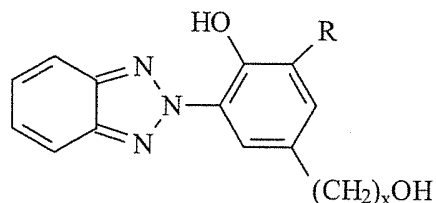
- (a) 30 tot 60 gew.% van een epoxyhars;
- (b) 30 tot 60 gew.% van een zuuranhydride-hardingsmiddel;
- (c) 0,1 tot 5 gew.% van een reactief UV-absorptiemiddel of een reactieve gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS); en
- (d) 0,1 tot 5 gew.% van een reactieve antioxidant en/of fosforbevattende vlamvertrager.

17. Epoxybevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 16, waarbij het reactieve UV-absorptiemiddel er ten minste één is gekozen uit de verbindingen met de volgende formules:



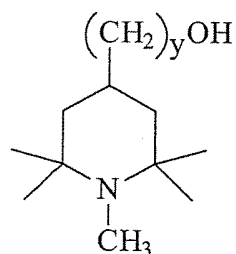
25





waarin p, q, w, x elk onafhankelijk een geheel getal van 1 tot 5 zijn; R staat voor H of C₁-C₈-alkyl; R⁵ staat voor C₂-C₄-alkyl met rechte of vertakte keten.

18. Epoxy-bevattende inkapselingssamenstelling volgens conclusie 16, waarbij de reactieve gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS) is:



10

waarin y een geheel getal van 0 tot 8 is.

19. Siliconenbevattende inkapselingssamenstelling omvattende:

- (a) 30 tot 60 gew.% van een epoxyhars;
- (b) 30 tot 60 gew.% van een zuuranhydride-hardingsmiddel;
- (c) 0,1 tot 30 gew.% van een Carbinol siloxaanhars die een homogeen mengsel kan vormen met (a) en (b);
- (d) 0,1 tot 5 gew.% van een normaal UV-absorptiemiddel; en
- (e) 0,1 tot 5 gew.% van een normale gehinderd-amine-lichtstabilisator (HALS).

20



RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Octrooiaanvraag 2005457

Classificatie van het onderwerp ¹ : H01L23/29, C08L63/00, C08L83/04, H01L33/56	Onderzochte gebieden van de techniek ¹ : H01L, C08L
Computerbestanden: EPODOC, WPI	Omvang van het onderzoek: Onvolledig
Indien gewijzigde conclusies; indieningsdatum van deze conclusies: -	Niet onderzochte conclusies ² : 16-19: i.v.m. niet-eenheid

Van belang zijnde literatuur

Categorie ³	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) nr.:
Y	WO 2009/102566 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC) 20 augustus 2009 * pagina 9, regel 11; pagina 13, regels 9-10; voorbeeld; conclusies 1, 2, 4, 8; * ---	1-15
Y	WO 2006/047318 A (DOW CORNING) 4 mei 2006 * paragrafen [0013], [0037]; conclusies 1 en 12 * ---	1-3, 5-15
Y	EP 1067144 A (DAINICHISEIKA COLOR CHEM) 10 januari 2001 * samenvatting; conclusies 1, 4 * -----	1-15
Datum waarop het onderzoek werd voltooid: 4 mei 2011		De bevoegde ambtenaar: Dr. R.B. Boers NL Octrooiencentrum

>> Als het gaat om octrooien

¹ Gedefinieerd volgens International Patent Classification (IPC).

² Voor motivering zie toelichting in de schriftelijke opinie.

³ Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad.

Categorie van de vermelde literatuur:

- X: op zichzelf van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- Y: in samenhang met andere geciteerde literatuur van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- A: niet tot de categorie X of Y behorende van belang zijnde stand van de techniek
- O: verwijzend naar niet op schrift gestelde stand van de techniek
- P: literatuur gepubliceerd tussen voorrangs- en indieningsdatum
- T: niet tijdig gepubliceerde literatuur over theorie of principe ten grondslag liggend aan de uitvinding
- E: octrooiliteratuur gepubliceerd op of na de indieningsdatum van de onderhavige aanvraag en waarvan de indieningsdatum of de voorrangsdatum ligt voor de indieningsdatum van de onderhavige aanvraag.
- D: in de aanvraag genoemd
- L: om andere redenen vermelde literatuur
- &: lid van dezelfde octrooifamilie; corresponderende literatuur

AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 2005457

Het aanhangsel bevat een opgave van elders gepubliceerde octrooiaanvragen of octrooien (zogenaamde leden van dezelfde octrooifamilie), die overeenkomen met octrooigeschriften genoemd in het rapport. De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau per 16 mei 2011.

De juistheid en volledigheid van deze opgave wordt noch door het Europees Octrooibureau, noch door NL Octrooiencentrum gegarandeerd; de gegevens worden verstrekt voor informatiedoeleinden.

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)		datum van publicatie
WO2009102566	A	2009-08-20	EP2245084	A	2010-11-03
			KR20100121670	A	2010-11-18
			US2011009527	A	2011-01-13
			CN102007167	A	2011-04-06
WO2006047318	A	2006-05-04	EP1809701	AB	2007-07-25
			CN101048460	A	2007-10-03
			JP2008518049T	T	2008-05-29
			AT438689T	T	2009-08-15
EP1067144	AB	2001-01-10	CN1280151	A	2001-01-17
			JP2001019711	A	2001-01-23
			KR20010049735	A	2001-06-15
			SG98417	A	2003-09-19
			CN1803861	A	2006-07-19
			TWI260328B	B	2006-08-21
			DE60031481T	T	2007-02-15
			ES2273637T	T	2007-05-16

SCHRIFTELIJKE OPINIE
Octrooiaanvraag 2005457

Indieningsdatum: 5 oktober 2010	Vorrangsdatum: -
Classificatie van het onderwerp ¹ : H01L23/29, C08L63/00, C08L83/04, H01L33/56	Aanvrager: Everlight USA, Inc.

Deze schriftelijke opinie bevat een toelichting op de volgende onderdelen:

- | | |
|--|--|
| ☒ Onderdeel I | Basis van de schriftelijke opinie |
| ☐ Onderdeel II | Vorrang |
| ☐ Onderdeel III | Vaststelling nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid niet mogelijk |
| ☒ Onderdeel IV | De aanvraag heeft betrekking op meer dan één uitvinding |
| ☒ Onderdeel V | Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid |
| ☐ Onderdeel VI | Andere geciteerde documenten |
| ☐ Onderdeel VII | Overige gebreken |
| ☒ Onderdeel VIII | Overige opmerkingen |

	De bevoegde ambtenaar: Dr. R.B. Boers NL Octrooiencentrum
--	---

¹ Gedefinieerd volgens International Patent Classification (IPC).

Onderdeel I Basis van de schriftelijke opinie

Deze schriftelijke opinie is opgesteld op basis van de meest recente conclusies ingediend voor aanvang van het onderzoek.

Onderdeel IV De aanvraag heeft betrekking op meer dan één uitvinding

Vastgesteld is dat de octrooiaanvraag betrekking heeft op meer dan één uitvinding.

De als eerste genoemde uitvinding is gericht op een inkapselingssamenstelling omvattende a) een epoxyhars, b) een zuuranhydride hardingsmiddel, c) een carbinol siloxaanhars en d) een reactief UV-absorptiemiddel en/of een reactieve HALS lichtstabilisator (conclusies 1-15).

De als tweede genoemde uitvinding betreft een inkapselingssamenstelling omvattende a) een epoxyhars, b) een zuuranhydride hardingsmiddel, c) een reactief UV-absorptiemiddel of een reactieve HALS lichtstabilisator (conclusies 16-18).

Deze samenstelling bevat niet als essentiële component een carbinol siloxaanhars. Deze conclusies zijn dan ook gericht op een andere samenstelling/uitvinding dan de samenstelling van de eerste uitvinding.

De als derde genoemde uitvinding is gericht op een inkapselingssamenstelling omvattende a) een epoxyhars, b) een zuuranhydride hardingsmiddel, c) een carbinol siloxaanhars en d) een normaal (niet-reactief) UV-absorptiemiddel en een normale (niet-reactieve) HALS lichtstabilisator (conclusie 19).

Nu blijkt dat een samenstellingen omvattende de componenten a), b) en c) bekend zijn, zie onderdeel V, is deze conclusie ten opzichte van de eerstgenoemde uitvinding gericht op een alternatieve oplossing voor het probleem van het nog niet lichtstabiel genoeg zijn van een samenstelling omvattende de componenten a), b) en c).

Het onderzoek naar de stand van de techniek is beperkt tot de eerstgenoemde uitvinding in de conclusies en betreft:

- ☐ alle conclusies
☒ conclusies 1-15

Onderdeel V Gemotiveerde verklaring ten aanzien van nieuwheid, inventiviteit en industriële toepasbaarheid

1. Verklaring

Nieuwheid	Ja:	Conclusies	1-15
	Nee:	Conclusies	-
Inventiviteit	Ja:	Conclusies	-
	Nee:	Conclusies	1-15

Industriële toepasbaarheid

Ja: Conclusies 1-15
Nee: Conclusies -

2. Literatuur en toelichting**Interpretatie conclusies**

Conclusies 1 en 10 worden gezien als siliconen bevattende samenstellingen die geschikt zijn voor inkapseling. De hiervan afhankelijke conclusies 9 en 15, respectievelijk, worden gezien als siliconen bevattende samenstellingen die geschikt zijn voor LED-inkapseling.

Conclusie 1 omvat een "carbinol siloxaanhars die een homogeen mengsel kan vormen met de componenten (a) en (b)". Dit wordt gezien als een hydroxalkyl gesubstitueerde siloxaanhars die met zijn hydroxy-groepen kan reageren met epoxide-groepen van de epoxyhars (a) en met anhydride-groepen van het zuuranhydride-hardingsmiddel (b) (zie pagina 4, regels 26-32), om zo een homogeen mengsel te kunnen vormen met (a) en (b).

Conclusie 15 is geïnterpreteerd als zijnde afhankelijk van conclusie 10, in plaats van van conclusie 1.

Nieuwheid inventiviteit

WO 2009/102566 openbaart een compositie omvattende een hars, bij voorkeur een epoxyhars (zie conclusie 2; pagina 9, regel 11; voorbeeld (waarin XQ 82955.01 een bisphenol-A epoxide is)), een zuuranhydride-hardingsmiddel (zie conclusie 4) en een 0,1-30 gew.% carbinol siloxaanhars (zie conclusie 1 onder b en conclusie 23). Een deskundige zal hieruit begrijpen dat de epoxyhars en het hardingsmiddel binnen hoeveelheden van 30-60 gew% gebruikt zullen moeten worden. De te gebruiken hoeveelheden binnen deze percentages worden daardoor impliciet geopenbaard. Daarnaast kan de samenstelling een normaal UV-absorptiemiddel omvatten (zie conclusie 8). De compositie wordt onder andere gebruikt bij inkapseling (zie pagina 13, regels 9-10). Dit document openbaart echter niet het gebruik van reactieve UV-absorptiemiddelen en/of een reactieve HALS lichtstabilisator.

Een deskundige die de samenstelling bekend uit WO 2009/102566 wil verbeteren door deze samenstelling langer tegen verkleuring te beschermen, zal zich realiseren dat een normale UV-stabilisator of een normale licht-stabilisator uit het met de bekende samenstelling verkregen product bij hoge temperaturen kan verdampen, uitlogen, uitbloeden of verbloemen. Uit de stand van de techniek is het algemeen bekend om in plaats van "gewone stabilisatoren" "reactieve stabilisatoren" te gebruiken die aan de polymeren in het mengsel vast komen te zitten zodat ze immobiel worden gemaakt en bovengenoemde problemen niet meer op kunnen treden. Een

Schriftelijke Opinie

Octrooiaanvraag **2005457**

voorbeeld uit deze stand van de techniek is EP 1067144 waarin polymeer gebonden functionele additieven worden beschreven (zie samenvatting en conclusie 1), waaronder reactieve UV-stabilisatoren (o.a. 3-[3'-(2''H-benzotriazol-2''-yl)-4'hydroxyphenyl]]propaanzuur) en licht-stabilisatoren (o.a. 4-hydroxy-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidine) (zie conclusie 4).

Het wordt dan ook niet inventief bevonden om aan de bekende samenstelling uit WO 2009/102566 een reactieve UV-stabilisator toe te voegen in plaats van een normale UV-stabilisator.

Evenzo is het (daarnaast) toevoegen van een licht-stabilisator niet inventief, aangezien dit eveneens een gebruikelijk additief is dat kleuring van het met de samenstelling verkregen product voorkomt. Om dezelfde reden als hiervoor beschreven voor UV-stabilisatoren zal een deskundige kiezen voor een reactieve licht-stabilisator als hij het product bij hoge temperatuur over een langere tijd stabiel wil houden. Daarom wordt het ook niet inventief gevonden om aan de bekende samenstelling een reactieve licht-stabilisator toe te voegen.

Hierdoor worden de conclusies 1, 2, 4-6 niet inventief bevonden.

Aangezien MHHPA en HHPA algemeen bekende zuuranhydride-hardingsmiddelen zijn en er uit de beschrijving geen bijzonder effect blijkt te bestaan bij het gebruik van deze middelen, wordt de materie van conclusie 3 niet inventief bevonden.

Het wordt voor de hand liggend gevonden om aan de uit WO 2009/102566 bekende samenstelling een gebruikelijke hardingsversneller toe te voegen, zoals tetra-alkyl ammonium of fosfonium zouten. De afhankelijke conclusie 7 en de onafhankelijke conclusie 10 worden daardoor niet inventief bevonden, wat inhoudt dat de van conclusie 10 afhankelijke conclusies 11-13, gezien het voorgaande, ook niet inventief zijn.

Aangezien het gebruikelijk is om antioxidanten en/of vlamvertragers, zoals fosforverbindingen, toe te voegen, wordt het na bovenstaande niet inventief bevonden om reactieve antioxidanten en vlamvertragers toe te voegen. De materie van conclusies 8 en 14 worden daardoor niet inventief bevonden.

Aangezien deze niet inventieve samenstellingen geschikt zijn om LED-componenten mee in te kapselen wordt de materie van conclusies 9 en 15 niet inventief bevonden.

WO 2006/047318 openbaart een samenstelling (zie conclusies 1 en 12) omvattende (a) 17-66 gew% van een epoxyhars (zie [0013]), (b) 0,1-57 gew% van een anhydride-hardingsmiddel (zie [0037]), (c) 14-75 gew% van een carbinol siloxaanhars.

Dit document openbaart niet het gebruik van UV-absorptiemiddelen en/of een HALS lichtstabilisator.

Met vergelijkbare inventiviteitsbezwaren als hiervoor beschreven worden de conclusies 1-3, 5-15 niet inventief bevonden bij een combinatie van WO 2006/047318 en EP 1067144

Onderdeel VIII Overige opmerkingen

De volgende opmerkingen met betrekking tot de duidelijkheid van de conclusies, beschrijving, en figuren, of met betrekking tot de vraag of de conclusies nawerkbaar zijn, worden gemaakt:

Het in de aanvraag op blz. 2 genoemde US 514588 lijkt US 5145889 te moeten zijn.