



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201504355 A

(43)公開日：中華民國 104 (2015) 年 02 月 01 日

(21)申請案號：103120373

(22)申請日：中華民國 103 (2014) 年 06 月 12 日

(51)Int. Cl.：

*C08L83/07 (2006.01)**C08L83/05 (2006.01)**C08K3/00 (2006.01)**C08K3/36 (2006.01)**H01L33/46 (2010.01)*

(30)優先權：2013/06/14

日本

2013-125222

(71)申請人：道康寧東麗股份有限公司(日本)DOW CORNING TORAY CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：山崎亮介 YAMAZAKI, RYOSUKE (JP)；吉武誠 YOSHITAKE, MAKOTO (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：18 項 圖式數：1 共 44 頁

(54)名稱

反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物、及光半導體裝置

REACTIVE SILICONE COMPOSITION, REACTIVE THERMOPLASTIC MATERIAL, CURED PRODUCT, AND OPTICAL SEMICONDUCTOR DEVICE

(57)摘要

本發明係一種反應性聚矽氧組合物、其反應性熱塑體、其等之硬化物及具有該硬化物之光半導體裝置，該反應性聚矽氧組合物至少包含：(A)平均單元式所表示之具有烯基之有機聚矽氧烷、(B)通式所表示之具有烯基之有機聚矽氧烷、(C)具有與矽原子鍵結之氫原子之有機聚矽氧烷、(D)矽氫化反應用觸媒、(E)除氧化鈦以外之白色顏料、及(F)球狀二氧化矽、非球狀二氧化矽或玻璃纖維。本發明提供一種反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物及光半導體裝置，該反應性聚矽氧組合物係可形成反應性熱塑體者，該反應性熱塑體係於加熱後暫時流動化其後提供硬化物者，該硬化物係由熱或光所引起之機械強度下降或變色較少、光反射率尤其是 350~400nm 之區域之光反射率較高、對金屬具有優異之接著力者，該光半導體裝置係發光效率較高、光反射材之熱劣化或光劣化較少、可靠性優異者。

- 1 . . . 光半導體元件
- 2 . . . 引線框架
- 3 . . . 引線框架
- 4,4' . . . 接合線
- 5 . . . 光反射材
- 6 . . . 密封材

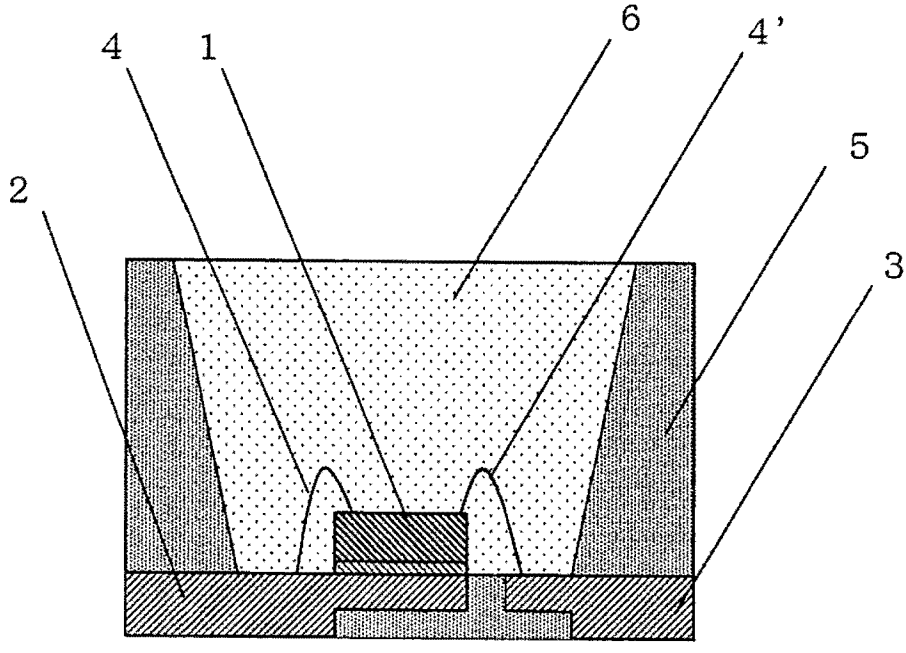


圖1

201504355

## 發明摘要

※ 申請案號：103120313  
 ※ 申請日：103.6.12

C08L83/07(2006.01)  
 C08L83/05(2006.01)  
 C08K3/00(2006.01)  
 C08K3/36(2006.01)  
 H01L33/46(2010.01)

※IPC 分類：C08L; H01L

## 【發明名稱】

反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物、及光半導體裝置  
 REACTIVE SILICONE COMPOSITION, REACTIVE  
 THERMOPLASTIC MATERIAL, CURED PRODUCT, AND  
 OPTICAL SEMICONDUCTOR DEVICE

## 【中文】

本發明係一種反應性聚矽氧組合物、其反應性熱塑體、其等之硬化物及具有該硬化物之光半導體裝置，該反應性聚矽氧組合物至少包含：(A)平均單元式所表示之具有烯基之有機聚矽氧烷、(B)通式所表示之具有烯基之有機聚矽氧烷、(C)具有與矽原子鍵結之氫原子之有機聚矽氧烷、(D)矽氫化反應用觸媒、(E)除氧化鈦以外之白色顏料、及(F)球狀二氧化矽、非球狀二氧化矽或玻璃纖維。本發明提供一種反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物及光半導體裝置，該反應性聚矽氧組合物係可形成反應性熱塑體者，該反應性熱塑體係於加熱後暫時流動化其後提供硬化物者，該硬化物係由熱或光所引起之機械強度下降或變色較少、光反射率尤其是350~400 nm之區域之光反射率較高、對金屬具有優異之接著力者，該光半導體裝置係發光效率較高、光反射材之熱劣化或光劣化較少、可靠性優異者。

## 【英文】

無

**【代表圖】**

**【本案指定代表圖】**：第（1）圖。

**【本代表圖之符號簡單說明】**：

- |      |        |
|------|--------|
| 1    | 光半導體元件 |
| 2    | 引線框架   |
| 3    | 引線框架   |
| 4,4' | 接合線    |
| 5    | 光反射材   |
| 6    | 密封材    |

**【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】**：

無

# 發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

## 【發明名稱】

反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物、及光半導體裝置  
REACTIVE SILICONE COMPOSITION, REACTIVE  
THERMOPLASTIC MATERIAL, CURED PRODUCT, AND  
OPTICAL SEMICONDUCTOR DEVICE

## 【技術領域】

本發明係關於一種反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物、及光半導體裝置。

## 【先前技術】

藉由矽氫化反應進行硬化之硬化性聚矽氧組合物係用作光電耦合器、發光二極體、固體攝像元件等光半導體裝置中之光半導體元件之保護劑或塗佈劑；此外，用作透鏡成形材料、光反射材料等。其中，作為用作光反射材料之組合物，例如可列舉光半導體元件收納用安裝封裝用樹脂組合物，其包含具有乙烯基及烯丙基之任一者及氫原子直接鍵結於矽原子上之結構之熱硬化型加成反應性聚矽氧樹脂、作為硬化觸媒之鉑系觸媒、及氧化鈦等白色顏料(參照專利文獻1)；加成硬化型聚矽氧樹脂組合物，其包含重量平均分子量(Mw)為30,000以上之含乙烯基之有機聚矽氧烷、一分子中具有至少2個與矽鍵結之氫原子之有機氫化聚矽氧烷、氧化鈦等白色顏料、除白色顏料以外之無機填充劑、鉑金屬系觸媒及反應控制劑，並且硬化後之可見光平均反射率為80%以上(參照專利文獻2)。

該等組合物於轉移成形、射出成形或壓縮成形時，存在模具填充性下降，或容易產生孔隙或毛邊，或者模具脫模性較差之問題，尤其

是亦存在硬化速度緩慢，成形操作之作業性較差之問題。又，將該等組合物進行硬化所獲得之硬化物具有由熱或光所引起之變色較少之優點，但存在線膨脹率上升或者高溫下之機械強度較低之問題，或光反射率不充分，由熱或光引起之機械強度之降低較大，對金屬之接著性不充分之問題。進而，於該等組合物中，通常基於提高反射率之目的，使用氧化鈦作為白色顏料，但氧化鈦強烈吸收紫外線區域之光，故而存在350~400 nm之區域之反射率較低之問題。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

專利文獻1：日本專利特開2009-021394號公報

專利文獻2：日本專利特開2011-140550號公報

### 【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

本發明之目的在於提供一種反應性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物及光半導體裝置，該反應性聚矽氧組合物係可形成反應性熱塑體者，該反應性熱塑體係於加熱後暫時流動化其後提供硬化物者，該硬化物係由熱或光所引起之機械強度下降或變色較少、光反射率尤其是350~400 nm之區域之光反射率較高、對金屬具有優異之接著力者，該光半導體裝置係發光效率較高、光反射材之熱劣化或光劣化較少、可靠性優異者。

[解決問題之技術手段]

本發明之反應性聚矽氧組合物之特徵在於至少包含：

(A)平均單元式：



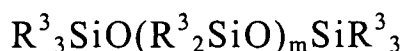
(式中，R<sup>1</sup>為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基，其中，全部R<sup>1</sup>之30~80莫耳%為苯基，全部R<sup>1</sup>之10~20

莫耳%為烯基， $R^2$ 為氫原子或碳原子數1~6之烷基， $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$ 及 $e$ 分別為滿足 $0 \leq a \leq 0.30$ 、 $0 \leq b \leq 0.70$ 、 $0.3 \leq c \leq 0.9$ 、 $0 \leq d \leq 0.20$ 、 $0 \leq e \leq 0.10$ ，且 $a + b + c + d = 1$ 之數)

所表示之有機聚矽氧烷

100質量份、

(B)通式：



(式中， $R^3$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基，其中，全部 $R^3$ 之30~70莫耳%為苯基，全部 $R^3$ 之至少1個為烯基， $m$ 為10~100之整數)

所表示之有機聚矽氧烷

0~40質量份、

(C)一分子中具有至少2個與矽原子鍵結之氫原子，且與矽原子鍵結之全部有機基之20~70莫耳%為苯基之有機聚矽氧烷{相對於(A)成分與(B)成分中之烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.5~2莫耳之量}、

(D)矽氫化反應用觸媒{對於促進(A)成分及(B)成分中之烯基與(C)成分中之與矽原子鍵結之氫原子之矽氫化反應而言充分之量}、

(E)除氧化鈦以外之白色顏料{相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為50質量份以上}、及

(F)非球狀二氧化矽、球狀二氧化矽或玻璃纖維{相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為100質量份以上}，並且

(E)成分及(F)成分之合計含量相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為400質量份以下。

又，本發明之反應性熱塑體之特徵在於：其係進行上述反應性聚矽氧組合物之矽氫化反應直至轉化率成為70~95%而成。

進而，本發明之硬化物之特徵為其係藉由將上述反應性熱塑體加熱至100°C以上而獲得，於300°C下為固體或者黏度為1,000,000 Pa·s

以上之特徵，或者特徵為其係將上述反應性聚矽氧組合物進行硬化而成。

進而，本發明之光半導體裝置之特徵在於：其係由上述硬化物形成光反射材而成。

#### [發明之效果]

本發明之反應性聚矽氧組合物之特徵為可形成反應性熱塑體。又，本發明之反應性熱塑體之特徵為於加熱時暫時流動化，其後提供硬化物。又，本發明之硬化物之特徵為由熱或光所引起之機械強度下降或變色較少、光反射率尤其是350~400 nm之區域之光反射率較高、對金屬具有優異之接著力。進而，本發明之光半導體裝置之特徵為發光效率較高、光反射材之熱劣化或光劣化較少、可靠性優異。

#### 【圖式簡單說明】

圖1係作為本發明之光半導體裝置之一例的LED之剖面圖。

#### 【實施方式】

首先，對本發明之反應性聚矽氧組合物進行詳細說明。

(A)成分係本組合物之主成分，且係平均單元式：



所表示之有機聚矽氧烷。

式中， $R^1$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基。作為 $R^1$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、環戊基、環己基。作為 $R^1$ 之烯基，可例示乙烯基、烯丙基、丁烯基、戊烯基、己烯基。再者，苯基之含量為全部 $R^1$ 之30~80莫耳%之範圍內，於形成反應性熱塑體之情形時，較佳為全部 $R^1$ 之60~75莫耳%之範圍內。其原因在於：若苯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之反應性熱塑體於室溫下之硬度及高溫下之流動特性良好，又，所獲得之硬化物之機械強度良好，另一方面，若為上述範圍之上

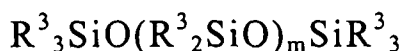
限以下，則所獲得之硬化物於高溫下之硬度良好。又，式中，全部 $R^1$ 內之烯基之含量為10~20莫耳%之範圍內。其原因在於：若烯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物於室溫下之硬度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。

又，式中， $R^2$ 為氫原子或碳原子數1~6之烷基。作為 $R^2$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基。

進而，式中， $a$ 係表示通式： $R^1_3SiO_{1/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq a \leq 0.30$ 之數，較佳為滿足 $0 \leq a \leq 0.25$ 之數。其原因在於：若 $a$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物於室溫下之硬度良好。又，式中， $b$ 係表示通式： $R^1_2SiO_{2/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq b \leq 0.70$ 之數，於形成反應性熱塑體之情形時，較佳為滿足 $0.10 \leq b \leq 0.70$ 之數，進而較佳為滿足 $0.15 \leq b \leq 0.60$ 之數。其原因在於：若 $b$ 為上述範圍之下限以上，則所獲得之反應性熱塑體於室溫下之硬度及高溫下之流動特性良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物於室溫下之硬度良好。又， $c$ 係表示通式： $R^1SiO_{3/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0.3 \leq c \leq 0.9$ 之數，較佳為滿足 $0.35 \leq c \leq 0.85$ 之數，更佳為滿足 $0.40 \leq c \leq 0.80$ 之數。其原因在於：若 $c$ 為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物於室溫下之硬度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。又， $d$ 係表示通式： $SiO_{4/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq d \leq 0.20$ 之數，較佳為滿足 $0 \leq d \leq 0.10$ 之數。其原因在於：若 $d$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。又， $e$ 係表示通式： $R^2O_{1/2}$ 所表示之單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq e \leq 0.10$ 之數。其原因在於：若 $e$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物於室溫下之硬度良好。再者，式中， $a$ 、 $b$ 、 $c$ 及 $d$ 之合計為1。

(A)成分通常係具有分子量分佈者，且係複數種有機聚矽氧烷之混合物。又，(A)成分可為將分別製備之有機聚矽氧烷進行混合而成者，但各有機聚矽氧烷於上述式中，必須為滿足 $0 \leq a \leq 0.30$ 、 $0 \leq b \leq 0.70$ 、 $0.3 \leq c \leq 0.9$ 、 $0 \leq d \leq 0.20$ 、 $0 \leq e \leq 0.10$ 之數。

(B)成分係用以調整本組合物之黏度且調整所獲得之硬化物之硬度及機械強度之任意成分，其係通式：



所表示之有機聚矽氧烷。

式中， $R^3$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基。作為 $R^3$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、環戊基、環己基。作為 $R^3$ 之烯基，可例示乙烯基、烯丙基、丁烯基、戊烯基、己烯基。再者，式中，全部 $R^3$ 內之苯基之含量為30~70莫耳%之範圍內，較佳為40~60莫耳%之範圍內。其原因在於：若苯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之機械強度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之硬度良好。又，式中， $R^3$ 之至少1個為烯基。其原因在於：若具有烯基，則會將本成分引入硬化反應中。

又，式中， $m$ 為10~100之範圍內之整數，較佳為10~50之範圍內之整數。其原因在於：若 $m$ 為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之機械強度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之組合物之處理作業性良好。

於本組合物中，(B)成分之含量係相對於(A)成分100質量份成為0~40質量份之範圍內之量，較佳為成為0~20質量份之範圍內之量。其原因在於：若(B)成分之含量為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之硬度良好。

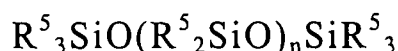
(C)成分係本組合物之交聯劑，且係一分子中具有至少2個與矽原

子鍵結之氫原子且與矽原子鍵結之全部有機基之20~70莫耳%為苯基的有機聚矽氧烷。(C)成分中之與矽原子鍵結之氫原子於一分子中為至少2個，其原因在於：用以硬化之交聯充分，所獲得之硬化物之硬度良好。又，作為(C)成分中之與矽原子鍵結之有機基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、庚基、環戊基、環己基、環庚基等烷基；苯基、甲苯基、二甲苯基等芳基；苄基、苯乙基等芳烷基等不具有脂肪族不飽和鍵之一價烴基，較佳為苯基或碳原子數1~6之烷基。於(C)成分中，與矽原子鍵結之全部有機基之20~70莫耳%為苯基。其原因在於：若苯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物於高溫下之機械強度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。

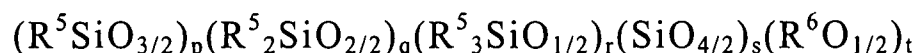
作為此種(C)成分，可例示通式：



所表示之有機三矽氧烷、通式：



所表示之直鏈狀之有機聚矽氧烷、及平均單元式：



所表示之支鏈狀之有機聚矽氧烷。

式中， $\text{R}^4$ 為相同或不同之苯基或碳原子數1~6之烷基。作為 $\text{R}^4$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、環戊基、環己基。再者，全部 $\text{R}^4$ 內之苯基之含量為30~70莫耳%之範圍內。

又，式中， $\text{R}^5$ 為相同或不同之氫原子、苯基或碳原子數1~6之烷基，式中，至少2個 $\text{R}^5$ 為氫原子。作為 $\text{R}^5$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、環戊基、環己基。再者，除氫原子以外之全部 $\text{R}^5$ 內之苯基之含量為30~70莫耳%之範圍內。

又，式中， $\text{R}^6$ 為氫原子或碳原子數1~6之烷基。作為 $\text{R}^6$ 之烷基，

可例示甲基、乙基、丁基、戊基、己基。

又，式中， $n$ 為5~1,000之範圍內之整數。

又，式中， $p$ 為正數， $q$ 為0或正數， $r$ 為0或正數， $s$ 為0或正數， $t$ 為0或正數，且， $q/p$ 為0~10之範圍內之數， $r/p$ 為0~5之範圍內之數， $s/(p+q+r+s)$ 為0~0.3之範圍內之數， $t/(p+q+r+s)$ 為0~0.4之範圍內之數。

於此種(C)成分中，較佳為其全部為通式：



所表示之有機三矽氧烷，但未經過反應性熱塑體而形成硬化物之情形時，較佳為(C)成分之至少50質量%為上述有機三矽氧烷。進而，為了調整所獲得之硬化物之硬度，亦可適時添加其他有機矽氧烷。

於本組合物中，(C)成分之含量係相對於(A)成分與(B)成分中之烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.5~2莫耳之範圍內之量，較佳為成為0.5~1.5莫耳之範圍內之量。其原因在於：若(C)成分之含量為上述範圍內，則所獲得之硬化物之硬度良好。

(D)成分係用以促進(A)成分及(B)成分中之烯基與(C)成分中之與矽原子鍵結之氫原子之矽氫化反應的矽氫化反應用觸媒。作為(D)成分，可例示鉑系觸媒、銻系觸媒、鈮系觸媒，由於可顯著促進本組合物之硬化，故而較佳為鉑系觸媒。作為該鉑系觸媒，可例示鉑微粉末、氯鉑酸、氯鉑酸之醇溶液、鉑-烯基矽氧烷錯合物、鉑-烯烴錯合物、鉑-羰基錯合物，尤佳為鉑-烯基矽氧烷錯合物。作為該烯基矽氧烷，可例示1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷、1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙烯基環四矽氧烷、將其等烯基矽氧烷之一部分甲基取代為乙基及苯基等之烯基矽氧烷、將其等烯基矽氧烷之乙烯基取代為烯丙基及己烯基等之烯基矽氧烷。尤其是，由於該鉑-烯基矽氧烷錯合物之穩定性良好，故而較佳為1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷。又，由於可

提高該鉑-烯基矽氧烷錯合物之穩定性，故而較佳為於該錯合物中添加1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷、1,3-二烯丙基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷、1,3-二乙烯基-1,3-二甲基-1,3-二苯基二矽氧烷、1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四苯基二矽氧烷、1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙烯基環四矽氧烷等烯基矽氧烷或二甲基矽氧烷低聚物等有機矽氧烷低聚物，尤佳為添加烯基矽氧烷。

於本組合物中，(D)成分之含量只要為對於促進(A)成分及(B)成分中之烯基與(C)成分中之與矽原子鍵結之氫原子之矽氫化反應而言充分之量，則無特別限定，較佳為相對於本組合物，本成分中之金屬原子以質量單位計較佳為成為0.01~500 ppm之範圍內之量，進而較佳為成為0.01~100 ppm之範圍內之量，尤佳為成為0.01~50 ppm之範圍內之量。其原因在於：若(D)成分之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之組合物之硬化良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物難以產生著色。

(E)成分係用以將本組合物及其硬化物著色為白色而提高光反射率的除氧化鈦以外之白色顏料。作為(E)成分，可例示氧化鋅、鈦酸鋇、氧化鋁、氧化鋯、氧化鎂、三氧化銻等金屬氧化物；硫酸鋇、硫化鋅、氮化硼、氮化鋁等無機化合物，就350~400 nm之紫外線區域之光反射率及硬化物對金屬之接著性之觀點而言，較佳為氧化鋅、鈦酸鋇及硫酸鋇中之任一種或者其等之混合物，尤其是由於在較薄厚度下之反射率(隱蔽性)優異，故而較佳為鈦酸鋇。

(E)成分之平均粒徑或形狀並無限定，平均粒徑較佳為0.05~10.0  $\mu\text{m}$ 之範圍內，尤佳為0.1~5.0  $\mu\text{m}$ 之範圍內。關於白色顏料，為了提高與樹脂或無機填充劑之相溶性、分散性，可使用利用矽烷偶合劑、二氧化矽、氧化鋁等進行表面處理而成者。

於本組合物中，(E)成分之含量相對於(A)成分~(D)成分之合計

100質量份為50質量份以上，較佳為60質量份以上。其原因在於：若(E)成分之含量為上述下限以上，則所獲得之硬化物之光反射率良好。

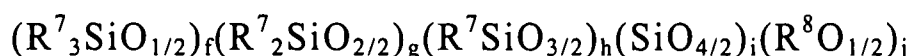
(F)成分係用以改善本組合物之由黏度上升引起之作業性下降、減小硬化物之線膨脹率、改善尺寸穩定性的球狀二氧化矽、非球狀二氧化矽或玻璃纖維。作為(F)成分之球狀二氧化矽，可例示乾式二氧化矽、濕式二氧化矽、熔融二氧化矽、爆燃二氧化矽，由於對本組合物之填充性良好，故而較佳為熔融二氧化矽。作為(F)成分之非球狀二氧化矽，可例示石英粉末、玻璃珠，較佳為石英粉末。作為(F)成分之玻璃纖維，可例示短切玻璃纖維、磨碎玻璃纖維，較佳為磨碎玻璃纖維。

(F)成分之球狀二氧化矽之粒徑並無限定，平均粒徑較佳為0.1~50 μm之範圍內，尤佳為0.5~20 μm之範圍內。(F)成分之非球狀二氧化矽之平均粒徑並無限定，較佳為0.1~20 μm之範圍內，尤佳為0.5~10 μm之範圍內。(F)成分之玻璃纖維之形狀並無限定，纖維直徑較佳為1~50 μm之範圍內，尤佳為5~20 μm之範圍內，又，其纖維長度較佳為5~500 μm之範圍內，尤佳為10~300 μm之範圍內。

於本組合物中，(F)成分之含量相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為100質量份以上，較佳為120質量份以上。其原因在於：若(F)成分之含量為上述下限以上，則所獲得之硬化物之線膨脹率較低，尺寸穩定性良好。

於本組合物中，(E)成分及(F)成分之合計含量相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為400質量份以下，較佳為350質量份以下。其原因在於：若(E)成分及(F)成分之合計含量為上述上限以下，則所獲得之組合物之黏度良好。

於本組合物中，作為用以提高對在硬化中途相接觸之基材之接著性的接著促進劑，較佳為含有(G)平均單元式：



所表示之有機聚矽氧烷。

式中， $R^7$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基、碳原子數2~6之烯基或含環氧基之有機基。作為 $R^7$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、庚基、環戊基、環庚基。作為 $R^7$ 之烯基，可例示乙烯基、烯丙基、丁烯基、戊烯基、己烯基。作為 $R^7$ 之含環氧基之有機基，可例示3-縮水甘油氧基丙基、4-縮水甘油氧基丁基、2-(3,4-環氧環己基)乙基、3-(3,4-環氧環己基)丙基。再者，式中，全部 $R^7$ 內之苯基之含量為15~60莫耳%之範圍內，較佳為20~50莫耳%之範圍內。其原因在於：若苯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之接著性及反射率良好，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之接著性及耐熱性良好。式中，全部 $R^7$ 內之烯基之含量為3~30莫耳%之範圍內，較佳為5~20莫耳%之範圍內。其原因在於：若烯基之含量為上述範圍內，則所獲得之硬化物之接著性良好。又，全部 $R^7$ 內之含環氧基之有機基之含量為5~30莫耳%之範圍內，較佳為10~20莫耳%之範圍內。其原因在於：若含環氧基之有機基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之接著性良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則可獲得良好之耐熱性。

又，式中， $R^8$ 為氫原子或碳原子數1~6之烷基。作為 $R^6$ 之烷基，可例示甲基、乙基、丁基、戊基、己基。

又，式中， $f$ 係表示通式： $R^7_3SiO_{1/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq f \leq 0.5$ 之數，較佳為滿足 $0 \leq f \leq 0.4$ 之數。其原因在於：若 $f$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之接著性良好。又，式中， $g$ 係表示通式： $R^7_2SiO_{2/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq g \leq 0.9$ 之數，較佳為滿足 $0 \leq g \leq 0.8$ 之數。其原因在於：若 $g$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之接著性良好。又， $h$ 係表示通式： $R^7SiO_{3/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq h \leq 0.7$ 之

數，較佳為滿足 $0 \leq h \leq 0.6$ 之數。其原因在於：若 $h$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之接著性良好。又， $i$ 係表示通式： $\text{SiO}_{4/2}$ 所表示之矽氧烷單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq i \leq 0.3$ 之數，較佳為滿足 $0 \leq i \leq 0.2$ 之數。其原因在於：若 $i$ 為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之接著性良好。又， $j$ 係表示通式： $\text{R}^6\text{O}_{1/2}$ 所表示之單元之比例之數，且係滿足 $0 \leq j \leq 0.02$ 之數。其原因在於：若 $j$ 為上述範圍之上限以下，則本組合物之可使時間及保存穩定性良好。再者，式中， $f$ 、 $g$ 、 $h$ 及 $i$ 之合計為1。

於本組合物中，(G)成分之含量較佳為相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份成為0.5～10.0質量份之範圍內之量，尤佳為成為1.0～8.0質量份之範圍內之量。其原因在於：若(G)成分之含量為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之耐熱性良好，另一方面，若為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之接著性良好。

於本組合物中，不損害本組合物之硬化性，根據延長常溫下之可使時間之目的、及提高光半導體裝置用密封材對本組合物之硬化物之接著性之目的，較佳為含有作為第2交聯劑之(H)一分子中具有2個以上之與矽原子鍵結之氫原子且苯基相對於與矽原子鍵結之全部有機基之含量未達20莫耳%的有機聚矽氧烷。

(H)成分中之與矽原子鍵結之氫原子於一分子中為2個以上，其原因在於：用以硬化之交聯充分，所獲得之硬化物之硬度良好。又，作為(H)成分中之與矽原子鍵結之有機基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、庚基、環戊基、環己基、環庚基等烷基；苯基、甲苯基、二甲苯基等芳基；苄基、苯乙基等芳烷基等不具有脂肪族不飽和鍵之一價烴基，較佳為苯基或碳原子數1～6之烷基。(H)成分中之苯基相對於與矽原子鍵結之全部有機基之含量未達20莫耳%，較佳為10莫耳%以下。又，(H)成分中之與矽原子鍵結之全部有機基之90莫耳%

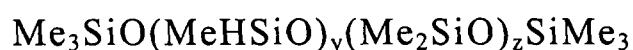
以上較佳為甲基。其原因在於：若苯基之含量未達上述上限，且甲基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物對各種基材之接著性良好，又，光半導體裝置用密封材對硬化物之接著性良好。

作為此種(H)成分，可例示式：



(式中，Me表示甲基，k為4~8之整數)

所表示之有機聚矽氧烷、通式：



(式中，Me表示甲基，x為5以上之整數，y、z分別為5以上之整數，但y係與z相同或者其以上)

所表示之有機聚矽氧烷。

於本組合物中，(H)成分之含量相對於(A)成分與(B)成分中之烯基之合計1莫耳，為本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.001~0.20莫耳之範圍內之量，較佳為成為0.002~0.10莫耳之範圍內之量。其原因在於：若(H)成分之含量為上述範圍內，則組合物在常溫下之可使時間延長，光半導體裝置用密封材對所獲得之硬化物之接著性變得良好，而且將本組合物進行矽氫化反應所獲得之反應性熱塑體於高溫下之流動性變得良好。

於使用本組合物並藉由轉移成形、射出成型或壓縮成形而製作光半導體裝置時，為了提高自模具之硬化物之脫模性，本組合物中亦可含有碳原子數為10以上之羧酸或其金屬鹽作為脫模劑。作為此種羧酸，可例示肉豆蔻酸、棕櫚酸、硬脂酸、油酸、亞麻油酸、次亞麻油酸，尤佳為油酸、亞麻油酸、次亞麻油酸等分子中至少具有1個碳-碳雙鍵者。具體而言，可例示油酸、亞麻油酸、次亞麻油酸、油酸鋅、油酸鋁、油酸鈣。就氧化所致之經年劣化較少之觀點而言，較佳為一

分子中具有至少1個碳-碳雙鍵之油酸及其金屬鹽。

上述羧酸或其金屬鹽之含量相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份，較佳為0.01～8質量份之範圍內，尤佳為0.05～5質量份之範圍內。其原因在於：若羧酸或其金屬鹽之含量為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物不會變得太軟，另一方面，若為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之脫模性良好。

又，於本組合物中，亦可含有除羧酸或其金屬鹽以外之脫模劑。作為此種脫模劑，可例示巴西棕櫚蠟、甲基聚矽氧油、氟聚矽氧油。

本組合物至少包含上述(A)成分～(F)成分，作為其他任意成分，亦可含有1-乙炔基-1-環己醇、2-甲基-3-丁炔-2-醇、3,5-二甲基-1-己炔-3-醇、2-苯基-3-丁炔-2-醇等炔醇；3-甲基-3-戊烯-1-炔、3,5-二甲基-3-己烯-1-炔等烯炔化合物；1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙炔基環四矽氧烷、1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四己烯基環四矽氧烷、苯并三唑等反應抑制劑。該反應抑制劑之含量並無限定，相對於本組合物，以質量單位計較佳為1～5,000 ppm之範圍內。

於本組合物中，亦可含有除上述(G)成分以外之接著促進劑。作為此種接著促進劑，可列舉具有三烷氧基矽烷氧基(例如，三甲氧基矽烷氧基、三乙氧基矽烷氧基)或三烷氧基矽烷基烷基(例如，三甲氧基矽烷基乙基、三乙氧基矽烷基乙基)及氫矽烷基或烯基(例如，乙烯基、烯丙基)之有機矽烷，或者矽原子數4～20左右之直鏈狀結構、支鏈狀結構或環狀結構之有機矽氧烷低聚物；具有三烷氧基矽烷氧基或三烷氧基矽烷基烷基及甲基丙烯醯氧基烷基(例如，3-甲基丙烯醯氧基丙基)之有機矽烷，或者矽原子數4～20左右之直鏈狀結構、支鏈狀結構或環狀結構之有機矽氧烷低聚物；具有三烷氧基矽烷氧基或三烷氧基矽烷基烷基及環氧基鍵結烷基(例如，3-縮水甘油氧基丙基、4-縮水甘油氧基丁基、2-(3,4-環氧環己基)乙基、3-(3,4-環氧環己基)丙基)之有機矽

烷，或者矽原子數4~20左右之直鏈狀結構、支鏈狀結構或環狀結構之有機矽氧烷低聚物；胺基烷基三烷氧基矽烷與環氧基鍵結烷基三烷氧基矽烷之反應物、含環氧基之聚矽酸乙酯，具體而言可列舉乙烷基三甲氧基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、氫化三乙氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷、2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷與3-胺基丙基三乙氧基矽烷之反應物、矽烷醇基封阻甲基乙烷基矽氧烷低聚物與3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷之縮合反應物、矽烷醇基封阻甲基乙烷基矽氧烷低聚物與3-甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷之縮合反應物、三(3-三甲氧基矽烷基丙基)異氰尿酸酯、酸酐。

進而，於使本組合物未經過反應性熱塑體而形成硬化物之情形時，為了提高本組合物之處理作業性而調整所獲得之硬化物之硬度，亦可含有與矽原子鍵結之全部有機基之30~60莫耳%為碳原子數2~6之烯基的矽原子數為10以下之有機聚矽氧烷。作為該有機聚矽氧烷中之烯基，可例示乙烷基、烯丙基、丁烯基、戊烯基、己烯基。又，該有機聚矽氧烷中之除烯基以外之與矽原子鍵結之有機基並無特別限定，但可例示甲基、苯基，較佳為甲基。又，與矽原子鍵結之全部有機基之30~60莫耳%為碳原子數2~6之烯基。其原因在於：若烯基之含量為上述範圍之下限以上，則所獲得之硬化物之硬度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。進而，矽原子數為10以下，其原因在於：若矽原子數為10以下，則組合物之黏度良好。

作為此種有機聚矽氧烷，可例示1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙烷基環四矽氧烷、四(二甲基乙烷基矽烷氧基)矽烷、甲基三(二甲基乙烷基

矽烷氧基)矽烷及苯基三(二甲基乙基矽烷氧基)矽烷。

該有機聚矽氧烷之含量較佳為相對於(A)成分100質量份成為0~50質量份之範圍內之量，於將本組合物用作液狀之反應性聚矽氧組合物時，尤佳為成為5~40質量份之範圍內之量。其原因在於：若該有機聚矽氧烷之含量為上述範圍之下限以上，則組合物之黏度良好，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之硬化物之機械強度良好。

進而，於本組合物中，只要不損害本發明之目的，作為其他任意成分，亦可含有除球狀二氧化矽、非球狀二氧化矽、玻璃纖維以外之無機填充劑，聚甲基丙烯酸酯樹脂或聚矽氧樹脂等有機樹脂微粉末；苯并三唑、羧基苯并三唑等防腐蝕劑、耐熱劑、阻燃性賦予劑、溶劑等。

本組合物在25℃下之黏度並無特別限定，但獲得反應性熱塑體之情形時，較佳為10,000 Pa·s以下，尤佳為10~5,000 Pa·s之範圍內。其原因在於：若黏度為上述範圍之下限以上，則容易形成所需形狀之反應性熱塑體，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之組合物之處理作業性良好。

又，於將本組合物用作液狀之反應性聚矽氧組合物之情形時，其於25℃下之黏度較佳為5~200 Pa·s之範圍內，進而較佳為5~120 Pa·s之範圍內，尤佳為10~80 Pa·s之範圍內。其原因在於：若黏度為上述範圍之下限以上，則成形時抑制毛邊產生，另一方面，若為上述範圍之上限以下，則所獲得之組合物之處理作業性良好。

其次，對本發明之反應性熱塑體進行詳細說明。

本發明之反應性熱塑體係進行上述反應性聚矽氧硬化物之矽氫化反應直至轉化率成為70%~95%而成者。所謂矽氫化之轉化率，係指將進行矽氫化反應之全官能基量中實際引起反應者之比例以百分比表示者，其確認法並無特別限定，例如可使用示差掃描熱量計(DSC)，測

定反應性聚矽氧組合物與所獲得之反應性熱塑體之反應發熱量，並根據其差異簡單地算出轉化率。反應係藉由室溫或加熱而進行反應，但為有效獲得反應性熱塑體，較佳為進行加熱。作為該加熱溫度，較佳為50~150°C之範圍內，進而較佳為80~130°C之範圍內。

本發明之反應性熱塑體較佳為在25°C下為固體或者黏度為1,000,000 Pa·s以上，且在100°C下黏度為100,000 Pa·s以下之液狀者。

又，本發明之反應性熱塑體較佳為JIS K 7215-1986「塑料之硬度計硬度試驗方法」所規定之D型硬度計硬度在25°C下為30以上。

此種本發明之反應性熱塑體係於加熱至100°C以上時暫時流動化，其後進行矽氫化反應，而提供硬化物。

其次，對本發明之硬化物進行詳細說明。

本發明之硬化物係將上述反應性熱塑體進行加熱而進行剩餘之矽氫化反應所獲得者，或者未經過反應性熱塑體，將上述液狀之反應性聚矽氧組合物進行加熱而進行矽氫化反應所獲得者，且於300°C下為固體或者黏度為1,000,000 Pa·s以上。硬化物之硬度並無特別限定，但JIS K 7215-1986「塑料之硬度計硬度試驗方法」所規定之D型硬度計硬度較佳為60以上，進而較佳為65以上，尤佳為70以上。其原因在於：若硬度為上述下限以上，則硬化物之尺寸穩定性提高，難以引起硬化物之變形。

又，本硬化物之反射率並無特別限定，但藉由JIS K 7375:2008「塑料-全光線透過率及全光線反射率之求取方法」所規定之方法進行測定之全光線反射率較佳為75%以上，尤佳為80%以上。

又，本硬化物之線膨脹率並無特別限定，但作為藉由JIS K 7197-1991「利用熱機械分析對塑料之線膨脹率的試驗方法」所規定之方法進行測定之線膨脹率在25~200°C之溫度範圍內之平均值，較佳為200 ppm/°C以下，尤佳為150 ppm/°C以下。

又，本發明之硬化物較佳為將上述反應性熱塑體或上述反應性聚矽氧組合物在加熱至100°C以上之金屬模具中進行硬化而成。作為形成本硬化物作為光半導體裝置之反射材之情形時之硬化方法，例如可列舉壓縮成形、轉移成形、射出成形。

其次，對本發明之光半導體裝置進行詳細說明。

本發明之光半導體裝置之特徵在於：由上述硬化物形成光反射材。作為此種光半導體裝置，可例示發光二極體(LED)。於該光半導體裝置中，光反射材亦作為光半導體裝置之框材(封裝材)而發揮功能。

將作為本半導體裝置之一例的表面安裝型LED之剖面圖示於圖1。於圖1所示之LED中，將光半導體元件1藉由黏晶材而黏晶於引線框架2上，並藉由接合線4、4'打線接合有該光半導體元件1與引線框架2、3。於該光半導體元件1之除上部以外之周圍，具有包含上述硬化物之光反射材5，並由密封材6密封該光反射材5之內側之光半導體元件1。

作為製造圖1所示之表面安裝型LED之方法，可例示包含如下步驟之方法：(1)將本發明之反應性熱塑體藉由轉移成形或壓縮成形而形成與引線框架2、3成為一體之光反射材5；(2)於引線框架2上藉由黏晶材而黏晶光半導體元件1；(3)藉由接合線4、4'打線接合光半導體元件1與引線框架2、3；及，(4)將光半導體元件1密封於密封材6。

#### [實施例]

對本發明之硬化性聚矽氧組合物、反應性熱塑體、硬化物及光半導體裝置，藉由實施例進行詳細說明。再者，式中之Me、Ph、Vi及Ep分別表示甲基、苯基、乙烯基及3-縮水甘油氧基丙基。

又，反應性熱塑體及硬化物之硬度係利用JIS K 7215-1986「塑料之硬度計硬度試驗方法」所規定之D型硬度計進行測定。

又，硬化物之彎曲強度係藉由JIS K 6911-1995「熱硬化性塑料一般試驗方法」所規定之方法進行測定。

又，硬化物之全光線反射率係藉由JIS K 7375:2008「塑料-全光線透過率及全光線反射率之求取方法」所規定之方法進行測定。試驗片使用厚度2 mm者。

又，關於硬化物之隱蔽性，使用厚度0.2 mm之試驗片藉由上述全光線反射率測定進行評價。

又，關於硬化物在400 nm之波長中之光反射率，使用上述全光線反射率中所製作之試驗片，利用分光光度計(島津製作所製造之UV-3100PC)進行測定。

又，硬化物之線膨脹率係藉由JIS K 7197-1991「利用熱機械分析對塑料之線膨脹率的試驗方法」所規定之方法測定在25~200°C之範圍內之平均線膨脹率。

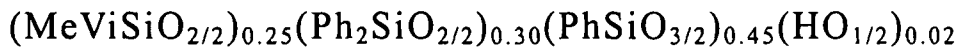
又，於25 mm×75 mm之鋁板上，將反應性聚矽氧組合物利用分配器各按約100 mg塗佈於5處，該組合物上蓋上厚度1 mm之6 mm見方之鋁製晶片，並利用1 kg之板進行壓接。接著，將其於150°C下加熱2小時，並將反應性聚矽氧組合物進行硬化。冷卻至室溫後，利用剪切強度測定裝置(西進商事股份有限公司製造之黏結強度試驗機SS-100KP)測定晶片剪切強度。又，以與上述相同之方式，亦對鍍銀鋼板製晶片對鍍銀鋼板之晶片剪切強度進行測定。

又，關於本組合物之模具脫模性，使用轉移成型機，在成型溫度120°C、成形時間5分鐘之條件下進行與引線框架之一體成型10次，並藉由確認成型後之光半導體裝置中產生龜裂及自引線框架之剝離等成型不良之次數而進行評價。

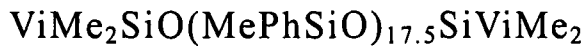
又，關於矽氫化反應之轉化率，利用示差掃描熱量計求出各狀態下之反應熱量，並根據其差異而算出。

#### [實施例1]

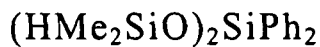
將平均單元式：



所表示之甲基乙炔基苯基聚矽氧烷100質量份、平均式：



所表示之二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷13.3質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷33.3質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為1.15莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.5  $\mu\text{m}$ 之鈦酸鋇(富士鈦工業製造之HPBT-1)122質量份、及平均粒徑5  $\mu\text{m}$ 之破碎石英粉末(龍森製造之CRYSTALITE VX-52)220質量份進行混合，從而製備出在25 $^{\circ}\text{C}$ 下之黏度為380 Pa $\cdot$ s之反應性聚矽氧組合物。

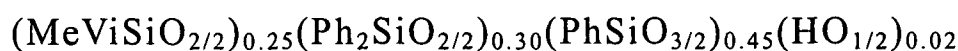
將該組合物在120 $^{\circ}\text{C}$ 下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25 $^{\circ}\text{C}$ 下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為63、在100 $^{\circ}\text{C}$ 下之黏度為600 Pa $\cdot$ s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為85%。

當將所獲得之熱塑體在150 $^{\circ}\text{C}$ 下加熱時，進行了流動化後，失去流動性。在150 $^{\circ}\text{C}$ 下加熱1小時所獲得之硬化物係於300 $^{\circ}\text{C}$ 下無法測定黏度之固體，在25 $^{\circ}\text{C}$ 下之D型硬度計硬度為82，彎曲強度為15 MPa，全光線反射率為93.5%(厚度2 mm之試驗片)及88.1%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為73.2%，硬化物之線膨脹率為115 ppm/ $^{\circ}\text{C}$ 。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為7.9及6.9 N/mm $^2$ 。

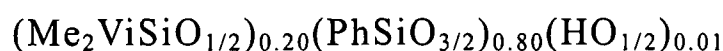
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果10次中有4次確認到成型不良，但不存在成型不良者無毛邊或孔隙，故而可獲得良好之成型物。

#### [實施例2]

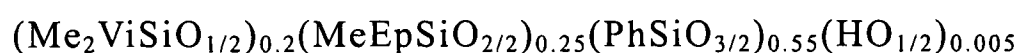
將平均單元式：



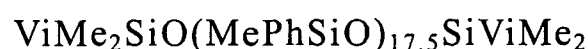
所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷48.4質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷51.6質量份、平均單元式：



所表示之含環氧基之聚矽氧烷1.5質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷12.9質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷29.0質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷、二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷及含環氧基之聚矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.94莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、油酸(東京化成工業製造)0.2質量份、平均一次粒徑0.5 μm之鈦酸鋇(富士鈦工業製造之HPBT-1)118質量份、及平均粒徑15 μm之球狀二氧化矽(新日鐵Materials Micron公司製造之HS-202)213質量份進行混合，從而製備出在25°C下之黏度為170 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

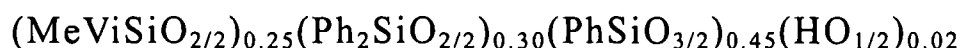
將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為61、在100°C下之黏度為5,900 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為79%。

當將所獲得之熱塑體加熱至150°C時，進行了流動化後，失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係於300°C下無法測定黏度之固體，在25°C下之D型硬度計硬度為86，彎曲強度為24 MPa，全光線反射率為93.3%(厚度2 mm之試驗片)及87.7%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為74.1%，硬化物之線膨脹率為101 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為11.2及9.1 N/mm<sup>2</sup>。

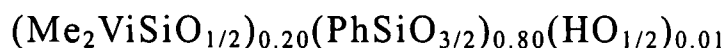
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果未確認到成型不良，可獲得無毛邊或孔隙之良好之成形物。

### [實施例3]

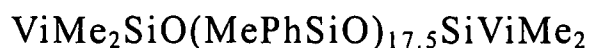
將平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷48.4質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷51.6質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷12.9質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷29.0質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成

為0.96莫耳之量)、1,3,5,7-四甲基四環矽氧烷0.5質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳,本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.0467莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物,鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物,以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.5  $\mu\text{m}$ 之鈦酸鋇(富士鈦工業製造之HPBT-1)118質量份、及平均切割長度20  $\mu\text{m}$ 且平均纖維直徑3  $\mu\text{m}$ 之磨碎玻璃纖維(旭纖維玻璃製造之MF03JB1-20)213質量份進行混合,從而製備出在25°C下之黏度為150 Pa·s之反應性聚矽氧組合物。

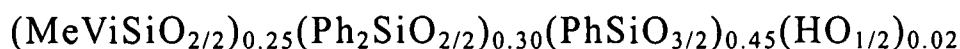
將該組合物在120°C下加熱10分鐘,結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為69、在100°C下之黏度為19,500 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為86%。

當將所獲得之熱塑體加熱至150°C時,進行了流動化後,失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係在300°C以下不具有流動性,在25°C下之D型硬度計硬度為83,彎曲強度為18 MPa,全光線反射率為94.1%(厚度2 mm之試驗片)及88.2%(厚度0.2 mm之試驗片),在400 nm之波長製作光反射率為73.6%,硬化物之線膨脹率為103 ppm/°C。又,相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為9.2及7.6 N/mm<sup>2</sup>。

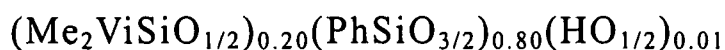
又,為製造圖1所示之光半導體裝置,將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次,結果10次中有5次確認到成型不良,但不存在成型不良者無毛邊或孔隙,故而可獲得良好之成型物。

#### [實施例4]

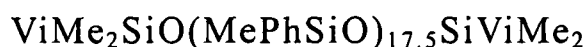
將平均單元式:



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷38.5質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷61.5質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷19.4質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷28.2質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.92莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、油酸(東京化成工業製造)0.2質量份、平均一次粒徑0.5  $\mu\text{m}$ 之氧化鋅(堺化學工業製造之氧化鋅1種)118質量份、及平均粒徑5  $\mu\text{m}$ 之破碎石英粉末(山森土本礦業所製造之Silisic SAB-500)213質量份進行混合，從而製備出在25°C下之黏度為450 Pa·s之反應性聚矽氧組合物。

將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為70、在100°C下之黏度為16,000 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為89%。

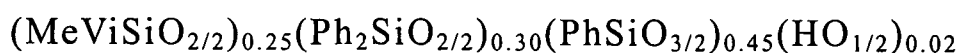
當將所獲得之熱塑體在150°C下加熱時，進行了流動化後，失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係在300°C以下不具有流動性，在25°C下之D型硬度計硬度為84，彎曲強度為21 MPa，全光線反射率為92.3%(厚度2 mm之試驗片)及82.4%(厚度0.2 mm之試驗片)，

在400 nm之波長製作光反射率為71.5%，硬化物之線膨脹率為121 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為8.8及7.5 N/mm<sup>2</sup>。

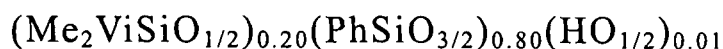
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果未確認到成型不良，可獲得無毛邊或孔隙之良好之成形物。

#### [實施例5]

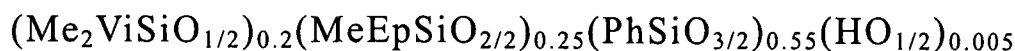
將平均單元式：



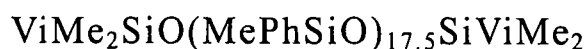
所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷38.5質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷61.5質量份、平均式：



所表示之含環氧基之聚矽氧烷1.5質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷25.6質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷28.2質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷、二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷及含環氧基之聚矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.89莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.5 μm之氧化鋅(堺化學工業製造之氧化鋅1種)128質量份、及平

均粒徑 15  $\mu\text{m}$  之球狀二氧化矽(新日鐵 Materials Micron 公司製造之 HS-202)256 質量份進行混合，從而製備出在 25°C 下之黏度為 168 Pa·s 之反應性聚矽氧組合物。

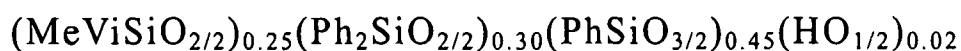
將該組合物在 120°C 下加熱 10 分鐘，結果可知曉其係在 25°C 下無法測定黏度之固體、D 型硬度計硬度為 71、在 100°C 下之黏度為 8,400 Pa·s 之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為 79%。

當將所獲得之熱塑體加熱至 150°C 時，進行了流動化後，失去流動性。在 150°C 下加熱 1 小時所獲得之硬化物係在 300°C 以下不具有流動性，在 25°C 下之 D 型硬度計硬度為 84，彎曲強度為 23 MPa，全光線反射率為 91.8%(厚度 2 mm 之試驗片)及 81.6%(厚度 0.2 mm 之試驗片)，在 400 nm 之波長製作光反射率為 71.3%，硬化物之線膨脹率為 90 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為 10.9 及 9.7 N/mm<sup>2</sup>。

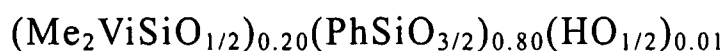
又，為製造圖 1 所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成型機進行與引線框架之一體成型 10 次，結果 10 次中有 4 次確認到成型不良，但不存在成型不良者無毛邊或孔隙，故而可獲得良好之成型物。

#### [實施例 6]

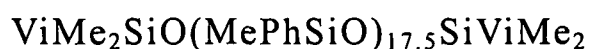
將平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷 38.5 質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷 61.5 質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷 25.6 質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷28.2質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.9莫耳之量)、1,3,5,7-四甲基四環矽氧烷0.5質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.0439莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、油酸(東京化成工業製造)0.2質量份、平均一次粒徑0.5  $\mu\text{m}$ 之氧化鋅(堺化學工業製造之氧化鋅1種)141質量份、及平均切割長度20  $\mu\text{m}$ 且平均纖維直徑3  $\mu\text{m}$ 之磨碎玻璃纖維(旭纖維玻璃製造之MF03JB1-20)282質量份進行混合，從而製備出在25°C下之黏度為375 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

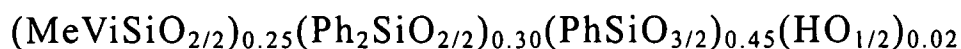
將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為72、在100°C下之黏度為10,500 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為86%。

當將所獲得之熱塑體加熱至150°C時，流動化後，失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係在300°C以下不具有流動性，在25°C下之D型硬度計硬度為85，彎曲強度為26 MPa，全光線反射率為92.3%(厚度2 mm之試驗片)及82.8%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為73.8%，硬化物之線膨脹率為72 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為8.9及7.9 N/mm<sup>2</sup>。

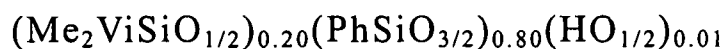
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果未確認到成型不良，可獲得無毛邊或孔隙之良好之成形物。

## [實施例7]

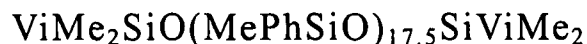
將平均單元式：



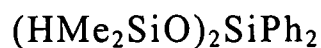
所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷48.4質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷51.6質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷12.9質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷29.0質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳,本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.96莫耳之量)、1,3,5,7-四甲基四環矽氧烷0.5質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳,本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.0467莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物,鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物,以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.45 μm之硫酸鋇(堺化學工業製造之BB-1)128質量份、及平均切割長度20 μm且平均纖維直徑3 μm之磨碎玻璃纖維(旭纖維玻璃製造之MF03JB1-20)213質量份進行混合,從而製備出在25°C下之黏度為236 Pa·s之反應性聚矽氧組合物。

將該組合物在120°C下加熱10分鐘,結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為64、在100°C下之黏度為24,500

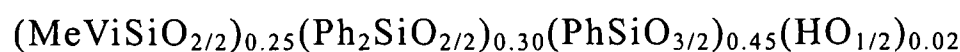
Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為82%。

當將所獲得之熱塑體加熱至150℃時，進行了流動化後，失去流動性。在150℃下加熱1小時所獲得之硬化物係在300℃以下不具有流動性，在25℃下之D型硬度計硬度為79，彎曲強度為14 MPa，全光線反射率為83.3%(厚度2 mm之試驗片)及66.8%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為81.2%，硬化物之線膨脹率為105 ppm/℃。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為10.4及9.7 N/mm<sup>2</sup>。

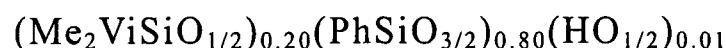
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果10次中有4次確認到成型不良，但不存在成型不良者無毛邊或孔隙，故而可獲得良好之成型物。

#### [實施例8]

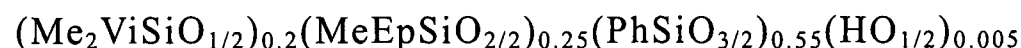
將平均單元式：



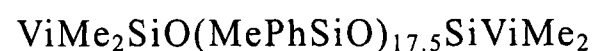
所表示之甲基乙炔基苯基聚矽氧烷38.5質量份、平均單元式：



所表示之甲基乙炔基苯基聚矽氧烷61.5質量份、平均式：



所表示之含環氧基之聚矽氧烷1.5質量份、平均式：



所表示之二甲基乙炔基矽氧基末端聚甲基苯基矽氧烷25.6質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷28.2質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷、二甲基乙炔基矽氧基末端聚甲基苯基矽氧烷及含環氧基之聚矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與

矽原子鍵結之氫原子成為0.89莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物,鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物,以質量單位計成為300 ppm之量)、油酸(東京化成工業製造)0.2質量份、平均一次粒徑0.45  $\mu\text{m}$ 之硫酸鋇(堺化學工業製造之BB-1)120質量份、及平均粒徑15  $\mu\text{m}$ 之球狀二氧化矽(新日鐵Materials Micron公司製造之HS-202)256質量份進行混合,從而製備出在25°C下之黏度為197 Pa·s之反應性聚矽氧組合物。

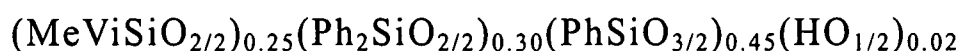
將該組合物在120°C下加熱10分鐘,結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為67、在100°C下之黏度為12,400 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為73%。

當將所獲得之熱塑體加熱至150°C時,進行了流動化後,失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係在300°C以下不具有流動性,在25°C下之D型硬度計硬度為81,彎曲強度為18 MPa,全光線反射率為82.1%(厚度2 mm之試驗片)及67.1%(厚度0.2 mm之試驗片),在400 nm之波長製作光反射率為79.4%,硬化物之線膨脹率為97 ppm/°C。又,相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為12.1及11.4 N/mm<sup>2</sup>。

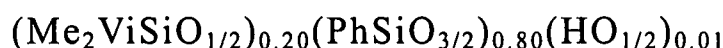
又,為製造圖1所示之光半導體裝置,將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次,結果未確認到成型不良,可獲得無毛邊或孔隙之良好之成形物。

[比較例1]

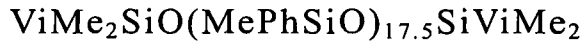
將平均單元式:



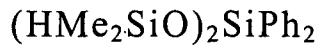
所表示之甲基乙炔基苯基聚矽氧烷48.4質量份、平均單元式:



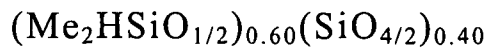
所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷51.6質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷12.9質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷14.5質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.48莫耳之量)、平均單元式：



所表示之含與矽原子鍵結之氫原子之甲基苯基聚矽氧烷14.5質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.48莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.2 μm之氧化鈦(堺化學工業製造之SX-3103)118質量份、及平均粒徑15 μm之球狀二氧化矽(新日鐵Materials Micron公司製造之HS-202)213質量份進行混合，從而製備出在25°C下之黏度為592 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為75，但是在100°C下亦無法測定黏度之固體狀，故而並非為熱塑體。矽氫化反應之轉化率為88%。

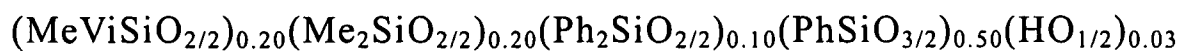
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將所獲得之固體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，但全部幾乎未填充到模具

內，可獲得不均勻之成形物。

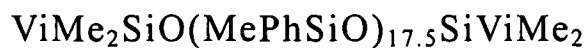
又，將該組合物直接在150°C下加熱2小時而形成硬化物。於該硬化物中，D型硬度計硬度為91，彎曲強度為28 MPa，全光線反射率為94.6%(厚度2 mm之試驗片)及90.8%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為33.1%，線膨脹率為89 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為8.2及6.8 N/mm<sup>2</sup>。

[比較例2]

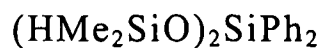
將平均單元式：



所表示之甲基乙炔基苯基聚矽氧烷100質量份、平均式：



所表示之二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷13.3質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷33.3質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為1.10莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.24 μm之氧化鈦(石原產業製造之Tipaue R-630)127質量份、及平均切割長度20 μm且平均纖維直徑3 μm之磨碎玻璃纖維(旭纖維玻璃製造之MF03JB1-20)220質量份進行混合，從而製備出在25°C下之黏度為195 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下之

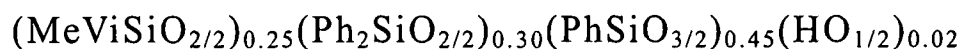
黏度為23,000 Pa·s，D型硬度計硬度為11，故而並非為熱塑體。矽氫化反應之轉化率為79%。

又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將所獲得之液體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，但全部均較大附著於模具，又，成形部分容易變形。

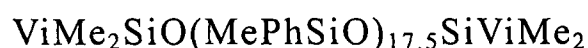
又，將該組合物直接在150°C下加熱2小時而形成硬化物。於該硬化物中，D型硬度計硬度為76，彎曲強度為9.4 MPa，全光線反射率為94.3%(厚度2 mm之試驗片)及91.2%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為31.5%，線膨脹率為91 ppm/°C。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為5.4及4.7 N/mm<sup>2</sup>。

### [比較例3]

將平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷100質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷13.3質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷33.3質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為1.15莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.5 μm之鈦酸鋇(富士鈦工業製造之HPBT-1)65質量份、及平均粒徑5 μm之破碎石英粉末(龍

森製造之CRYSTALITE VX-52)285質量份進行混合，從而製備出在25℃下之黏度為330 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

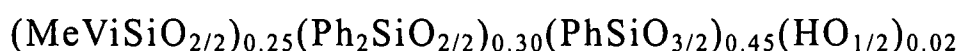
將該組合物在120℃下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25℃下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為62、在100℃下之黏度為3,900 Pa·s之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為84%。

當將所獲得之熱塑體在150℃下加熱時，進行了流動化後，失去流動性。在150℃下加熱1小時所獲得之硬化物係在300℃以下不具有流動性，在25℃下之D型硬度計硬度為85，彎曲強度為19 MPa，全光線反射率為55.4%(厚度2 mm之試驗片)及51.7%(厚度0.2 mm之試驗片)，在400 nm之波長製作光反射率為34.5%，硬化物之線膨脹率為93 ppm/℃。又，相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為7.0及6.1 N/mm<sup>2</sup>。

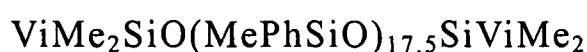
又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果10次中有5次確認到成型不良，但可獲得無毛邊或孔隙之良好之成形物。

#### [比較例4]

將平均單元式：



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷100質量份、平均式：



所表示之二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷13.3質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷33.3質量份(相對於上述甲基乙烯基苯基聚矽氧烷與二甲基乙烯基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成

為1.15莫耳之量)、鉑之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物,鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物,以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.24  $\mu\text{m}$ 之氧化鈦(石原產業製造之Tipaue R-630)224質量份、及平均粒徑5  $\mu\text{m}$ 之破碎石英粉末(龍森製造之CRYSTALITE VX-52)117質量份進行混合,從而製備出在25°C下之黏度為1,150 Pa·s之硬化性聚矽氧組合物。

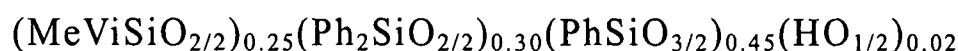
將該組合物在120°C下加熱10分鐘,結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體、D型硬度計硬度為69,但是在100°C下之黏度高至2,000,000 Pa·s,故而並非為良好之熱塑體。矽氫化反應之轉化率為86%。

當將所獲得之固體在150°C下加熱時,進行了流動化後,失去流動性。在150°C下加熱1小時所獲得之硬化物係在300°C以下不具有流動性,在25°C下之D型硬度計硬度為87,彎曲強度為20 MPa,全光線反射率為93.5%(厚度2 mm之試驗片)及92.8%(厚度0.2 mm之試驗片),在400 nm之波長製作光反射率為30.9%,硬化物之線膨脹率為115 ppm/°C。又,相對於鋁板及鍍銀鋼板之晶片剪切強度分別為6.7及5.8 N/mm<sup>2</sup>。

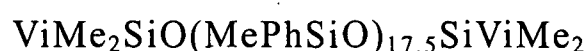
又,為製造圖1所示之光半導體裝置,將上述熱塑體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次,結果10次中有5次確認到成型不良,不存在成型不良者中亦有多個孔隙,故而無法獲得良好之成形物。

[比較例5]

將平均單元式:



所表示之甲基乙烯基苯基聚矽氧烷100質量份、平均式:



所表示之二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷13.3質量份、式：



所表示之1,1,5,5-四甲基-3,3-二苯基三矽氧烷33.3質量份(相對於上述甲基乙炔基苯基聚矽氧烷與二甲基乙炔基矽烷氧基末端聚甲基苯基矽氧烷之乙炔基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為1.15莫耳之量)、鉑之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物之1,3-二乙炔基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷溶液(相對於本組合物，鉑金屬以質量單位計成為5.0 ppm之量)、1-乙炔基-1-環己醇(相對於本組合物，以質量單位計成為300 ppm之量)、平均一次粒徑0.5  $\mu\text{m}$ 之鈦酸鋇(富士鈦工業製造之HPBT-1)102質量份、及平均粒徑5  $\mu\text{m}$ 之破碎石英粉末(龍森製造之CRYSTALITE VX-52)510質量份進行混合，結果可獲得粉體狀之混合物。

將該組合物在120°C下加熱10分鐘，結果可知曉其係在25°C下無法測定黏度之固體，且係不均勻之固體，又，在100°C下亦無法測定黏度之固體狀，故而並非為熱塑體。矽氫化反應之轉化率為82%。

又，為製造圖1所示之光半導體裝置，將所獲得之固體使用轉移成形機進行與引線框架之一體成型10次，結果全部均確認到模具未填充部，又，產生多個孔隙，故而無法獲得良好之成形物。

[產業上之可利用性]

本發明之反應性聚矽氧組合物可獲得反應性熱塑體，該反應性熱塑體適合於已加熱之模具中之硬化物之成形，所獲得之硬化物由於由熱或光所引起之機械強度下降或變色較少，光反射率尤其是350~400 nm之區域之光反射率較高，對金屬之接著力較高，因此較佳地用作發光二極體之白色框材之形成材料。

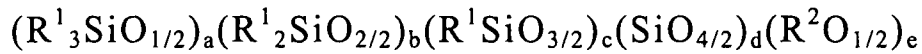
**【符號說明】**

- 1 光半導體元件
- 2 引線框架
- 3 引線框架
- 4,4' 接合線
- 5 光反射材
- 6 密封材

## 申請專利範圍

1. 一種反應性聚矽氧組合物，其至少包含：

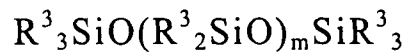
(A)平均單元式：



(式中， $R^1$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基，其中，全部 $R^1$ 之30~80莫耳%為苯基，全部 $R^1$ 之10~20莫耳%為烯基， $R^2$ 為氫原子或碳原子數1~6之烷基， $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$ 及 $e$ 分別為滿足 $0 \leq a \leq 0.30$ 、 $0 \leq b \leq 0.70$ 、 $0.3 \leq c \leq 0.9$ 、 $0 \leq d \leq 0.20$ 、 $0 \leq e \leq 0.10$ ，且 $a + b + c + d = 1$ 之數)

所表示之有機聚矽氧烷 100質量份、

(B)通式：



(式中， $R^3$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1~6之烷基或碳原子數2~6之烯基，其中，全部 $R^3$ 之30~70莫耳%為苯基，全部 $R^3$ 之至少1個為烯基， $m$ 為10~100之整數)

所表示之有機聚矽氧烷 0~40質量份、

(C)一分子中具有至少2個與矽原子鍵結之氫原子，且與矽原子鍵結之全部有機基之20~70莫耳%為苯基之有機聚矽氧烷{相對於(A)成分與(B)成分中之烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.5~2莫耳之量}、

(D)矽氫化反應用觸媒{對於促進(A)成分及(B)成分中之烯基與(C)成分中之與矽原子鍵結之氫原子之矽氫化反應而言充分之量}、

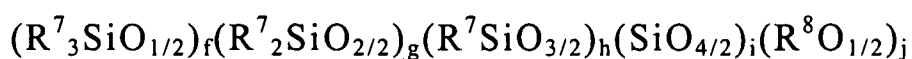
(E)除氧化鈦以外之白色顏料{相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為50質量份以上}、及

(F)非球狀二氧化矽、球狀二氧化矽或玻璃纖維{相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份為100質量份以上}，並且

(E)成分及(F)成分之合計含量相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份為400質量份以下。

2. 如請求項1之反應性聚矽氧組合物，其中(E)成分係選自由氧化鋅、鈦酸鋇及硫酸鋇所組成之群中之至少1種白色顏料。

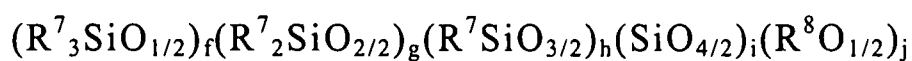
3. 如請求項1之反應性聚矽氧組合物，其進而含有相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份為0.5～10.0質量份之(G)平均單元式：



(式中， $R^7$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1～6之烷基、碳原子數2～6之烯基或含環氧基之有機基，其中，全部 $R^7$ 之15～60莫耳%為苯基，全部 $R^7$ 之3～30莫耳%為烯基，5～30莫耳%為含環氧基之有機基， $R^8$ 為氫原子或碳原子數1～6之烷基， $f$ 、 $g$ 、 $h$ 、 $i$ 及 $j$ 分別為滿足 $0 \leq f \leq 0.5$ 、 $0 \leq g \leq 0.9$ 、 $0 \leq h \leq 0.7$ 、 $0 \leq i \leq 0.3$ 、 $0 \leq j \leq 0.02$ ，且 $f+g+h+i=1$ 之數)

所表示之有機聚矽氧烷。

4. 如請求項2之反應性聚矽氧組合物，其進而含有相對於(A)成分～(D)成分之合計100質量份為0.5～10.0質量份之(G)平均單元式：



(式中， $R^7$ 為相同或不同之苯基、碳原子數1～6之烷基、碳原子數2～6之烯基或含環氧基之有機基，其中，全部 $R^7$ 之15～60莫耳%為苯基，全部 $R^7$ 之3～30莫耳%為烯基，5～30莫耳%為含環氧基之有機基， $R^8$ 為氫原子或碳原子數1～6之烷基， $f$ 、 $g$ 、 $h$ 、 $i$ 及 $j$ 分別為滿足 $0 \leq f \leq 0.5$ 、 $0 \leq g \leq 0.9$ 、 $0 \leq h \leq 0.7$ 、 $0 \leq i \leq 0.3$ 、 $0 \leq j \leq 0.02$ ，且 $f+g+h+i=1$ 之數)

所表示之有機聚矽氧烷。

5. 如請求項1至4中任一項之反應性聚矽氧組合物，其進而含有(H)一分子中具有至少2個與矽原子鍵結之氫原子且苯基相對於與矽原子鍵結之全部有機基之含量未達20莫耳%的有機聚矽氧烷，該(H)成分之含量係相對於(A)成分與(B)成分中之烯基之合計1莫耳，本成分中之與矽原子鍵結之氫原子成為0.001~0.20莫耳之量。
6. 如請求項1至4中任一項之反應性聚矽氧組合物，其進而含有相對於(A)成分~(D)成分之合計100質量份為0.01~8質量份之(I)一分子中具有至少1個碳-碳雙鍵之碳原子數為10以上之羧酸或其金屬鹽。
7. 如請求項1至4中任一項之反應性聚矽氧組合物，其於25°C下之黏度為10,000 Pa·s以下。
8. 一種反應性熱塑體，其係進行如請求項1至7中任一項之反應性聚矽氧組合物之矽氫化反應直至轉化率成為70~95%而成。
9. 如請求項8之反應性熱塑體，其於25°C下為固體或者黏度為1,000,000 Pa·s以上，且係於100°C下之黏度為100,000 Pa·s以下之液狀。
10. 如請求項8之反應性熱塑體，其於25°C下之JIS K 7215所規定之D型硬度計硬度為30以上。
11. 如請求項9之反應性熱塑體，其於25°C下之JIS K 7215所規定之D型硬度計硬度為30以上。
12. 如請求項8至11中任一項之反應性熱塑體，其係加熱至100°C以上，而形成於300°C以下不顯示出流動性之硬化物。
13. 一種硬化物，其係藉由將如請求項8至12中任一項之反應性熱塑體加熱至100°C以上而獲得，且於300°C下為固體或者黏度為1,000,000 Pa·s以上。

14. 一種硬化物，其係將如請求項1至7中任一項之反應性聚矽氧組合物進行硬化而成。
15. 如請求項13之硬化物，其全光線反射率為80%以上。
16. 如請求項14之硬化物，其全光線反射率為80%以上。
17. 如請求項13至16中任一項之硬化物，其於25~200℃之範圍內之平均線膨脹率為200 ppm/℃以下。
18. 一種光半導體裝置，其特徵在於：其係由如請求項13至17中任一項之硬化物形成光反射材而成。

# 圖式

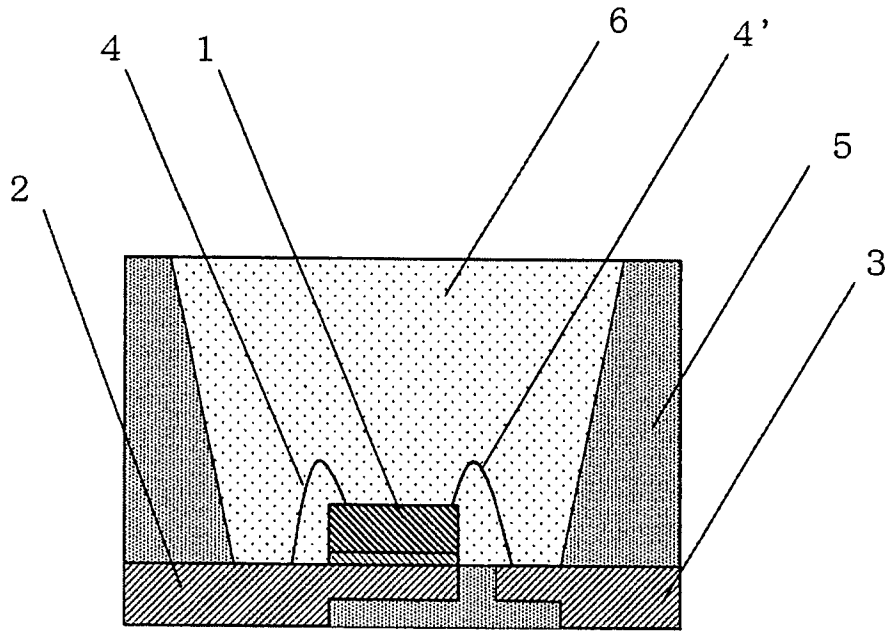


圖1