

(21)申請案號：107146342

(22)申請日：中華民國 107 (2018) 年 12 月 21 日

(51)Int. Cl. : C08G59/24 (2006.01)

C08G59/26 (2006.01)

H01L33/60 (2010.01)

H01L33/56 (2010.01)

(30)優先權：2017/12/21 日本

2017-245102

(71)申請人：日商大賽璐股份有限公司 (日本) DAICEL CORPORATION (JP)
日本

(72)發明人：鈴木弘世 SUZUKI, HIROSE (JP)

(74)代理人：丁國隆；黃政誠

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：19 項 圖式數：4 共 161 頁

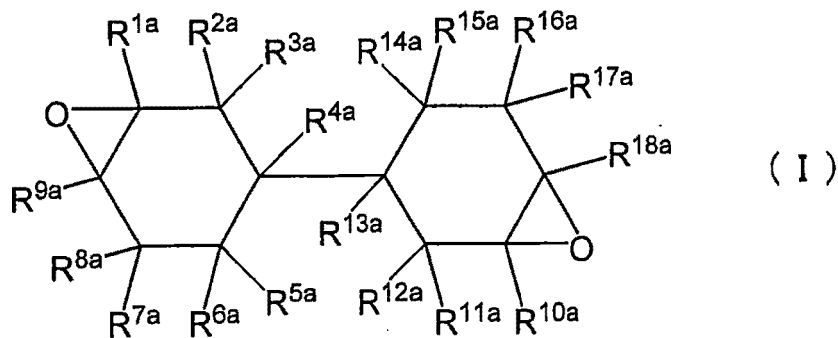
(54)名稱

硬化性環氧樹脂組成物及其硬化物、以及光半導體裝置

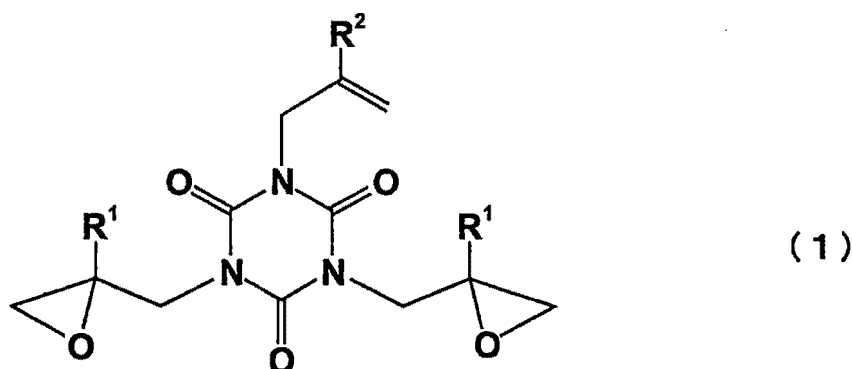
(57)摘要

本發明之目的在於提供一種硬化性環氧樹脂組成物，其適合壓縮成型，可提供：具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低之硬化物。

本發明提供硬化性環氧樹脂組成物、及其硬化物、以及包含由該硬化物所成的反射器之半導體裝置，其中該硬化性環氧樹脂組成物含有下述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)與硬化促進劑(F)，



[式中， $R^{1a}\sim R^{18a}$ 相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]；



[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烷基]。

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】(中文/英文)

硬化性環氧樹脂組成物及其硬化物、以及光半導體裝置

【技術領域】

【0001】本發明關於硬化性環氧樹脂組成物、將該硬化性環氧樹脂組成物予以硬化而成的硬化物、包含該硬化性環氧樹脂組成物之光反射用硬化性樹脂組成物、及至少具備光半導體元件與由上述硬化物所成的反射器之光半導體裝置。本案主張 2017 年 12 月 21 日在日本申請的日本特願 2017-245102 之優先權，於此援用其內容。

【先前技術】

【0002】近年來，於各種的室內或室外顯示板、圖像讀取用光源、交通信號、大型顯示器用單元等中，以光半導體元件(LED 元件)為光源的發光裝置(光半導體裝置)之採用係進展著。作為如此的發光裝置，一般而言，具有光半導體元件與保護該光半導體元件的周邊之透明樹脂，再者為了提高從光半導體元件所發出的光之取出效率，廣泛利用具有用於將光反射用的反射器(反射材料)之發光裝置。

【0003】對於上述反射器，要求具有高的光反射性，再者要求連續地持續發揮這樣高的光反射性。以往，作為上述反射器之構成材料，已知於以對苯二甲酸單元為必要構成單元的聚醯胺樹脂(聚鄰苯二甲醯胺樹脂)中，分散有無機填料等之樹脂組成物等(參照專利文獻 1~3)。

【0004】又，作為上述反射器之構成材料，另外已知以特定比例含有包含環氧樹脂的熱硬化性樹脂與折射率 1.6~3.0 的無機氧化物之光反射用熱硬化性樹脂組成物(參照專利文獻 4)。再者，已知例如含有熱硬化性樹脂成分與 1 種以上的填充劑成分，將熱硬化性樹脂成分全體的折射率與各填充劑成分的折射率之差及由各填充劑成分的體積比例所算出之參數控制在特定範圍之光反射用熱硬化性樹脂組成物(參照專利文獻 5)。另外，已知於脂環式環氧化合物中摻合有異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物與白色顏料之光反射用硬化性樹脂組成物(參照專利文獻 6)。

先前技術文獻

專利文獻

【0005】

- 專利文獻 1 日本特開 2000-204244 號公報
- 專利文獻 2 日本特開 2004-75994 號公報
- 專利文獻 3 日本特開 2006-257314 號公報
- 專利文獻 4 日本特開 2010-235753 號公報
- 專利文獻 5 日本特開 2010-235756 號公報
- 專利文獻 6 國際公開 WO2013/008680 號小冊子

【發明內容】

發明所欲解決的課題

【0006】然而，由專利文獻 1~3 記載之上述聚醯胺樹脂所成的反射器，係尤其在以高輸出的藍色光半導體或白色光半導體為光源的發光裝置中，因從光半導體元

件所發出的光或熱而隨著時間經過進行黃變等而劣化，有無法維持充分的光反射性之問題。再者，在隨著無鉛焊料之採用，而發光裝置之製造時的回焊步驟(焊料回流步驟)中的加熱溫度變高之傾向中，因如此的製程中所施加的熱而使上述反射器隨著時間經過而劣化，亦發生光反射性降低這樣之問題。

【0007】又，於由專利文獻 4、5 記載之光反射用熱硬化性樹脂組成物的硬化物所成之反射器中，作為上述熱硬化性樹脂的主成分係使用異三聚氰酸參縮水甘油酯，其耐熱性不充分，由於從光半導體元件所發出的熱或回焊步驟中的熱，而發生了光反射性隨著時間經過而降低之問題。於由專利文獻 6 記載之光反射用熱硬化性樹脂組成物的硬化物所成之反射器中，雖然比專利文獻 1~5 更改善耐熱性，但是隨著光半導體裝置之高輸出化，在高溫長時間之使用下，有了光反射性降低之問題。

【0008】另外，上述反射器一般係藉由將形成該反射器用的材料(樹脂組成物)交付給轉移成型或壓縮成型而製造。然而，以往之形成反射器用的樹脂組成物，由於多適合轉移成型，故雖然由該樹脂組成物所形成的反射器係耐熱性優異，但是藉由壓縮成型所形成的反射器多為耐熱性比較差的。

【0009】再者，對於上述反射器，除了上述之耐熱性、耐光性以外，還要求在因切削加工或溫度變化(例如，如回焊步驟之非常高溫的加熱，或冷熱循環等)等而施加應力時，不易發生裂痕(龜裂)(亦將如此的特性稱為

「抗龜裂性」)等之強韌性。若在反射器中發生裂痕，則光反射性降低(即，光的取出效率降低)，難以擔保發光裝置的可靠性。於由專利文獻 6 記載之光反射用硬化性樹脂組成物的硬化物所成的反射器中，有因冷熱循環等而容易發生裂痕之問題。

【0010】於是，現狀要求一種材料，其適合壓縮成型，可形成即使因更高輸出、短波長的光或高溫、冷熱循環等，也不發生劣化或裂痕等的不良狀況，光反射性不易隨著時間經過而降低之反射器，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異。

【0011】因此，本發明之目的在於提供一種硬化性環氧樹脂組成物，其適合壓縮成型，可提供：具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低之硬化物。

又，本發明之另一目的在於提供一種硬化物，其係將上述硬化性環氧樹脂組成物予以硬化而成，具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低。

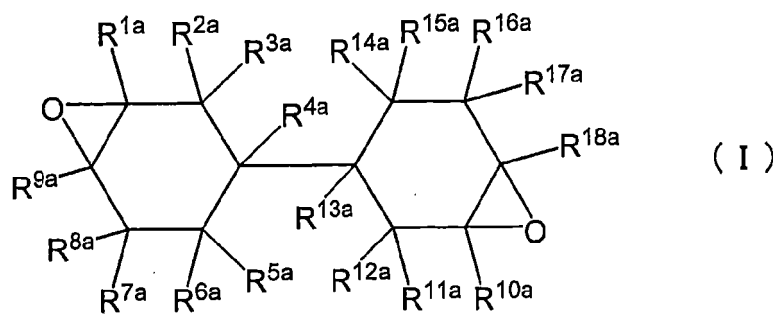
另外，本發明之又一目的在於提供一種光反射用硬化性樹脂組成物，其可得到抑制光的亮度隨著時間經過而降低的光半導體裝置。

還有，本發明之其它目的在於提供一種光半導體裝置，其係光的亮度不易隨著時間經過而降低，可靠性高。

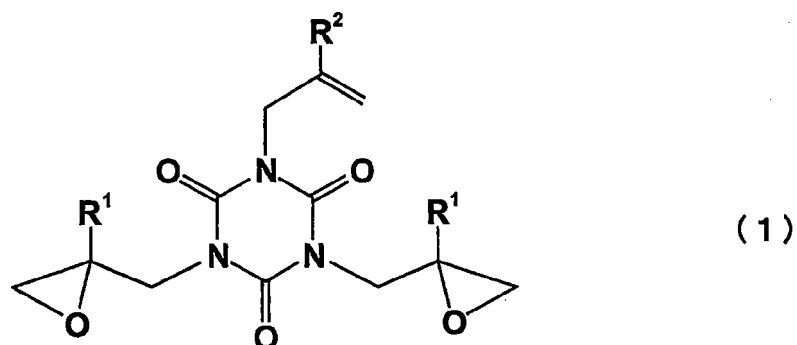
解決課題的手段

【0012】本發明者為了解決上述課題而專心致力地檢討，結果發現：包含特定的脂環式環氧化合物、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物及白色顏料作為必要成分，進一步包含硬化劑及硬化促進劑或硬化觸媒之硬化性環氧樹脂組成物，係具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低。再者，本發明者發現：包含特定的脂環式環氧化合物、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物、在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物、脂環式聚酯樹脂及白色顏料作為必要成分，進一步包含硬化劑及硬化促進劑或硬化觸媒之硬化性環氧樹脂組成物，係尤其能提供一種硬化物，其具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低。本發明係以此等的知識見解為基礎而完成者。

【0013】即，本發明提供一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有下述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)與硬化促進劑(F)，

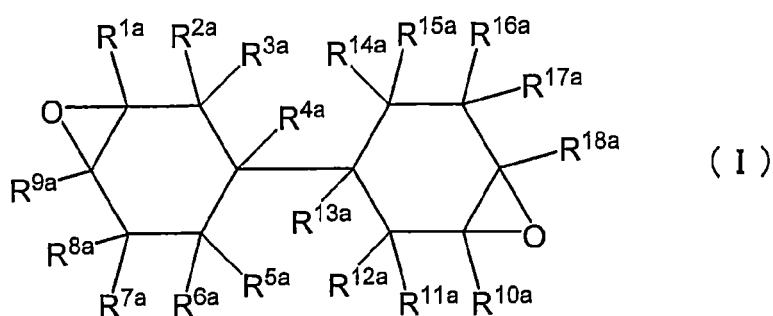


[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]；

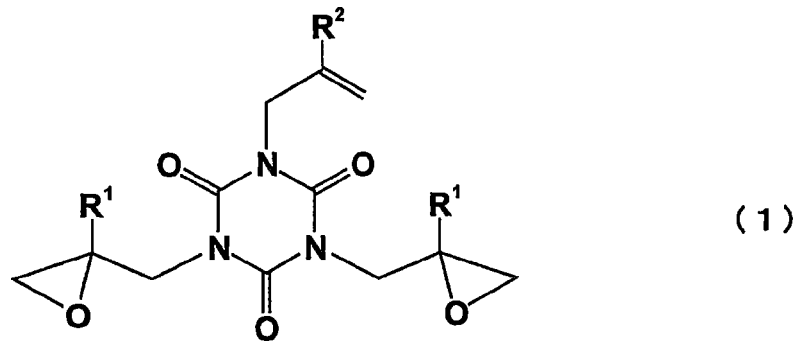


[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烴基]。

【0014】又，本發明提供一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有下述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)與硬化觸媒(E)，

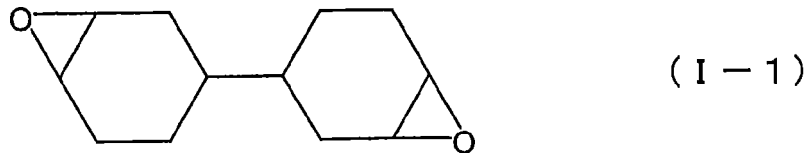


[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]，



[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烷基]。

【0015】再者，提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其中前述脂環式環氧化合物(A)係下述式(I-1)所示的化合物。



【0016】前述硬化性環氧樹脂組成物係較佳在 25°C 為液狀。

【0017】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)。

【0018】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含脂環式聚酯樹脂(H)。

【0019】再者，提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其中前述脂環式聚酯樹脂(H)係在主鏈具有脂環的脂環式聚酯樹脂。

【0020】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子。

【0021】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含選自包含含聚矽氧系調平劑及氟系調平劑之群組的至少 1 種調平劑。

【0022】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含多元醇化合物。

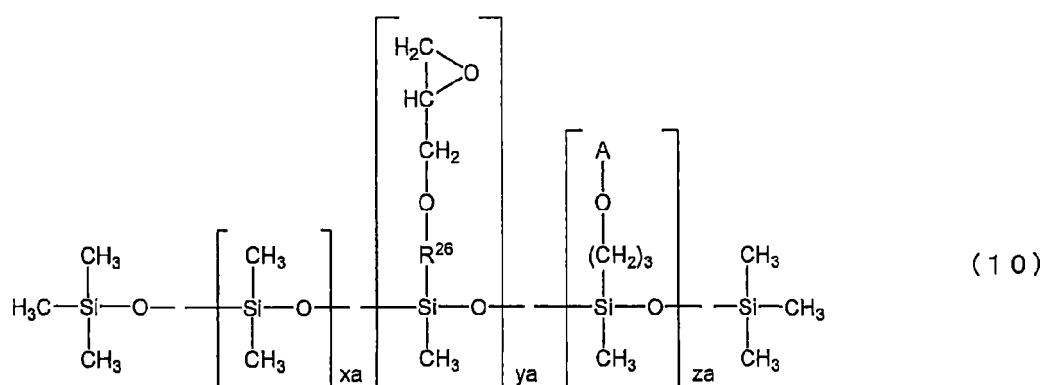
【0023】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含丙烯酸嵌段共聚物。

【0024】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含應力緩和劑(I)。

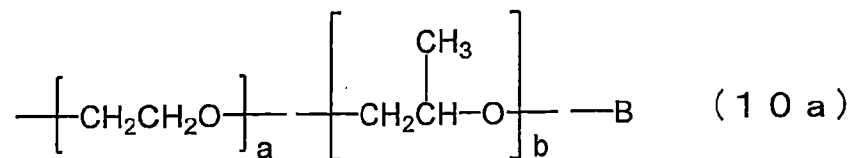
【0025】前述應力緩和劑(I)可為選自包含聚矽氧橡膠粒子(I1)及聚矽氧油(I2)之群組的至少 1 種。

【0026】前述聚矽氧橡膠粒子(I1)可為在表面具備聚矽氧樹脂的經交聯之聚二甲基矽氧烷。

【0027】前述聚矽氧油(I2)可為環氧當量 3000~15000 環氧當量 3000~15000 之具有下述式(10)所示的結構之聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物；



[式中， x_a 為 80~140 之整數， y_a 為 1~5 之整數， z_a 為 5~20 之整數； R^{26} 為碳數 2 或 3 的伸烷基；A 為具有下述式(10a)所示的結構之聚伸烷基醚基；



(式中，a 及 b 各自獨立地為 0~40 之整數；B 為氫原子或甲基)。

【0028】提供如前述之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含無機填充劑(J)。

【0029】又，本發明提供一種硬化物，其係前述之硬化性環氧樹脂組成物的硬化物。

【0030】另外，本發明提供一種光反射用硬化性樹脂組成物，其包含前述之硬化性環氧樹脂組成物。

【0031】還有，本發明提供一種光半導體裝置，其特徵為至少具備光半導體元件與由前述之光反射用硬化性樹脂組成物的硬化物所成之反射器。

發明的效果

【0032】本發明之硬化性環氧樹脂組成物由於具有上述構成，該硬化性環氧樹脂組成物係適合壓縮成型，使其硬化而得之硬化物係具有高的光反射性，再者耐熱性及耐光性優異，而且強韌、不易發生裂痕，故光反射性不易隨著時間經過而降低。因此，本發明之硬化性環氧樹脂組成物係在光半導體裝置相關的各式各樣用途，尤其可適用作為 LED 封裝用的光反射用硬化性樹脂組成物。再者，由本發明之硬化性環氧樹脂組成物(光反射用硬化性樹脂組成物)的硬化物所成之反射器(反射材料)，由於可長期間持續發揮高的光反射性，故至少具備光半

導體元件與上述反射器之光半導體裝置(發光裝置)係長壽命之光半導體裝置，可發揮高可靠性。

【圖式簡單說明】

【0033】

圖 1 係顯示本發明之光半導體元件搭載用基板的一例之概略圖。左側之圖(a)為斜視圖，右側之圖(b)為剖面圖。

圖 2 係顯示本發明之光半導體裝置的一例之概略圖(剖面圖)。

圖 3 係顯示本發明之光半導體裝置的另一例之概略圖(剖面圖；具有散熱片之情況)。

圖 4 係顯示本發明之光半導體裝置的其它一例之概略圖(具有散熱片(散熱鰭)之情況)。左側之圖(a)為上視圖，右側之圖(b)為(a)中的 A-A'剖面圖。

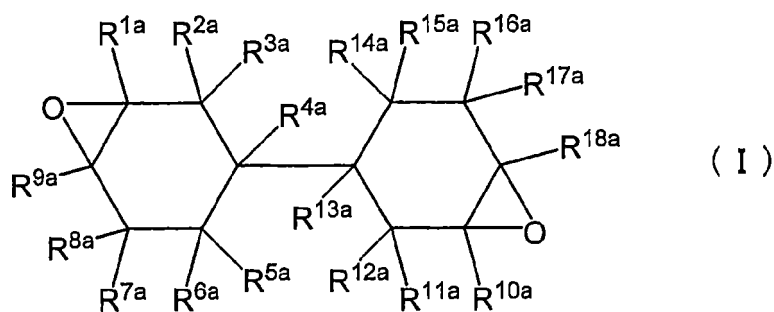
【實施方式】

實施發明的形態

【0034】

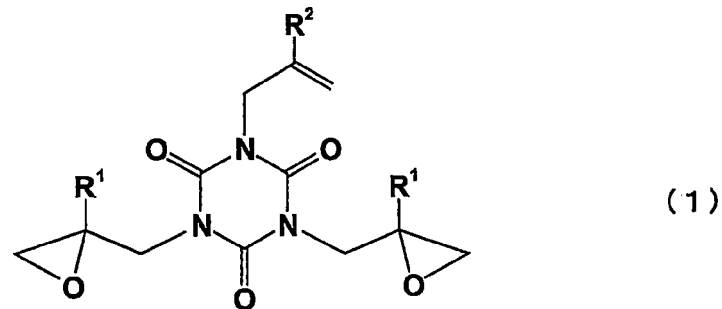
< 硬化性環氧樹脂組成物 >

本發明之硬化性環氧樹脂組成物係含有下述式(I)



[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]

所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)



[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烷基]

所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)與硬化促進劑(F)作為必要成分之樹脂組成物，或含有上述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、上述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)與硬化觸媒(E)作為必要成分之樹脂組成物。再者，本發明之硬化性環氧樹脂組成物係除了上述必要成分以外，視需要還可包含其它成分。還有，本發明之硬化性環氧樹脂組成物係可使用作為因加熱而硬化，能轉化到硬化物之熱硬化性組成物(熱硬化性環氧樹脂組成物)。

【0035】再者，本說明書中所謂之「光反射用硬化性樹脂組成物」，就是指能形成具有光反射性的硬化物之硬化性樹脂組成物。具體而言，例如較佳為能形成對於波長 450nm 的光之反射率為 50%以上(尤其，90%以上)的硬化物之硬化性樹脂組成物。

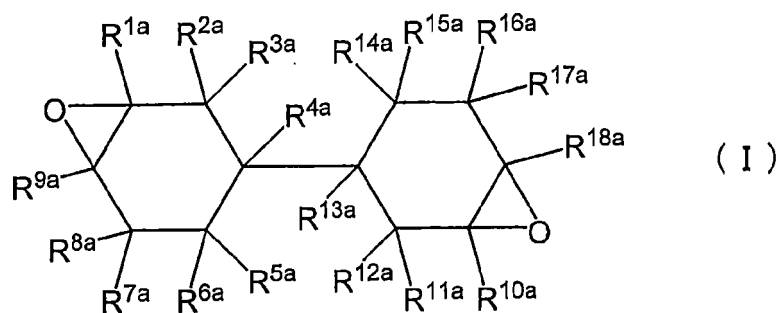
【0036】本發明之硬化性環氧樹脂組成物係較佳在 25°C 為液狀。在 25°C 為液體時，有適合壓縮成型之傾向，有其硬化物(反射器)具有光反射性且耐熱性及耐光性優異之傾向。再者，本說明書中所謂的「在 25°C 為液狀」，就是指在常壓下 25°C 所測定的黏度為 1000000mPa·s 以下(較佳為 800000mPa·s 以下)。還有，上述黏度例如可使用數位黏度計(型號「DVU-EII 型」，TOKIMEC(股)製)，於轉子：標準 1°34'×R24、溫度：25°C、旋轉數：0.5~10rpm 之條件下測定。

【0037】在 25°C 為液體的本發明之硬化性環氧樹脂組成物，例如可藉由使用在 25°C 為液體的成分作為成分(例如，脂環式環氧化合物(A)、液狀的應力緩和劑(I)、硬化劑(E)、硬化促進劑(F)、硬化觸媒(G)等)而容易獲得。再者，作為上述成分，亦可使用在 25°C 為固體的成分，但其含量係調整成使本發明之硬化性環氧樹脂組成物在 25°C 成為液狀。又，於不損害本發明的效果之範圍內，亦可藉由調整橡膠粒子、白色顏料(C)、無機填充劑(J)、固體的應力緩和劑(I)等之在 25°C 為固體的成分之含量而容易獲得。

【0038】

[脂環式環氧化合物(A)]

構成本發明之硬化性環氧樹脂組成物的脂環式環氧化合物(A)係下述式(I)所示的化合物。



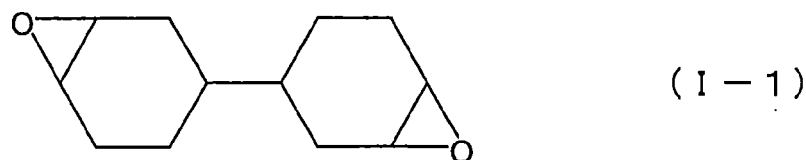
【0039】本發明之硬化性環氧樹脂組成物係藉由含有上述脂環式環氧化合物(A)，而硬化物具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，尤其具有改善對於冷熱循環的抗龜裂性之傾向。

【0040】式(1)中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基。

【0041】式(1)中，於 $R^{1a} \sim R^{18a}$ 之鹵素原子中，包含氟、氯、溴、碘原子。於「可具有氧原子或鹵素原子的烴基」之烴基中，可舉出脂肪族烴基、脂環式烴基、芳香族烴基、鍵結有2個以上的此等之基。作為脂肪族烴基，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、三級丁基、戊基、己基、辛基、癸基等之直鏈狀或支鏈狀烷基(例如，碳數1~10，較佳為碳數1~5左右的烷基)；乙烯基、烯丙基等之烯基(例如，碳數2~10，較佳為碳數2~5左右的烯基)；乙炔基等之炔基(例如，碳數2~10，較佳為碳數2~5左右的炔基)等。作為脂環

式烴基，例如可舉出環戊基、環己基等之環烷基；環烯基；橋聯環式基等。作為芳香族烴基，可舉出苯基、萘基等。作為具有氧原子的烴基，例如可舉出氧原子介於前述烴基的碳鏈中存在之基(例如，甲氧基甲基、乙氧基甲基等之烷氧基烷基等)等。作為具有鹵素原子的烴基，例如可舉出氯甲基、三氟甲基、氯苯基等之前述烴基所具有的氫原子之 1 或 2 個以上經鹵素原子(氟、氯、溴或碘原子)所取代之基。作為「可具有取代基的烷氧基」之烷氧基，可舉出甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、丁氧基等之碳數 1~10(較佳為碳數 1~5)左右的烷氧基等。作為烷氧基的取代基，例如可舉出前述鹵素原子等。

【0042】於式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)之中，較佳為 $R^{1a} \sim R^{18a}$ 皆氫原子之下述式(I-1)所示的化合物。



【0043】脂環式環氧化合物(A)係可單獨或組合 2 種以上使用。於上述之中，作為脂環式環氧化合物(A)，特佳為上述式(I-1)所示的(3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷((3,4,3',4'-diepoxy)bicyclohexyl)。

【0044】脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含硬化劑(D)作為必要成分之情況中，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100重量%)，較佳為 5~90 重量%，更佳為 5~80 重量%，尤

佳為 5~70 重量%。另一方面，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含硬化觸媒(E)作為必要成分之情況中，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)較佳為 25~95 重量%，更佳為 30~92 重量%，尤佳為 30~90 重量%。

【0045】特別地，當本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)及脂環式聚酯樹脂(H)之任一者或兩者時(尤其，包含兩者時)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含硬化劑(D)作為必要成分之情況中，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100 重量%)，較佳為 5~90 重量%，更佳為 8~80 重量%，尤佳為 8~75 重量%。另一方面，當本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含成分(G)及成分(H)之任一者或兩者時(尤其，包含兩者時)，於包含硬化觸媒(E)作為必要成分之情況中，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)較佳為 10~95 重量%，更佳為 15~85 重量%，尤佳為 20~75 重量%。

【0046】又，相對於脂環式環氧化合物(A)與異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)之總量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但較佳為 30~95 重量%，更佳為 35~95 重量%，尤

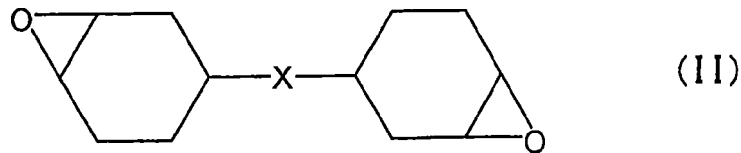
佳為 40~95 重量%。脂環式環氧化合物(A)之使用量小於 30 重量%時，異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)之溶解性不充分，若放置在室溫下則有容易析出之情況。另一方面，若脂環式環氧化合物(A)之使用量超過 95 重量%，則硬化物的強韌性降低，有容易發生裂痕之情況。

【0047】本發明之硬化性環氧樹脂組成物係在不損害本發明的效果之範圍內，可包含含脂環式環氧化合物(A)以外的脂環式環氧化合物(以下，亦稱為「其它的脂環式環氧化合物」)。

【0048】其它的脂環式環氧化合物係在分子內(1 分子內)至少具有脂環(脂肪族環)結構與環氧基之化合物，為脂環式環氧化合物(A)以外之化合物。更具體而言，於其它的脂環式環氧化合物中，例如包含：(i)具有以構成脂環之鄰接的 2 個碳原子與氧原子所構成之環氧基(亦稱為「脂環環氧基」)之化合物(脂環式環氧化合物(A)除外)，及(ii)環氧基直接以單鍵鍵結至脂環之化合物等。惟，於其它的脂環式環氧化合物中，不包括後述之在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)。

【0049】作為(i)具有以構成脂環之鄰接的 2 個碳原子與氧原子所構成之環氧基(脂環環氧基)之化合物，可從眾所周知或慣用者之中任意地選擇而使用。其中，上述化合物較佳為具有以構環己烷環的鄰接 2 個碳原子與氧原子所構成之環氧基者，即，具有環氧環己烷基之化合物(脂環式環氧化合物)。

【0050】作為(i)具有以構成脂環之鄰接的 2 個碳原子與氧原子所構成之環氧基(脂環環氧基)之化合物，尤其於耐熱性、耐光性之點上，較佳為下述式(II)所示的脂環式環氧化合物(脂環式環氧樹脂)。



式(II)中，X 表示連結基(具有 1 個以上的原子之二價基)。作為上述連結基，例如可舉出二價烴基、羰基、醚基(醚鍵)、硫醚基(硫醚鍵)、酯基(酯鍵)、碳酸酯基(碳酸酯鍵)、醯胺基(醯胺鍵)、及複數個連結有此等之基等。再者，於式(II)之構成脂環(脂環式環氧基)的碳原子之 1 以上，亦可鍵結烷基等的取代基。

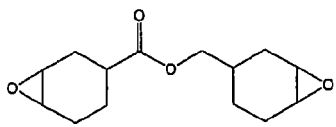
【0051】作為上述二價烴基，例如可舉出碳數為 1~18 之直鏈或支鏈狀的伸烷基、二價的脂環式烴基等。作為碳數為 1~18 之直鏈或支鏈狀的伸烷基，例如可舉出亞甲基、甲基亞甲基、二甲基亞甲基、伸乙基、伸丙基、三亞甲基等。作為二價的脂環式烴基，例如可舉出 1,2-伸環戊基、1,3-伸環戊基、亞環戊基、1,2-伸環己基、1,3-伸環己基、1,4-伸環己基、亞環己基等之二價的伸環烷基(包含亞環烷基)等。

【0052】作為上述連結基 X，其中尤其較佳為含有氧原子的連結基，具體而言，例如可舉出 -CO-(羰基)、-O-CO-O-(碳酸酯基)、-COO-(酯基)、-O-(醚基)、

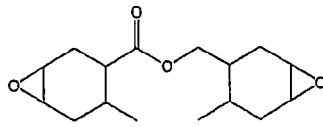
-CONH-(醯胺基)、複數個連結有此等的基之基、此等的基之 1 或 2 個以上與二價烴基之 1 或 2 個以上連結成的基等。作為二價烴基，例如可舉出上述所例示者。

【0053】作為上述式(II)所示的脂環式環氧化合物之代表例，可舉出下述式(II-1)~(II-10)所示的化合物等。作為此等之化合物，例如，亦可使用商品名「Celloxide 2021P」、「Celloxide 2081」(DAICEL(股)製)等之市售品。再者，下述式(II-5)、(II-7)中的 1、m 各自表示 1~30 之整數。下述式(II-5)中的 R 為碳數 1~8 的伸烷基，可舉出亞甲基、伸乙基、伸丙基、伸異丙基、伸丁基、伸異丁基、伸二級丁基、伸戊基、伸己基、伸庚基、伸辛基等之直鏈或支鏈狀伸烷基。於此等之中，較佳為亞甲基、伸乙基、伸丙基、伸異丙基等碳數 1~3 之直鏈或支鏈狀伸烷基。又，下述式(II-9)、(II-10)中之 n_1 ~ n_6 各自表示 1~30 之整數。

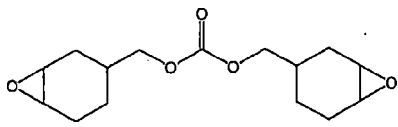
【0054】



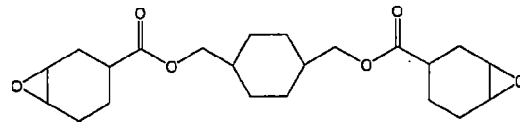
(II-1)



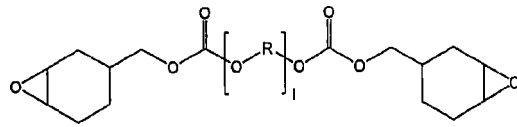
(II-2)



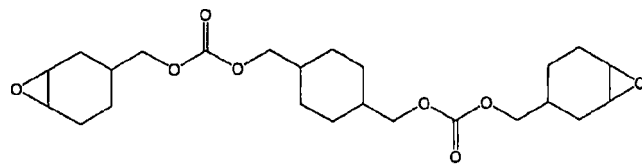
(II-3)



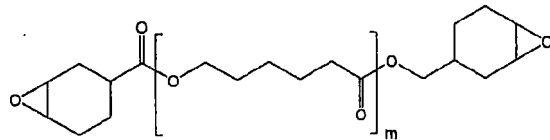
(II-4)



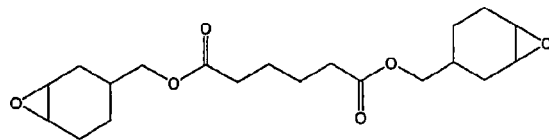
(II-5)



(II-6)

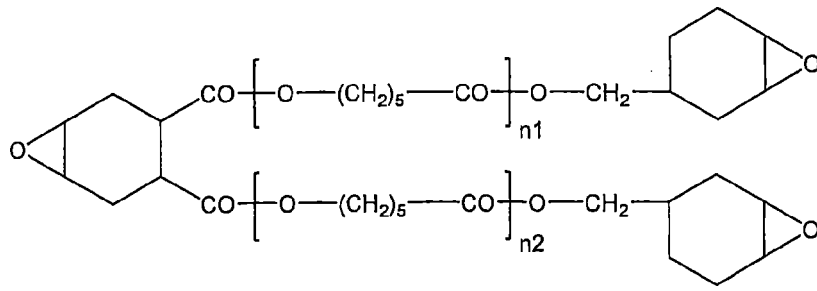


(II-7)

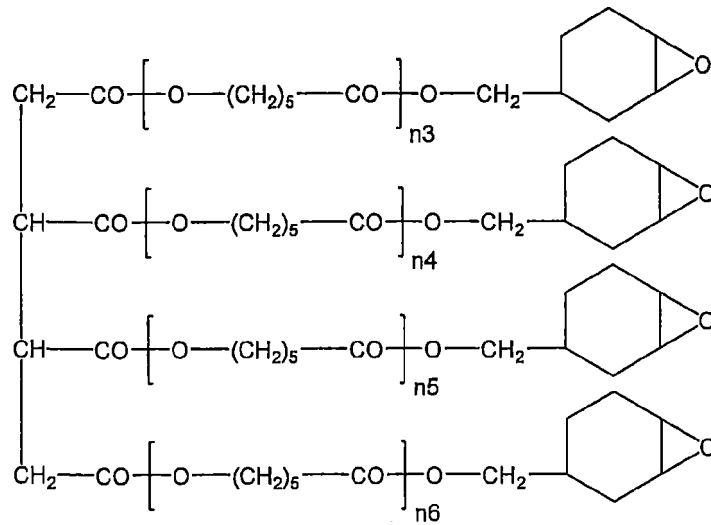


(II-8)

【 0055 】

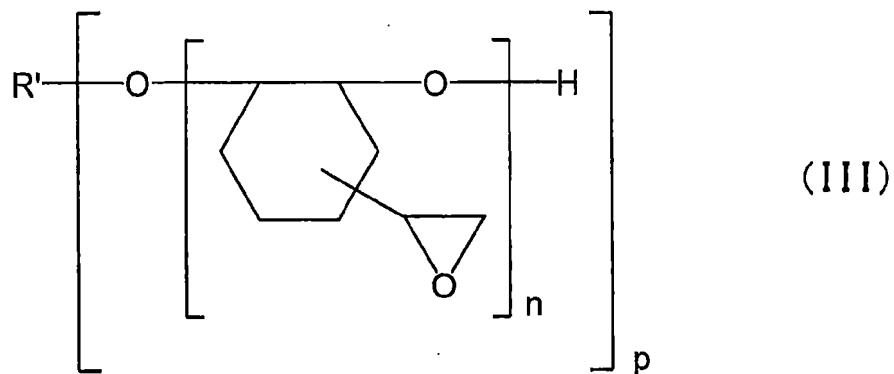


(II-9)



(II-10)

【0056】作為(ii)環氧基直接以單鍵鍵結至脂環之化合物，例如可舉出下述式(III)所示的化合物。



(III)

式(III)中，R'為從 p 價的醇中去除 p 個 -OH 後之基，p、n 各自表示自然數。作為 p 價的醇 [R'-(OH)_p]，例如可舉出碳數 1~15 的醇等，更具體而言，可舉出 2,2-雙(羥基甲基)-1-丁醇等之多元醇等。p 較佳為 1~6，n 較佳為 1~30。當 p 為 2 以上時，各自的 () 內(圓括弧內)之基中的 n 係可相同或相異。作為上述化合物，具體而言，可舉出 2,2-雙(羥基甲基)-1-丁醇之 1,2-環氧基-4-(2-環氧乙烷基)環己烷加成物，商品名「EHPE3150」(DAICEL(股)製)等。

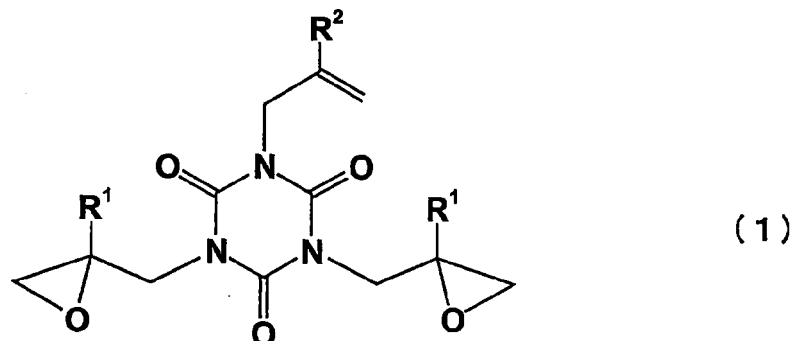
【0057】其它的脂環式環氧化合物係可單獨或組合 2 種以上使用。於上述之中，作為其它的脂環式環氧化合物，特佳為上述式(II-1)所示的 3,4-環氧基環己基甲基(3,4-環氧基)環己烷羧酸酯，商品名「Celloxide 2021P」。

【0058】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有其它的脂環式環氧化合物時，相對於其它的脂環式環氧化合物與脂環式環氧化合物(A)之總量(100 重量%)，其它的脂環式環氧化合物之使用量(含量)係沒有特別的限定，但較佳為 1~50 重量%，更佳為 5~40 重量%，尤佳為 5~30 重量%，特佳為 5~20 重量%。若其它的脂環式環氧化合物之使用量超過 50 重量%，則硬化物的耐熱性、耐光性、強韌性降低，有隨著時間經過的光反射性降低或因冷熱循環而容易發生裂痕之情況。

【0059】

[異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)]

構成本發明之硬化性環氧樹脂組成物的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)係以下述之通式(1)表示。



上述式(1)中， R^1 及 R^2 係相同或相異，表示氫原子或碳數 1~8 的烷基。

【0060】作為碳數 1~8 的烷基，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、二級丁基、戊基、己基、庚基、辛基等之直鏈或支鏈狀的烷基。其中，較佳為甲基、乙基、丙基、異丙基等碳數 1~3 之直鏈或支鏈狀的烷基。上述式(1)中的 R^1 及 R^2 特佳為氫原子。

【0061】作為異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)之代表例，可舉出異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯、1-烯丙基-3,5-雙(2-甲基環氧基丙基)異三聚氰酸酯、1-(2-甲基丙烯基)-3,5-二環氧丙基異三聚氰酸酯、1-(2-甲基丙烯基)-3,5-雙(2-甲基環氧基丙基)異三聚氰酸酯等。再者，異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)係可單獨或組合 2 種以上使用。

【0062】異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)係可在溶解於上述脂環式環氧化合物(A)的範圍中任意地混合，脂環式環氧化合物(A)與異三聚氰酸單烯丙基

二縮水甘油酯化合物(B)之比例係沒有特別的限定，但脂環式環氧化合物(A)：異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)較佳為 50：50~95：5(重量比)，更佳為 50：50~90：10(重量比)。於此範圍外，難以得到異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)的溶解性。

【0063】異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)亦可預先添加醇或酸酐等與環氧基反應的化合物，進行改質而使用。

【0064】

[白色顏料(C)]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物的必要成分之白色顏料(C)，係對於將上述硬化性環氧樹脂組成物予以硬化而得的硬化物，擔任使其發揮高的光反射性之角色。作為白色顏料(C)，可使用眾所周知或慣用之白色顏料，並沒有特別的限定，例如可舉出玻璃、黏土、雲母、滑石、高嶺石(高嶺土)、埃洛石、沸石、酸性白土、活性白土、勃姆石、假勃姆石、無機氧化物、鹼土類金屬鹽等之金屬鹽等的無機白色顏料；苯乙烯系樹脂、苯并胍胺系樹脂、尿素-福馬林系樹脂、三聚氰胺-福馬林系樹脂、醯胺系樹脂等之樹脂顏料等的有機白色顏料(塑膠顏料等)；具有中空結構(氣球結構)的中空粒子等。此等之白色顏料係可單獨或組合2種以上使用。

【0065】作為白色顏料(C)，為了提高反射器的反射率，較佳為使用折射率高的白色顏料，例如較佳為折射率1.5以上的白色顏料。惟，具有中空粒子結構的白色

顏料，由於在內部(芯)含有低折射率的氣體而表面反射率非常大，故殼部分亦可以折射率低於 1.5 的材料所構成。再者，於作為白色顏料(C)例示者之中，關於亦相當於無機填充劑(J)者，折射率為 1.5 以上者係當作白色顏料(C)，折射率小於 1.5 者係當作無機填充劑(J)。

【0066】為上述無機氧化物，例如可舉出氧化鋁(礬土)、氧化鎂、氧化銻、氧化鈦[例如，金紅石型氧化鈦、銳鈦礦型氧化鈦、板鈦礦型氧化鈦等]、氧化鋯、氧化鋅等。又，作為上述鹼土類金屬鹽，例如可舉出碳酸鎂、碳酸鈣、碳酸鋇、矽酸鎂、矽酸鈣、氫氧化鎂、磷酸鎂、磷酸氫鎂、硫酸鎂、硫酸鈣、硫酸鋇等。另外，作為鹼土類金屬鹽以外之金屬鹽，例如可舉出矽酸鋁、氫氧化鋁、硫化鋅等。

【0067】作為上述中空粒子，並沒有特別的限定，例如可舉出由無機玻璃[例如，矽酸鈉玻璃、鋁矽酸玻璃、硼矽酸鈉玻璃、石英等]、矽石、氧化鋁等之金屬氧化物、碳酸鈣、碳酸鋇、碳酸鎳、矽酸鈣等之金屬鹽等的無機物所構成之無機中空粒子(亦包含白砂球等的天然物)；由苯乙烯系樹脂、丙烯酸系樹脂、聚矽氧系樹脂、丙烯酸-苯乙烯系樹脂、氯乙烯系樹脂、偏二氯乙烯系樹脂、醯胺系樹脂、胺基甲酸酯系樹脂、酚系樹脂、苯乙烯-共軛二烯系樹脂、丙烯酸-共軛二烯系樹脂、烯烴系樹脂等之聚合物(亦包含此等聚合物的交聯體)等的有機物所構成之有機中空粒子；由無機物與有機物的混成材料所構成之無機-有機中空粒子等。再者，上述中空粒子

係可由單一材料所構成，也可由二種以上的材料所構成。又，上述中空粒子之中空部(中空粒子之內部的空間)係可為真空狀態，也可經媒質所充滿，但特別地於提高反射率之觀點上，較佳為經折射率低的媒質(例如，氮、氫等之惰性氣體或空氣等)所充滿之中空粒子。

【0068】還有，白色顏料(C)亦可施有眾所周知或慣用的表面處理[例如，藉由金屬氧化物、矽烷偶合劑、鈦偶合劑、有機酸、多元醇、聚矽氧等之表面處理劑的表面處理等]。藉由施予如此表面處理，有能提高硬化性環氧樹脂組成物中的白色顏料(C)與其它成分的相溶性或分散性之情況。

【0069】其中，作為白色顏料(C)，於取得性、耐熱性、耐光性之觀點上，較佳為無機氧化物、無機中空粒子，更佳為選自包含氧化鋁、氧化鎂、氧化銻、氧化鈦、氧化鋯、氧化矽及無機中空粒子之群組的1種以上之白色顏料。特別地，作為白色顏料(C)，於具有更高的折射率之點上，較佳為氧化鈦。

【0070】白色顏料(C)之形狀係沒有特別的限定，例如可舉出球狀、破碎狀、纖維狀、針狀、鱗片狀、晶鬚狀等。其中，於白色顏料(C)的分散性之觀點上，較佳為球狀的白色顏料，特佳為真球狀的白色顏料(例如，縱橫比為1.2以下之球狀白色顏料)。

【0071】白色顏料(C)之中心粒徑係沒有特別的限定，但於光反射性升高之觀點上，較佳為 $0.1\sim 50\mu\text{m}$ 。特別地，使用無機氧化物作為白色顏料(C)時，該無機氧化

物之中心粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 $0.1\sim 50\mu\text{m}$ ，更佳為 $0.1\sim 30\mu\text{m}$ ，尤佳為 $0.1\sim 20\mu\text{m}$ ，特佳為 $0.1\sim 10\mu\text{m}$ ，最佳為 $0.1\sim 5\mu\text{m}$ 。另一方面，使用中空粒子(尤其無機中空粒子)作為白色顏料(C)時，該中空粒子之中心粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 $0.1\sim 50\mu\text{m}$ ，更佳為 $0.1\sim 30\mu\text{m}$ 。還有，上述中心粒徑係意指以雷射繞射·散射法所測定的粒度分布中之在累計值 50%的粒徑(中值徑)。

【0072】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的白色顏料(C)之使用量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中包含之具有環氧基的化合物之全量(全部含有環氧基的化合物)100 重量份，較佳為 80~500 重量份，更佳為 90~400 重量份，尤佳為 100~380 重量份。若使用量低於 80 重量份，則有硬化物的光反射性降低之傾向。另一方面，若使用量高於 500 重量份，則有硬化物的韌性降低之傾向。

【0073】再者，白色顏料(C)係可藉由眾所周知或慣用之製造方法而製造。又，作為白色顏料(C)，亦可使用市售品，例如可使用商品名「SR-1」、「R-42」、「R-45M」、「R-650」、「R-32」、「R-5N」、「GTR-100」、「R-62N」、「R-7E」、「R-44」、「R-3L」、「R-11P」、「R-21」、「R-25」、「TCR-52」、「R-310」、「D-918」、「FTR-700」(以上，堺化學工業(股)製)，商品名「Tipaque CR-50」、「CR-50-2」、「CR-60」、「CR-60-2」、「CR-63」、「CR-80」、「CR-90」、「CR-90-2」、「CR-93」、「CR-95」、

「CR-97」(以上，石原產業(股)製)，商品名「JR-301」、
「JR-403」、「JR-405」、「JR-600A」、「JR-605」、
「JR-600E」、「JR-603」、「JR-805」、「JR-806」、
「JR-701」、「JRNC」、「JR-800」、「JR」(以上，TAYCA
(股)製)，商品名「TR-600」、「TR-700」、「TR-750」、
「TR-840」、「TR-900」(以上，富士鈦工業(股)製)，
商品名「KR-310」、「KR-380」、「KR-380N」(以上，
鈦工業(股)製)，商品名「ST-410WB」、「ST-455」、
「ST-455WB」、「ST-457SA」、「ST-457EC」、
「ST-485SA15」、「ST-486SA」、「ST-495M」(以上，
鈦工業(股)製)等之金紅石型氧化鈦；商品名「A-110」、
「TCA-123E」、「A-190」、「A-197」、「SA-1」、「SA-1L」、
「SSP 系列」、「CSB 系列」(以上，堺化學工業(股)製)，
商品名「JA-1」、「JA-C」、「JA-3」(以上，TAYCA(股)
製)，商品名「KA-10」、「KA-15」、「KA-20」、「STT-65C-S」、
「STT-30EHJ」(以上，鈦工業(股)製)，商品名
「DCF-T-17007」、「DCF-T-17008」、「DCF-T-17050」
(以上，RESINO COLOR 工業(股)製)等之銳鈦礦型氧化
鈦等。

【0074】

[硬化劑(D)]

構成本發明之硬化性環氧樹脂組成物的硬化劑
(D)，係擔任使具有環氧基的化合物硬化之角色。作為硬
化劑(D)，可使用作為環氧樹脂用硬化劑所眾所周知或慣
用之硬化劑。其中，作為硬化劑(D)，較佳係在 25℃ 為液

狀的酸酐，更具體而言，例如可舉出甲基四氫鄰苯二甲酸酐、甲基六氫鄰苯二甲酸酐、十二烯基琥珀酸酐、甲基內亞甲基四氫鄰苯二甲酸酐等。又，例如對於鄰苯二甲酸酐、四氫鄰苯二甲酸酐、六氫鄰苯二甲酸酐、甲基環己烯二羧酸酐等之在常溫(約 25℃)下為固體狀的酸酐，亦可使其溶解於常溫(約 25℃)下為液狀的酸酐中而成為液狀混合物，作為硬化劑(D)較佳地使用。再者，硬化劑(D)係可單獨或組合 2 種以上使用。作為硬化劑(D)，於耐熱性、耐光性、抗龜裂性之觀點上，特佳為飽和單環烴二羧酸之酐(亦包含在環上鍵結有烷基等的取代基者)。

【0075】又，於本發明中，作為硬化劑(D)，亦可使用商品名「Rikacid MH-700」(新日本理化(股)製)，商品名「HN-5500」(日立化成工業(股)製)等之市售品。

【0076】硬化劑(D)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 50~200 重量份，更佳為 80~145 重量份。更具體而言，較佳為相對於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中所含有的全部之具有環氧基的化合物中之環氧基每 1 當量，以成為 0.5~1.5 當量之比例使用。若硬化劑(D)之使用量低於 50 重量份，則硬化變不充分，有硬化物的強韌性降低之傾向。另一方面，若硬化劑(D)之使用量高於 200 重量份，則有硬化物著色而色相變差之情況。

【0077】

[硬化促進劑(F)]

於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，硬化促進劑(F)係在具有環氧基的化合物因硬化劑(D)而硬化時，具有促進硬化速度的功能之化合物。作為硬化促進劑(F)，可使用眾所周知或慣用的硬化促進劑，並沒有特別的限定，例如可舉出 1,8-二氮雜雙環[5.4.0]十一烯-7(DBU)及其鹽(例如，酚鹽、辛酸鹽、對甲苯磺酸鹽、甲酸鹽、四苯基硼酸鹽等)；1,5-二氮雜雙環[4.3.0]壬烯-5(DBN)及其鹽(例如，酚鹽、辛酸鹽、對甲苯磺酸鹽、甲酸鹽、四苯基硼酸鹽等)；苄基二甲基胺、2,4,6-參(二甲基胺基甲基)苯酚、N,N-二甲基環己基胺等之三級胺；2-乙基-4-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑等之咪唑類；磷酸酯、三苯基膦等之膦類；四苯基磷四(對甲苯基)硼酸鹽等之磷化合物；辛酸錫、辛酸鋅等之有機金屬鹽；金屬螯合物等。再者，硬化促進劑(F)係可單獨或組合 2 種以上使用。

【0078】又，於本發明中，作為硬化促進劑(F)，亦可使用商品名「U-CAT SA 506」、「U-CAT SA 102」、「U-CAT 5003」、「U-CAT 18X」、「12XD(開發品)」(以上，SUNAPRO(股)製)，商品名「TPP-K」、「TPP-MK」(以上，北興化學工業(股)製)，商品名「PX-4ET」(日本化學工業(股)製)等之市售品。

【0079】硬化促進劑(F)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 0.05~5

重量份，更佳為 0.1~3 重量份，尤佳為 0.2~3 重量份，特佳為 0.25~2.5 重量份。若硬化促進劑(F)之使用量低於 0.05 重量份，則有硬化促進效果不充分之情況。另一方面，若硬化促進劑(F)之使用量高於 5 重量份，則有硬化物著色而色相變差之情況。

【0080】

[硬化觸媒(E)]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含硬化觸媒(E)，代替上述之硬化劑(D)。與使用硬化劑(D)之情況同樣，藉由使用硬化觸媒(E)，可使具有環氧基的化合物之硬化反應進行，得到硬化物。作為上述硬化觸媒(E)，並沒有特別的限定，例如可使用藉由施予紫外線照射或加熱處理而產生陽離子物種，能使聚合開始之陽離子觸媒(陽離子聚合起始劑)。

【0081】作為藉由紫外線照射而產生陽離子物種之陽離子觸媒，例如可舉出六氟銻酸鹽、五氟羥基銻酸鹽、六氟磷酸鹽、六氟砷酸鹽等。此等之陽離子觸媒係可單獨或組合 2 種以上使用。作為上述陽離子觸媒，例如亦可較佳使用商品名「UVACURE1590」(Daicel-Cytec(股)製)，商品名「CD-1010」、「CD-1011」、「CD-1012」(以上，美國 SARTOMER 製)，商品名「Irgacure 264」(CIBA 日本(股)製)，商品名「CIT-1682」(日本曹達(股)製)等之市售品。

【0082】作為藉由施予加熱處理而產生陽離子物種之陽離子觸媒，例如可舉出芳基重氮鎗鹽、芳基碘鎗鹽、

芳基銻鹽、丙二烯-離子錯合物等。此等之陽離子觸媒係可單獨或組合 2 種以上使用。作為上述陽離子觸媒，例如亦可較佳使用商品名「PP-33」、「CP-66」、「CP-77」(以上，(股)ADEKA 製)，商品名「FC-509」(3M 製)，商品名「UVE1014」(G.E.製)，商品名「Sunaid SI-60L」、「Sunaid SI-80L」、「Sunaid SI-100L」、「Sunaid SI-110L」、「Sunaid SI-150L」(以上，三新化學工業(股)製)，商品名「CG-24-61」(CIBA 日本(股)製)等之市售品。作為上述陽離子觸媒，亦可更使用鋁或鈦等的金屬與乙醯乙酸或二酮類之螯合化合物與三苯基矽醇等之矽醇的化合物，或鋁或鈦等的金屬與乙醯乙酸或二酮類之螯合化合物與雙酚 S 等之酚類的化合物等。

【0083】硬化觸媒(E)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 0.01~15 重量份，更佳為 0.01~12 重量份，尤佳為 0.05~10 重量份，特佳為 0.1~10 重量份。藉由在上述範圍內使用硬化觸媒(E)，可得到耐熱性、耐光性優異之硬化物。

【0084】本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)及/或脂環式聚酯樹脂(H)。特別地，本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)及脂環式聚酯樹脂(H)。即，本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為至少包含上述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、上述式(1)所示的異三聚氰酸單

烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)、脂環式聚酯樹脂(H)、白色顏料(E)、硬化劑(F)與硬化促進劑(H)之樹脂組成物，或至少包含上述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、上述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)、脂環式聚酯樹脂(H)、白色顏料(E)與硬化觸媒(G)之樹脂組成物。

【0085】

[在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)]

如上述，本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含在分子內(一分子中)具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)。在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)係具有矽氧烷骨架，而且在分子內具有 2 個以上的環氧基之化合物。在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)係擔任使硬化物的耐熱性、耐光性、抗龜裂性升高，抑制光半導體裝置的光度降低之角色。

【0086】作為在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)中的矽氧烷骨架，並沒有特別的限定，例如可舉出環狀矽氧烷骨架；直鏈狀的聚矽氧、或籠型或梯型的聚矽倍半氧烷等之聚矽氧烷骨架等。其中，作為上述矽氧烷骨架，於使硬化物的耐熱性、耐光性升高，抑制光度降低之觀點上，較佳為環狀矽氧烷骨架、直鏈狀聚矽氧骨架。即，作為在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)，較佳為在分子內具有 2 個以上的

環氧基之環狀矽氧烷、在分子內具有 2 個以上的環氧基之直鏈狀聚矽氧。再者，在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)係可單獨或組合 2 種以上使用。

【0087】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)為在分子內具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷時，形成該矽氧烷環的 Si-O 單元之數(等於形成矽氧烷環的矽原子之數)係沒有特別的限定，但於使硬化物的耐熱性、耐光性升高之觀點上，較佳為 2~12，更佳為 4~8。

【0088】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)的重量平均分子量係沒有特別的限定，但於使硬化物的耐熱性、耐光性升高之觀點上，較佳為 100~3000，更佳為 180~2000。再者，在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)的重量平均分子量，例如可藉由 GPC(凝膠滲透層析)法，作為標準聚苯乙烯換算之值測定。

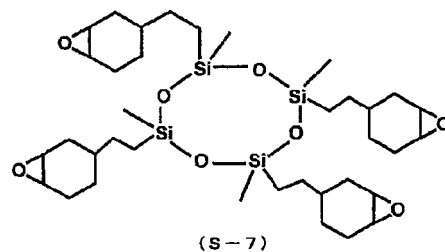
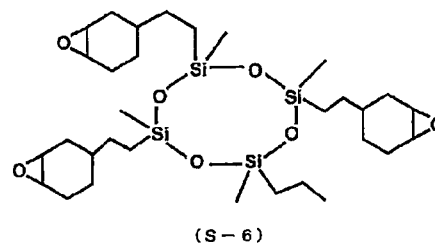
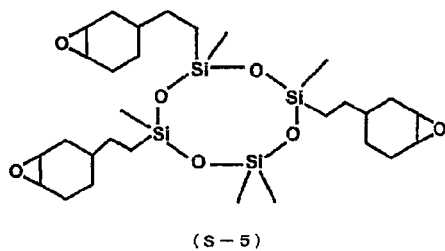
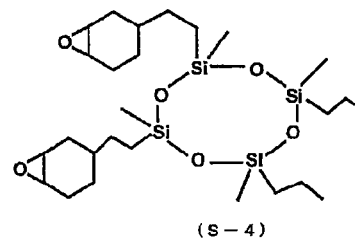
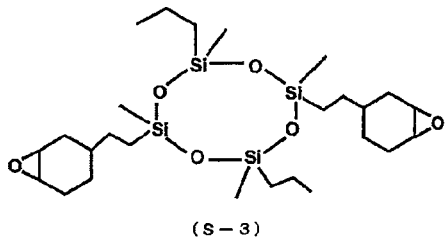
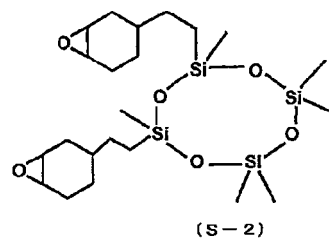
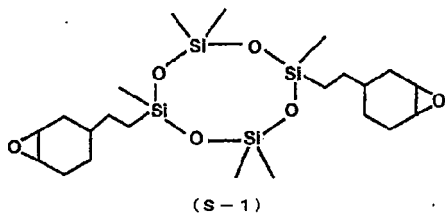
【0089】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)所具有的環氧基之數(一分子中的環氧基之數)只要是 2 個以上，則沒有特別的限定，但於使硬化物的耐熱性、耐光性升高之觀點上，較佳為 2~4 個。

【0090】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)的環氧當量(依據 JIS K7236)係沒有特別的限定，但於使硬化物的耐熱性、耐光性升高之觀點上，較佳為 180~400，更佳為 240~400，尤佳為 240~350。

【0091】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)中的環氧基係沒有特別的限定，但於使硬化物

的耐熱性、耐光性升高之觀點上，較佳為以構成脂肪族環的鄰接 2 個碳原子與氧原子所構成之環氧基(脂環環氧基)，其中特佳為環氧環己烷基。

【0092】作為在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)，具體而言，例如可舉出 2,4-二[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-2,4,6,6,8,8-六甲基-環四矽氧烷、4,8-二[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-2,2,4,6,6,8-六甲基-環四矽氧烷、2,4-二[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-6,8-二丙基-2,4,6,8-四甲基-環四矽氧烷、4,8-二[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-2,6-二丙基-2,4,6,8-四甲基-環四矽氧烷、2,4,8-三[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-2,4,6,6,8-五甲基-環四矽氧烷、2,4,8-三[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-6-丙基-2,4,6,8-四甲基-環四矽氧烷、2,4,6,8-四[2-(3-{氧雜雙環[4.1.0]庚基})乙基]-2,4,6,8-四甲基-環四矽氧烷、具有環氧基的矽倍半氧烷等。更具體而言，例如可舉出下述式(S-1)~(S-7)所示之在一分子中具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷等。



【0093】又，作為在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物 (G)，例如亦可使用日本特開 2008-248169 號公報記載之含有脂環環氧基的聚矽氧樹脂，或日本特開 2008-19422 號公報記載之在一分子中具有至少 2 個環氧官能性基的有機聚矽倍半氧烷樹脂等。

【0094】作為在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物 (G)，例如亦可舉出在分子內具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷的商品名「X-40-2678」(信越化學工業(股)製)、商品名「X-40-2670」(信越化學工業(股)製)、商品名「X-40-2720」(信越化學工業(股)製)等之市售品。

【0095】在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100 重量%)，較佳為 5~90 重量%，更佳為 5~85 重量%，尤佳為 5~80 重量%，特佳為 8~75 重量%。若在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之使用量小於 5 重量%，則有硬化物的耐熱性、耐光性降低之情況。另一方面，若在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之使用量超過 90 重量%，則有硬化物的抗龜裂性降低之情況。

【0096】相對於具有環氧基的化合物(環氧樹脂)之總量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)及在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之總量係沒有特別的限定，但於耐熱性、耐光性及抗龜裂性升高之觀點上，較佳為 30 重量%以上(例如，30~100 重量%)，特佳為 40 重量%以上。

【0097】

[脂環式聚酯樹脂(H)]

上述脂環式聚酯樹脂(H)係至少具有脂環結構(脂肪族環結構)的聚酯樹脂。脂環式聚酯樹脂(H)係擔任使硬化物的耐熱性、耐光性、抗龜裂性升高，抑制光半導體裝置的光度降低之角色。特別地，於硬化物的耐熱性、耐光性、抗龜裂性升高之觀點上，脂環式聚酯樹脂(H)較佳為在主鏈具有脂環(脂環結構)的脂環式聚酯。即，脂環式聚酯樹脂(H)較佳為由構成脂環的碳原子之一部

分或全部來構成聚合物主鏈之聚酯樹脂。再者，脂環式聚酯樹脂(H)係可單獨或組合 2 種以上使用。

【0098】作為脂環式聚酯樹脂(H)中的脂環結構，並沒有特別的限定，例如可舉出單環烴結構或橋聯環烴結構(例如，二環系烴等)等，特佳為脂環(構成脂環的碳-碳鍵)皆由碳-碳單鍵所構成之飽和單環烴結構或飽和橋聯環烴結構。又，上述脂環式聚酯樹脂(H)中的脂環結構係可被導入來自二羧酸的構成單元與來自二醇的構成單元之僅任一者中，也可被導入兩者中，並沒有特別的限定。

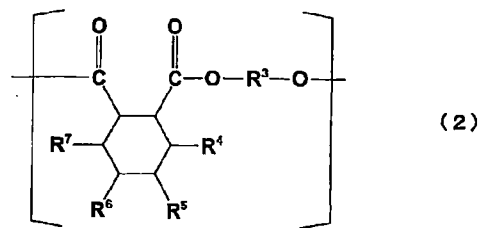
【0099】脂環式聚酯樹脂(H)具有來自具有脂環結構的單體成分之構成單元。作為具有上述脂環結構的單體，可舉出具有眾所周知或慣用的脂環結構之二醇或二羧酸，並沒有特別的限定，例如可舉出 1,2-環己烷二羧酸、1,3-環己烷二羧酸、1,4-環己烷二羧酸、4-甲基-1,2-環己烷二羧酸、降苳烯二酸(himic acid)、1,4-十氫萘二羧酸、1,5-十氫萘二羧酸、2,6-十氫萘二羧酸、2,7-十氫萘二羧酸等之具有脂環結構的二羧酸(亦包含酸酐等的衍生物)等；1,2-環戊二醇、1,3-環戊二醇、1,2-環戊烷二甲醇、1,3-環戊烷二甲醇、雙(羥基甲基)三環[5.2.1.0]癸烷等之 5 員環二醇、1,2-環己二醇、1,3-環己二醇、1,4-環己二醇、1,2-環己烷二甲醇、1,3-環己烷二甲醇、1,4-環己烷二甲醇、2,2-雙-(4-羥基環己基)丙烷等之 6 員環二醇、氫化雙酚 A 等之具有脂環結構的二醇(亦包含此等之衍生物)等。

【0100】脂環式聚酯樹脂(H)亦可具有來自不具有脂環結構的單體成分之構成單元。作為上述不具有脂環結構的單體成分，並沒有特別的限定，例如可舉出對苯二甲酸、間苯二甲酸、鄰苯二甲酸、萘二羧酸等之芳香族二羧酸(亦包含酸酐等的衍生物)；己二酸、癸二酸、壬二酸、琥珀酸、富馬酸、馬來酸等之脂肪族二羧酸(亦包含酸酐等的衍生物)；乙二醇、丙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,3-丁二醇、1,4-丁二醇、新戊二醇、1,5-戊二醇、1,6-己二醇、3-甲基戊二醇、二乙二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、2-甲基-1,3-丙二醇、2,2-二乙基-1,3-丙二醇、2-丁基-2-乙基-1,3-丙二醇、苯二甲二醇、雙酚A的環氧乙烷加成物、雙酚A的環氧丙烷加成物等之二醇(亦包含此等之衍生物)等。再者，於不具有脂環結構的單體成分中，亦包含適合的取代基(例如，烷基、烷氧基、鹵素原子等)鍵結於上述不具有脂環結構的二羧酸或二醇者。

【0101】相對於構成脂環式聚酯樹脂(H)的全部單體單元(全部單體成分)(100 莫耳%)，具有脂環的單體單元之比例係沒有特別的限定，但較佳為 10 莫耳%以上(例如，10~80 莫耳%)，更佳為 25~70 莫耳%，尤佳為 40~60 莫耳%。若具有脂環的單體單元之比例小於 10 莫耳%，則有硬化物的耐熱性、耐光性、抗龜裂性降低之情況。

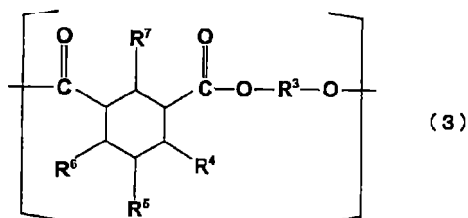
【0102】作為脂環式聚酯樹脂(H)，特佳為包含至少一種以上的下述式(2)~(4)所示的構成單元之脂環式聚酯樹脂。

【0103】



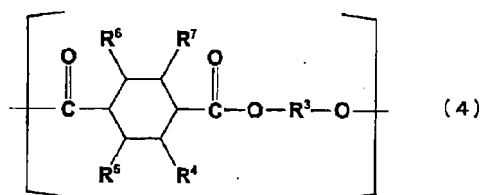
(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個亦可鏈結而形成環)。

【0104】



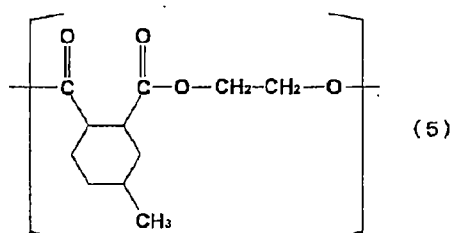
(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個亦可鏈結而形成環)。

【0105】

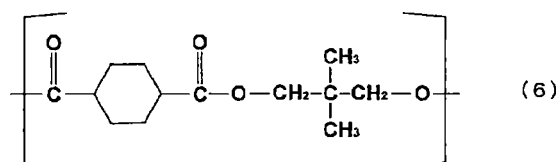


(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，亦可形成由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個鏈結成的環)。

【0106】作為上述式(2)~(4)所示的構成單元之較佳具體例，例如可舉出下述式(5)所示之來自 4-甲基-1,2-環己烷二羧酸及乙二醇的構成單元。具有該構成單元的脂環式聚酯樹脂(H)，例如可藉由將甲基六氫鄰苯二甲酸酐與乙二醇予以聚縮合而得。



【0107】又，作為上述式(2)~(4)所示的構成單元之其它較佳具體例，例如可舉出下述式(6)所示之來自 1,4-環己烷二羧酸及新戊二醇的構成單元。具有該構成單元的脂環式聚酯樹脂(H)，例如藉由將 1,4-環己烷二羧酸與新戊二醇予以聚縮合而得。



【0108】再者，脂環式聚酯樹脂(H)之末端結構係沒有特別的限定，可為羥基、羧基，也可為此等羥基或羧基經適宜改質之結構(例如，末端的羥基經單羧酸或酸酐所酯化之結構，或末端的羧基經醇所酯化之結構等)。

【0109】於脂環式聚酯樹脂(H)具有上述式(2)~(4)所示的構成單元時，該構成單元之含量的合計量(合計含量；構成該構成單元的全部單體單元)係沒有特別的限定，但相對於脂環式聚酯樹脂(H)的全部構成單元(100

莫耳%；構成脂環式聚酯樹脂(H)的全部單體單元)，較佳為 20 莫耳%以上(例如，20~100 莫耳%)，更佳為 50~100 莫耳%，尤佳為 80~100 莫耳%。若上述式(2)~(4)所示的構成單元之含量小於 20 莫耳%，則有硬化物的耐熱性、耐光性、抗龜裂性降低之情況。

【0110】脂環式聚酯樹脂(H)之數量平均分子量係沒有特別的限定，但較佳為 300~100000，更佳為 300~30000。若脂環式聚酯樹脂(H)之數量平均分子量小於 300，則硬化物的強韌性不充分，有抗龜裂性降低之情況。另一方面，若脂環式聚酯樹脂(H)之數量平均分子量超過 100000，則與其它成分(例如，硬化劑(D))的相溶性降低，有對硬化物的機械物性造成不良影響及抗龜裂性降低之情況。再者，脂環式聚酯樹脂(H)之數量平均分子量例如係藉由 GPC(凝膠滲透層析)法，作為標準聚苯乙烯換算之值測定。

【0111】再者，脂環式聚酯樹脂(H)係可單獨 1 種或組合 2 種以上而使用。

【0112】脂環式聚酯樹脂(H)係沒有特別的限定，可藉由眾所周知或慣用的方法製造。更詳細而言，例如可藉由常見方法，使上述的二羧酸與二醇聚縮合而得到脂環式聚酯樹脂(H)，也可藉由常見方法，使上述二羧酸的衍生物(酸酐、酯、鹽鹵化物等)與二醇聚縮合而得。

【0113】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量(含量)係沒有特別的限定，但將硬化劑(D)當作必要成分時，相對於脂環式聚酯樹脂(H)

與硬化劑(D)之合計量(100重量%)，較佳為1~60重量%，更佳為5~30重量%。若脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量小於1重量%，則有硬化物的抗龜裂性降低之情況。另一方面，若脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量超過60重量%，則有硬化物的耐熱性降低之情況。

【0114】另一方面，在本發明之硬化性環氧樹脂組成物將硬化觸媒(E)當作必要成分時，脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量(含量)為沒有特別的限定，但相對於脂環式聚酯樹脂(H)與硬化觸媒(E)之合計量(100重量%)，較佳為50~99重量%，更佳為65~99重量%。若脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量小於50重量%，則有硬化物的抗龜裂性降低之情況。另一方面，若脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量超過99重量%，則有硬化物的耐熱性降低之情況。

【0115】

[調平劑]

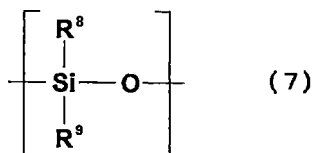
本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為進一步包含選自包含聚矽氧系調平劑(聚矽氧烷系調平劑)及氟系調平劑之群組的至少1種調平劑。本發明之硬化性環氧樹脂組成物由於包含上述調平劑，可形成能顯示更高度的耐熱性、耐光性及抗龜裂性之硬化物，使用該硬化物所製作的光半導體裝置係更不易發生隨著時間經過的光度降低。

【0116】

(聚矽氧系調平劑)

上述聚矽氧系調平劑係包含具有聚矽氧烷骨架的化合物之調平劑。作為上述聚矽氧系調平劑，可使用眾所周知或慣用的聚矽氧系調平劑，並沒有特別的限定，例如可使用商品名「BYK-300」、「BYK-301/302」、「BYK-306」、「BYK-307」、「BYK-310」、「BYK-315」、「BYK-313」、「BYK-320」、「BYK-322」、「BYK-323」、「BYK-325」、「BYK-330」、「BYK-331」、「BYK-333」、「BYK-337」、「BYK-341」、「BYK-344」、「BYK-345/346」、「BYK-347」、「BYK-348」、「BYK-349」、「BYK-370」、「BYK-375」、「BYK-377」、「BYK-378」、「BYK-UV3500」、「BYK-UV3510」、「BYK-UV3570」、「BYK-3550」、「BYK-SILCLEAN3700」、「BYK-SILCLEAN3720」（以上，BYK 化學・日本(股)製）、商品名「AC FS 180」、「AC FS 360」、「AC S 20」（以上，Algin Chemie 製）、商品名「Polyflow KL-400X」、「Polyflow KL-400HF」、「Polyflow KL-401」、「Polyflow KL-402」、「Polyflow KL-403」、「Polyflow KL-404」（以上，共榮社化學(股)製）、商品名「KP-323」、「KP-326」、「KP-341」、「KP-104」、「KP-110」、「KP-112」（以上，信越化學工業(股)製）、商品名「LP-7001」、「LP-7002」、「8032 ADDITIVE」、「57 ADDITIVE」、「L-7604」、「FZ-2110」、「FZ-2105」、「67 ADDITIVE」、「8618 ADDITIVE」、「3 ADDITIVE」、「56 ADDITIVE」（以上，東麗・道康寧(股)製）等之市售品。

【0117】作為上述具有聚矽氧烷骨架的化合物，特佳為至少具有下述式(7)所示的結構單元(重複結構單元)之聚矽氧系聚合物(惟，成分(C)除外)。即，上述聚矽氧系調平劑較佳為至少包含上述聚矽氧系聚合物之調平劑。



【0118】上述式(7)中之 R^8 表示可具有取代基之直鏈或支鏈狀的烷基。作為上述直鏈或支鏈狀的烷基，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基(正丁基)、異丁基、二級丁基、三級丁基、戊基等碳數 1~30 之直鏈或支鏈狀的烷基。

【0119】上述 R^8 中，作為直鏈或支鏈狀的烷基可具有的取代基，並沒有特別的限定，例如可舉出可經保護基所保護的羥基[例如，羥基、取代氧基(例如，甲氧基、乙氧基、丙氧基等之碳數 1~4 的烷氧基)等]、可經保護基所保護的羧基[例如， $-\text{COOR}^a$ 基等： R^a 表示氫原子或烷基，作為該烷基，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、二級丁基、三級丁基、己基等碳數 1~6 之直鏈或支鏈狀的烷基]、丙烯醯基、甲基丙烯醯基、丙烯醯氧基、甲基丙烯醯氧基、乙烯基、丙烯基、環氧基、環氧丙基等。

【0120】上述式(7)中之 R^9 表示可具有取代基之直鏈或支鏈狀的烷基、可具有取代基的芳烷基、包含聚醚鏈的有機基、或包含聚酯鏈的有機基。作為上述 R^9 中之

直鏈或支鏈狀的烷基，並沒有特別的限定，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基(正丁基)、異丁基、二級丁基、三級丁基、戊基等碳數 1~30 之直鏈或支鏈狀的烷基。又，作為上述芳烷基，並沒有特別的限定，例如可舉出苄基、甲基苄基、苯乙基、甲基苯乙基、苯基丙基、萘基甲基等。

【0121】上述 R^9 中，作為直鏈或支鏈狀的烷基可具有的取代基、芳烷基可具有的取代基，並沒有特別的限定，例如可舉出上述之 R^8 中所例示的取代基等。

【0122】上述 R^9 中之包含聚醚鏈的有機基為至少包含聚醚結構的一價有機基。作為上述包含聚醚鏈的有機基中之聚醚結構，只要是具有複數的醚鍵之結構即可，並沒有特別的限定，例如可舉出聚乙二醇結構(聚環氧乙烷結構)、聚丙二醇結構(聚環氧丙烷結構)、聚丁二醇(聚四亞甲基二醇)結構、來自複數種的烷二醇(或環氧烷)之聚醚結構(例如，聚(丙二醇/乙二醇)結構等)等之聚氧化烯結構。再者，於來自複數種的烷二醇之聚醚結構中，各個烷二醇之加成型態可為嵌段型(嵌段共聚合型)，也可為隨機型(隨機共聚合型)。

【0123】上述包含聚醚鏈的有機基可為僅由上述聚醚結構所成的有機基，也可為具有上述聚醚結構之 1 或 2 個以上、與 1 或 2 個以上的連結基(具有 1 個以上的原子之二價基)所連結之結構的有機基。作為上述包含聚醚鏈的有機基中之連結基，例如可舉出二價烴基(尤其，直鏈或支鏈狀的伸烷基)、硫醚基(-S-)、酯基(-COO-)、醯

胺基(-CONH-)、羰基(-CO-)、碳酸酯基(-OCOO-)、此等2個以上鍵結成的基等。

【0124】再者，上述包含聚醚鏈的有機基亦可具有上述之 R^8 中所例示的取代基(例如，羥基、羧基、丙烯醯基、甲基丙烯醯基、丙烯醯氧基、甲基丙烯醯氧基、乙烯基、丙烯基等)，例如作為如此之包含聚醚結構的有機基，可舉出在末端(式(7)中之相對於矽原子的相反側之端部)具有上述取代基的有機基等。

【0125】上述 R^9 中之包含聚酯鏈的有機基為至少包含聚酯結構的一價有機基。作為上述包含聚酯鏈的有機基中之聚酯結構，只要是具有複數的酯鍵之結構即可，並沒有特別的限定，例如可舉出脂肪族聚酯結構、脂環族聚酯結構、芳香族聚酯結構、脂肪族/芳香族聚酯結構、脂肪族/脂環族聚酯結構、脂環族/芳香族聚酯結構等。

【0126】作為上述聚酯結構，更具體而言，例如可舉出藉由多羧酸(尤其二羧酸)與多元醇(尤其二醇)之聚合而形成的聚酯結構。作為上述多羧酸，並沒有特別的限定，例如可舉出對苯二甲酸、間苯二甲酸、鄰苯二甲酸、萘二羧酸等之芳香族二羧酸(亦包含酸酐或酯等的衍生物)；己二酸、癸二酸、壬二酸、琥珀酸、富馬酸、馬來酸等之脂肪族二羧酸(亦包含酸酐或酯等的衍生物)；1,2-環己烷二羧酸、1,3-環己烷二羧酸、1,4-環己烷二羧酸、4-甲基-1,2-環己烷二羧酸、降莖烯二酸、1,4-十氫萘二羧酸、1,5-十氫萘二羧酸、2,6-十氫萘二羧酸、2,7-十

氫萘二羧酸等之具有脂環結構的二羧酸(亦包含酸酐或酯等的衍生物)等。作為上述多元醇，並沒有特別的限定，例如可舉出乙二醇、丙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,3-丁二醇、2,3-丁二醇、1,4-丁二醇(四亞甲基二醇)、新戊二醇、1,5-戊二醇、1,6-己二醇、2,6-己二醇、2-乙基-1,6-己二醇、2,2,4-三甲基-1,6-己二醇、3-甲基戊二醇、二乙二醇、二丙二醇、己二醇(2-甲基戊烷-2,4-二醇)、3-甲基-1,5-戊二醇、2-甲基-1,5-戊二醇、2,3,5-三甲基-1,5-戊二醇、2-甲基-1,3-丙二醇、2,2-二乙基-1,3-丙二醇、2-丁基-2-乙基-1,3-丙二醇、1,8-辛二醇、1,12-十二烷二醇、苯二甲二醇、1,3-二羥基丙酮、聚丁二烯二醇、雙酚 A 的環氧乙烷加成物、雙酚 A 的環氧丙烷加成物等之二醇(亦包含此等之衍生物); 1,2-環戊二醇、1,3-環戊二醇、1,2-環戊烷二甲醇、1,3-環戊烷二甲醇、雙(羥基甲基)三環[5.2.1.0]癸烷等之 5 員環二醇、1,2-環己二醇、1,3-環己二醇、1,4-環己二醇、1,2-環己烷二甲醇(1,2-二羥甲基環己烷)、1,3-環己烷二甲醇(1,3-二羥甲基環己烷)、1,4-環己烷二甲醇(1,4-二羥甲基環己烷)、2,2-雙-(4-羥基環己基)丙烷等之 6 員環二醇、氫化雙酚 A 等之具有脂環結構的二醇(亦包含此等之衍生物)、丙三醇、三羥甲基丙烷、1,2,6-己三醇、雙三羥甲基丙烷、甘露糖醇、山梨糖醇、新戊四醇等之具有 3 個以上的羥基之多元醇(亦包含此等之衍生物)等。上述聚酯結構係可各自由單獨的多元醇、多羧酸所形成，也可各自由 2 種以上的多元醇、多羧酸所形成。

【0127】又，作為上述聚酯結構，例如亦可舉出藉由羥基羧酸之聚合而形成的聚酯結構、藉由該羥基羧酸之環狀酯的內酯之聚合(開環聚合)而形成的聚酯結構等。作為上述羥基羧酸，並沒有特別的限定，例如可舉出對羥基苯甲酸、間羥基苯甲酸、鄰羥基苯甲酸(水楊酸)、3-甲氧基-4-羥基苯甲酸(香草酸)、4-甲氧基-3-羥基苯甲酸(異香草酸)、3,5-二甲氧基-4-羥基苯甲酸(丁香酸)、2,6-二甲氧基-4-羥基苯甲酸、3-甲基-4-羥基苯甲酸、4-甲基-3-羥基苯甲酸、3-苯基-4-羥基苯甲酸、4-苯基-3-羥基苯甲酸、2-苯基-4-羥基苯甲酸、6-羥基-2-萘甲酸、3,4-二羥基桂皮酸(咖啡酸)、(E)-3-(4-羥基-3-甲氧基-苯基)丙烷-2-烯醇酸(阿魏酸)、3-(4-羥基苯基)-2-丙烯酸(香豆酸)等之羥基芳香族羧酸；乙醇酸、乳酸、酒石酸、檸檬酸等之羥基脂肪族羧酸等。作為上述內酯，並沒有特別的限定，例如可舉出 γ -丁內酯、 δ -戊內酯、 ϵ -己內酯、 ξ -庚內酯、 η -辛內酯等。上述聚酯結構係各自由單獨的羥基羧酸、內酯所形成，也可各自由 2 種以上的羥基羧酸、內酯所形成。

【0128】再者，上述聚酯結構係不限定於上述例示的結構，例如亦可為組合有藉由上述的多羧酸與多元醇之聚合而形成的聚酯結構、藉由羥基羧酸之聚合而形成的聚酯結構、藉由內酯之聚合而形成的聚酯結構之 2 種以上的結構。

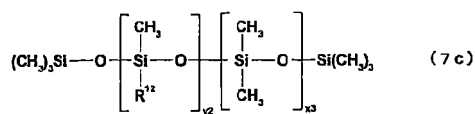
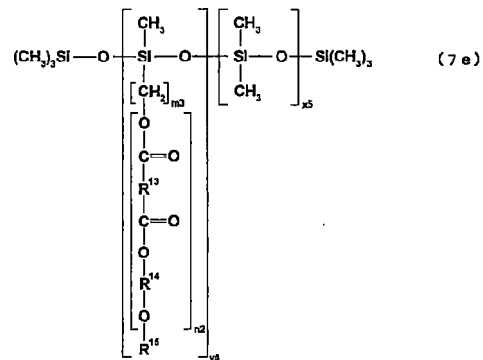
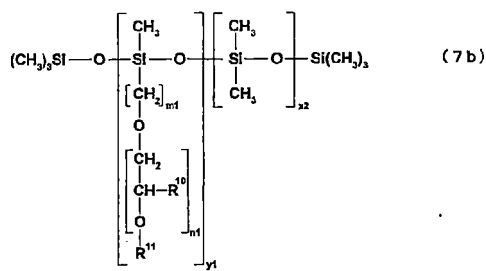
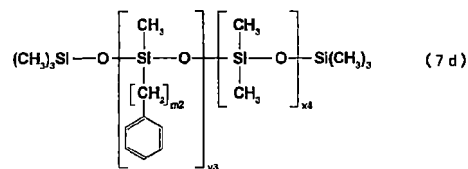
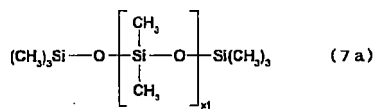
【0129】上述包含聚酯鏈的有機基可為僅由上述聚酯結構所成的有機基，也可為具有上述聚酯結構之 1 或

2 個以上、與 1 或 2 個以上的連結基所連結之結構的有機基。作為上述包含聚酯鏈的有機基中之連結基，例如可舉出二價烴基(尤其，直鏈或支鏈狀的伸烷基)、硫醚基(-S-)、酯基(-COO-)、醯胺基(-CONH-)、羰基(-CO-)、碳酸酯基(-OCOO-)、此等 2 個以上鍵結成的基等。

【0130】再者，上述包含聚酯鏈的有機基亦可具有上述之 R^8 中所例示的取代基(例如，烴基、羧基、丙烯酸醯基、甲基丙烯酸醯基、丙烯酸醯氧基、甲基丙烯酸醯氧基、乙烯基、丙烯基等)，例如作為如此之包含聚酯結構的有機基，可舉出在末端(式(7)中之相對於矽原子的相反側之端部)具有上述取代基的有機基等。

【0131】上述聚矽氧系聚合物可為僅具有式(7)所示的結構單元作為重複結構單元之聚合物，也可為具有式(7)所示的結構單元以外的結構單元作為重複結構單元之聚合物。上述聚矽氧系聚合物中之式(7)所示的結構單元以外的結構單元係沒有特別的限定，例如可舉出具有氫矽基(Si-H)的結構單元等。又，上述聚矽氧系聚合物可為僅具有 1 種的式(7)所示的結構單元之聚合物，也可為具有 2 種以上的式(7)所示的結構單元之聚合物。另外，亦可為具有 2 種以上的式(7)所示的結構單元以外的結構單元之聚合物。

【0132】作為上述聚矽氧系聚合物之具體例，例如可舉出下述式(7a)~(7e)所示的聚合物(聚二甲基矽氧烷或改質聚二甲基矽氧烷)等。



【0133】上述式(7a)所示的聚矽氧系聚合物為聚二甲基矽氧烷。式(7a)中之 x_1 (二甲基矽氧基結構單元 $[-\text{Si}(\text{CH}_3)_2-\text{O}-]$ 之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 2~3000，更佳為 3~1500。

【0134】上述式(7b)所示的聚矽氧系聚合物係在聚二甲基矽氧烷之側鏈導入有聚醚結構的聚二甲基矽氧烷之聚醚改質體。式(7b)中之 R^{10} 表示氫原子或甲基。又， R^{11} 表示氫原子、或可具有取代基之直鏈或支鏈狀的烷基。再者，作為 R^{11} 中之取代基，可舉出上述之 R^8 中所例示的取代基。式(7b)中之 m_1 (亞甲基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，例如可從 1~30 之範圍中適宜選擇。另外， n_1 (氧乙烯結構單元或氧丙烯結構單元之重複數)係沒有特別的限定，例如可從 2~3000 之範圍中適宜選擇。還有，式(7b)中之 y_1 (包含聚醚結構(聚醚側鏈)的結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 1~3000，更佳為 3~1500。再者， x_2 (二甲基矽氧基結構單元之重複

數)係沒有特別的限定，但較佳為 2~3000，更佳為 3~1500。再者，於式(7b)所示的聚矽氧系聚合物中，具有聚醚結構的結構單元與二甲基矽氧基結構單元之加成型態係可為嵌段型，也可為隨機型。又，當 y_1 為 2 以上之整數時，附有 y_1 的括弧所包圍之具有聚醚結構的結構單元係可各自相同，也可相異。

【0135】上述式(7c)所示的聚矽氧系聚合物係在聚二甲基矽氧烷之側鏈導入有比甲基更長鏈的烷基之聚二甲基矽氧烷的長鏈烷基改質體(聚甲基烷基矽氧烷)。式(7c)中之 R^{12} 表示碳數 2 以上之直鏈或支鏈狀的烷基。式(7c)中之 y_2 (甲基烷基矽氧基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 2~3000，更佳為 3~1500。又， x_3 (二甲基矽氧基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 0~3000，更佳為 2~1500。再者，於式(7c)所示的聚矽氧系聚合物中，甲基烷基矽氧基結構單元與二甲基矽氧基結構單元之加成型態係可為嵌段型，也可為隨機型。另外，附有 y_2 的括弧所包圍之甲基烷基矽氧基結構單元係可各自相同，也可相異。

【0136】上述式(7d)所示的聚矽氧系聚合物係在聚二甲基矽氧烷之側鏈導入有芳烷基的聚二甲基矽氧烷之芳烷基改質體。式(7d)中之 m_2 (亞甲基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，例如可從 1~30 之範圍中適宜選擇。又， y_3 (甲基芳烷基矽氧基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 2~3000，更佳為 3~1500。另外， x_4 (二甲基矽氧基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較

佳為 0~3000，更佳為 2~1500。再者，於式(7d)所示的聚矽氧系聚合物中，甲基芳烷基矽氧基結構單元與二甲基矽氧基結構單元之加成型態係可為嵌段型，也可為隨機型。另外，附有 y_3 的括弧所包圍之甲基芳烷基矽氧基結構單元係可各自相同，也可相異。

【0137】上述式(7e)所示的聚矽氧系聚合物係在聚二甲基矽氧烷之側鏈導入有聚酯結構的聚二甲基矽氧烷之聚酯改質體。式(7e)中之 R^{13} 及 R^{14} 係相同或相異，表示二價有機基(例如，二價烴基等)。又， R^{15} 表示氫原子、或可具有取代基之直鏈或支鏈狀的烷基。再者，作為 R^{15} 中之取代基，可舉出上述之 R^8 中所例示的取代基。式(7e)中之 m_3 (亞甲基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，例如可從 1~30 之範圍中適宜選擇。另外， n_2 (多元醇與多羧酸的縮合結構之重複數)係沒有特別的限定，例如可從 2~3000 之範圍中適宜選擇。另外，式(7e)中之 y_4 (包含聚酯結構(聚酯側鏈)的結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 1~3000，更佳為 3~1500。再者， x_5 (二甲基矽氧基結構單元之重複數)係沒有特別的限定，但較佳為 2~3000，更佳為 3~1500。還有，於式(7e)所示的聚矽氧系聚合物中，具有聚酯結構的結構單元與二甲基矽氧基結構單元之加成型態係可為嵌段型，也可為隨機型。又，當 y_4 為 2 以上之整數時，附有 y_4 的括弧所包圍之包含聚酯結構的結構單元係可各自相同，也可相異。

【0138】上述聚矽氧系聚合物係可藉由眾所周知或慣用的製造方法而得，其製造方法係沒有特別的限定，

例如可藉由使具有對應於式(7)所示的結構單元之結構的單體聚合之方法，或對於在側鏈具有反應性基的聚矽氧系聚合物(在側鏈具有反應性基的聚二甲基矽氧烷等)之該反應性基，使具有特定結構的化合物(例如，具有聚醚結構或聚酯結構的化合物)反應而鍵結之方法等，進行製造。又，作為上述聚矽氧系聚合物，亦可使用市售品。

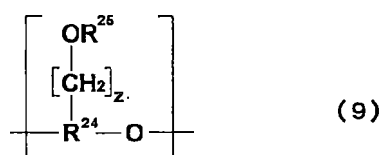
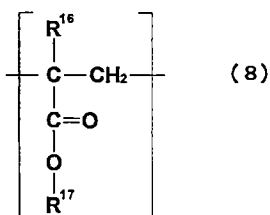
【0139】

(氟系調平劑)

上述氟系調平劑係包含烷基的氫原子之一部分或全部經氟原子所取代之具有氟化烷基的化合物之調平劑。作為上述氟系調平劑，可使用眾所周知或慣用的氟系調平劑，並沒有特別的限定，例如可使用商品名「BYK-340」(BYK 化學・日本(股)製)、商品名「AC 110a」、「AC 100a」(以上，Algin Chemie 製)、商品名「Megafac F-114」、「Megafac F-410」、「Megafac F-444」、「Megafac EXP TP-2066」、「Megafac F-430」、「Megafac F-472SF」、「Megafac F-477」、「Megafac F-552」、「Megafac F-553」、「Megafac F-554」、「Megafac F-555」、「Megafac R-94」、「Megafac RS-72-K」、「Megafac RS-75」、「Megafac F-556」、「Megafac EXP TF-1367」、「Megafac EXP TF-1437」、「Megafac F-558」、「Megafac EXP TF-1537」(以上，DIC(股)製)、商品名「FC-4430」、「FC-4432」(以上，住友 3M(股)製)、商品名「Ftergent 100」、「Ftergent 100C」、「Ftergent 110」、「Ftergent 150」、「Ftergent 150CH」、「Ftergent A-K」、「Ftergent 501」、「Ftergent

250」、「Ftergent 251」、「Ftergent 222F」、「Ftergent 208G」、「Ftergent 300」、「Ftergent 310」、「Ftergent 400SW」(以上，NEOS(股)製)、商品名「PF-136A」、「PF-156A」、「PF-151N」、「PF-636」、「PF-6320」、「PF-656」、「PF-6520」、「PF-651」、「PF-652」(以上，北村化學產業(股)製)等之市售品。

【0140】作為上述具有氟化烷基的化合物，特佳為至少具有下述式(8)所示的結構單元(重複結構單元)之含氟丙烯酸系聚合物、至少具有下述式(9)所示的結構單元(重複結構單元)之含氟聚醚系聚合物。即，上述氟系調平劑較佳為至少包含上述含氟丙烯酸系聚合物之調平劑，或至少包含上述含氟聚醚系聚合物之調平劑。



【0141】上述式(8)中之 R^{16} 表示氫原子、氟原子、或氫原子之一部分或全部可經氟原子所取的碳數 1~4 之直鏈或支鏈狀的烷基。作為上述碳數 1~4 之直鏈或支鏈狀的烷基，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、二級丁基、三級丁基等。

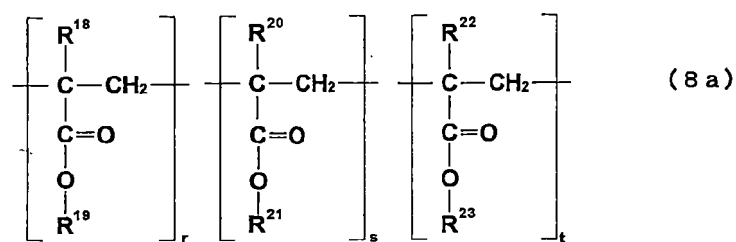
【0142】上述式(8)中之 R^{17} 表示氟化烷基(氫原子之一部分或全部經氟原子所取代的烷基)。作為上述氟化烷

基，並沒有特別的限定，例如可舉出二氟甲基、2,2-二氟乙基、2,2,2-三氟乙基、2,2,3,3-四氟丙基、全氟乙基甲基、2,2,3,3,4,4-六氟丁基、1,1-二甲基-2,2,3,3-四氟丙基、1,1-二甲基-2,2,3,3,3-五氟丙基、2-(全氟丙基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5-八氟戊基、1,1-二甲基-2,2,3,3,4,4-六氟丁基、1,1-二甲基-2,2,3,3,4,4,4-七氟丁基、2-(全氟丁基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-十氟己基、全氟戊基甲基、1,1-二甲基-2,2,3,3,4,4,5,5-八氟戊基、1,1-二甲基-2,2,3,3,4,4,5,5,5-九氟戊基、2-(全氟戊基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7-十二氟庚基、全氟己基甲基、2-(全氟己基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8-十四氟辛基、全氟庚基甲基、2-(全氟庚基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8,9,9-十六氟壬基、全氟辛基甲基、2-(全氟辛基)乙基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8,9,9,10,10-十八氟癸基、全氟壬基甲基、2,2,3,4,4,4-六氟丁基、2,2,3,3,4,4,4-七氟丁基、3,3,4,4,5,5,6,6,6-九氟己基、3,3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8,8-十三氟辛基等之氫原子的一部分經氟原子所取代的碳數1~30之直鏈或支鏈狀的烷基；三氟甲基、五氟乙基、七氟正丙基、七氟異丙基、九氟正丁基、九氟異丁基、九氟二級丁基、九氟三級丁基、全氟戊基、全氟己基、全氟庚基、全氟辛基、全氟壬基、全氟癸基等碳數1~30之直鏈或支鏈狀的全氟烷基等。其中，作為上述 R^{17} ，較佳為全氟烷基。

【0143】再者，上述含氟丙烯酸系聚合物可為僅具有式(8)所示的結構單元作為重複結構單元之聚合物，也可為具有式(8)所示的結構單元以外的結構單元作為重複結構單元之聚合物。又，上述含氟丙烯酸系聚合物可為僅具有1種的式(8)所示的結構單元之聚合物，也可為具有2種以上的式(8)所示的結構單元之聚合物。另外，亦可為具有2種以上的式(8)所示的結構單元以外的結構單元之聚合物。

【0144】作為上述含氟丙烯酸系聚合物可具有之式(8)所示的結構單元以外的結構單元，並沒有特別的限定，可舉出作為丙烯酸系聚合物之單體成分(monomer成分)之來自眾所周知或慣用的單體之結構單元等。作為上述單體，例如可舉出丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸丙酯、丙烯酸丁酯、丙烯酸戊酯等之丙烯酸酯類(亦包含具有羥基或羧基等官能基者)；甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸丙酯、甲基丙烯酸丁酯等之甲基丙烯酸酯類(亦包含具有羥基或羧基等官能基者)；丙烯醯胺、N-甲基丙烯醯胺等之丙烯醯胺類；甲基丙烯醯胺等之甲基丙烯醯胺類；烯丙基化合物；芳香族乙烯基化合物、乙烯醚類、乙烯酯類等之乙烯基化合物等。又，聚烷二醇醚與丙烯酸或甲基丙烯酸之酯等亦可作為上述單體使用。

【0145】作為上述含氟丙烯酸系聚合物之具體例，例如可舉出下述式(8a)所示的含氟丙烯酸系聚合物等。



【0146】式(8a)中之 R^{18} 表示氫原子或甲基。又， R^{19} 表示直鏈或支鏈狀的烷基。作為上述直鏈或支鏈狀的烷基，並沒有特別的限定，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基(正丁基)、異丁基、二級丁基、三級丁基、戊基等碳數 1~30 之直鏈或支鏈狀的烷基。

【0147】式(8a)中之 R^{20} 表示氫原子或甲基。又， R^{21} 表示全氟烷基。作為上述全氟烷基，並沒有特別的限定，例如可舉出作為上述式(8)中 R^{17} 所例示的全氟烷基等。

【0148】式(8a)中之 R^{22} 表示氫原子或甲基。又， R^{23} 表示包含聚醚鏈的有機基。作為上述包含聚醚鏈的有機基，並沒有特別的限定，例如可舉出作為上述式(7)中之 R^9 所例示者等。

【0149】式(8a)中之 r 、 s 及 t 各自表示 1~3000 之整數。

【0150】上述含氟丙烯酸系聚合物係可藉由眾所周知或慣用的製造方法而得，其製造方法係沒有特別的限定，例如可藉由聚合使給予式(8)所示的結構單元之單體(例如，丙烯酸全氟烷酯或甲基丙烯酸全氟烷酯等)進行聚合之方法等而製造。又，作為上述含氟丙烯酸系聚合物，亦可使用市售品。

【0151】上述式(9)中之 R^{24} 表示 3 價之直鏈或支鏈狀的烴基。作為上述 3 價之直鏈或支鏈狀的烴基，例如可舉出從甲烷、乙烷、丙烷、正丁烷、異丁烷、正戊烷、正己烷、2-甲基戊烷、3-甲基戊烷、庚烷、2-甲基庚烷、3-甲基庚烷、辛烷、壬烷、癸烷等之直鏈或支鏈狀的烴類中去除 3 個氫原子後之基(烷-三基)等。其中，較佳為從碳數 1~10 之直鏈或支鏈狀的烴類中去除 3 個氫原子後之基。

【0152】上述式(9)中之 R^{25} 表示氟化烴基。作為上述氟化烴基，只要是氫原子之一部分或全部經氟原子所取代的烴基即可，並沒有特別的限定，例如可舉出作為上述式(8)中之 R^{17} 所例示者等。其中，作為上述 R^{25} ，較佳為氫原子之一部分經氟原子所取代的烴基。

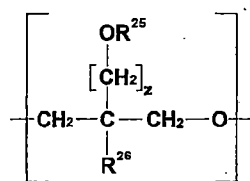
【0153】上述式(9)中之 z (亞甲基結構單元之重複數)表示 1~30 之整數。其中，較佳為 1~10 之整數。

【0154】再者，上述含氟聚醚系聚合物可為僅具有式(9)所示的結構單元作為重複結構單元之聚合物，也可為具有式(9)所示的結構單元以外的結構單元作為重複結構單元之聚合物。又，上述含氟聚醚系聚合物可為僅具有 1 種的式(9)所示的結構單元之聚合物，也可為具有 2 種以上的式(9)所示的結構單元之聚合物。另外，亦可為具有 2 種以上的式(9)所示的結構單元以外的結構單元之聚合物。

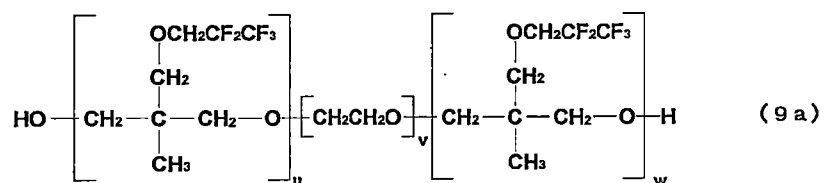
【0155】作為上述含氟聚醚系聚合物可具有之式(9)所示的結構單元以外的結構單元，並沒有特別的限定，

例如可舉出氧乙炔單元 $[-OCH_2CH_2-]$ 、氧丙炔單元 $[-OCH(CH_3)CH_2-]$ 等之氧化烯結構單元等。

【0156】作為上述式(9)所示的結構單元之具體例，例如可舉出下述式所示的結構單元等。下述式中之 R^{26} 表示氫原子、或碳數 1~4 之直鏈或支鏈狀的烷基(例如，甲基、乙基、丙基、正丁基等)。下述式中之 R^{25} 、 z 係與前述相同。



【0157】作為上述含氟聚醚系聚合物之具體例，例如可舉出下述式(9a)所示的含氟聚醚系聚合物等。



【0158】式(9a)中之 u 、 v 及 w 各自表示 1~50 之整數。其中， u 與 w 之合計較佳為 2~80 之整數，更佳為 4~30 之整數，尤佳為 6~14 之整數。又， v 較佳為 2~50 之整數，更佳為 5~20 之整數。

【0159】上述含氟聚醚系聚合物係可藉由眾所周知或慣用的製造方法而得，其製造方法係沒有特別的限定，例如可藉由聚合使給予式(9)所示的結構單元之單體(例如，環氧化合物或氧雜環丁烷化合物等之環狀醚化合物等)進行聚合(例如，開環聚合)之方法等而製造。又，作為上述含氟聚醚系聚合物，亦可使用市售品。

【0160】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的調平劑之不揮發分的含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 0.1~10 重量份，更佳為 0.1~5 重量份，尤佳為 0.1~4 重量份。若調平劑之含量(不揮發分換算)小於 0.1 重量份，則有硬化物的抗龜裂性降低之情況。另一方面，若調平劑之含量(不揮發分換算)超過 10 重量份，則有硬化物的耐熱性降低之情況。

【0161】特別地，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，上述聚矽氧系聚合物、上述含氟丙烯酸系聚合物及上述含氟聚醚系聚合物之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 0.1~10 重量份，更佳為 0.1~5 重量份，尤佳為 0.1~4 重量份。若上述聚矽氧系聚合物、上述含氟丙烯酸系聚合物及上述含氟聚醚系聚合物之含量小於 0.1 重量份，則有硬化物的抗龜裂性降低之情況。另一方面，若含量超過 10 重量份，則有硬化物的耐熱性降低之情況。再者，所謂的「上述聚矽氧系聚合物、上述含氟丙烯酸系聚合物及上述含氟聚醚系聚合物之含量(摻含量)」，就是意指當包含上述聚矽氧系聚合物、上述含氟丙烯酸系聚合物及上述含氟聚醚系聚合物中 2 種以上時，此等之含量的合計(合計含量)。

【0162】本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有上述特定的調平劑時，由上述樹脂組成物的硬化物所成之反

射器可以發揮更高水準的耐熱性、抗龜裂性，故抑制具備該反射器的光半導體裝置之隨著時間經過的光度降低(尤其，發出高亮度的光之光半導體裝置的光度降低)。推測如此的效果係藉由調平劑之摻合，提高本發明之硬化性環氧樹脂組成物(或其硬化物)對於密封材料(光半導體元件的密封樹脂)等之密著性而獲得。

【0163】

[多元醇化合物]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為進一步包含多元醇化合物。本發明之硬化性環氧樹脂組成物，由於包含上述多元醇化合物，可形成能顯示更高度的耐熱性及抗龜裂性之硬化物，使用該硬化物所製作的光半導體裝置係更不易發生隨著時間經過的光度降低。上述多元醇化合物係在分子內(一分子中)具有 2 個以上的羥基之數量平均分子量為 200 以上的聚合物(寡聚物或聚合物)，例如包含聚醚多元醇、聚酯多元醇、聚碳酸酯多元醇等。再者，上述多元醇化合物係可單獨或組合 2 種以上使用。

【0164】上述多元醇化合物所具有的羥基(2 個以上的羥基)係可為醇性羥基，也可為酚性羥基。又，上述多元醇化合物所具有的羥基之數(一分子中的羥基之數)只要是 2 個以上即可，並沒有特別的限定。

【0165】上述多元醇化合物所具有的羥基(2 個以上的羥基)之位置係沒有特別的限定，但於與硬化劑的反應性等之觀點上，較佳為至少存在於多元醇之末端(聚合物主鏈之末端)，特佳為至少存在於多元醇之兩末端。

【0166】上述多元醇化合物只要是在與其它成分摻合後可形成液狀的硬化性環氧樹脂組成物即可，可為固體，也可為液體。

【0167】上述多元醇化合物之數量平均分子量只要是 200 以上即可，並沒有特別的限定，但較佳為 200~100000，更佳為 300~50000，尤佳為 400~40000。若數量平均分子量小於 200，則在經過焊料回流步驟時，有發生硬化物的剝離或在硬化物中發生裂痕之情況。另一方面，若數量平均分子量超過 100000，則有從液狀的硬化性環氧樹脂組成物析出，或無法溶解之情況。再者，上述多元醇化合物之數量平均分子量係意指藉由凝膠滲透層析(GPC)所測定的標準聚苯乙烯換算之數量平均分子量。

【0168】作為上述多元醇化合物，例如可舉出在分子內具有酯骨架(聚酯骨架)的聚酯多元醇(包含聚酯多元醇寡聚物)、在分子內具有醚骨架(聚醚骨架)的聚醚多元醇(包含聚醚多元醇寡聚物)、在分子內具有碳酸酯骨架(聚碳酸酯骨架)的聚碳酸酯多元醇(包含聚碳酸酯多元醇寡聚物)等。於上述多元醇化合物中，另外亦可包含例如苯氧樹脂、環氧當量超過 1000g/eq.的雙酚型高分子環氧樹脂、具有羥基的聚丁二烯類、丙烯酸多元醇等。

【0169】作為上述聚酯多元醇，例如可舉出藉由多元醇、多羧酸(多元酸)、羥基羧酸之縮合聚合(例如，酯交換反應)而得的聚酯多元醇，或藉由內酯類之開環聚合而得的聚酯多元醇等。

【0170】作為構成上述聚酯多元醇的單體成分之多元醇，例如可舉出乙二醇、二乙二醇、1,2-丙二醇、2-甲基-1,3-丙二醇、1,3-丙二醇、1,4-丁二醇、1,3-丁二醇、2,3-丁二醇、1,5-戊二醇、2-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、2,3,5-三甲基-1,5-戊二醇、1,6-己二醇、2-乙基-1,6-己二醇、2,2,4-三甲基-1,6-己二醇、2,6-己二醇、1,8-辛二醇、1,4-環己烷二甲醇、1,2-二羥甲基環己烷、1,3-二羥甲基環己烷、1,4-二羥甲基環己烷、1,12-十二烷二醇、聚丁二烯二醇、新戊二醇、四亞甲基二醇、丙二醇、二丙二醇、丙三醇、三羥甲基丙烷、1,3-二羥基丙酮、己二醇、1,2,6-己三醇、雙三羥甲基丙烷、甘露糖醇、山梨糖醇、新戊四醇等。作為構成上述聚酯多元醇的單體成分之多羧酸，例如可舉出草酸、己二酸、癸二酸、富馬酸、丙二酸、琥珀酸、戊二酸、壬二酸、檸檬酸、2,6-萘二羧酸、鄰苯二甲酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、樟康酸、1,10-癸烷二羧酸、甲基六氫鄰苯二甲酸酐、六氫鄰苯二甲酸酐、甲基四氫鄰苯二甲酸酐、四氫鄰苯二甲酸酐、苯均四酸酐、偏苯三酸酐等。作為上述羥基羧酸，例如可舉出乳酸、蘋果酸、乙醇酸、二羥甲基丙酸、二羥甲基丁酸等。作為上述內酯類，例如可舉出 ϵ -己內酯、 δ -戊內酯、 γ -丁內酯等。

【0171】上述聚酯多元醇係可藉由眾所周知或慣用的製造方法而製造，並沒有特別的限定，例如可藉由上述多元醇與多羧酸之縮合聚合(聚縮合)、上述羥基羧酸之縮合聚合、上述內酯類之開環聚合等而製造。聚合時

之條件亦沒有特別的限定，可從眾所周知或慣用的反應條件中適宜選擇。再者，作為上述多元醇、多羧酸、羧基羧酸，亦可使用、眾所周知或慣用的衍生物(例如，羧基經醯基、烷氧基羰基、有機矽基、烷氧基烷基、氧雜環烷基等所保護之衍生物，或羧基衍生成烷酯、酸酐、氧化鹵化物等之衍生物等)。

【0172】作為上述聚酯多元醇，例如可使用商品名「Placel 205」、「Placel 205H」、「Placel 205U」、「Placel 205BA」、「Placel 208」、「Placel 210」、「Placel 210CP」、「Placel 210BA」、「Placel 212」、「Placel 212CP」、「Placel 220」、「Placel 220CPB」、「Placel 220NP1」、「Placel 220BA」、「Placel 220ED」、「Placel 220EB」、「Placel 220EC」、「Placel 230」、「Placel 230CP」、「Placel 240」、「Placel 240CP」、「Placel 210N」、「Placel 220N」、「Placel L205AL」、「Placel L208AL」、「Placel L212AL」、「Placel L220AL」、「Placel L230AL」、「Placel 305」、「Placel 308」、「Placel 312」、「Placel L312AL」、「Placel 320」、「Placel L320AL」、「Placel L330AL」、「Placel 410」、「Placel 410D」、「Placel 610」、「Placel P3403」、「Placel CDE9P」(以上，DAICEL(股)製)等之市售品。

【0173】作為上述聚醚多元醇，例如可舉出藉由環狀醚化合物往多元醇類之加成反應而得的聚醚多元醇、藉由環氧烷之開環聚合而得的聚醚多元醇等。

【0174】作為上述聚醚多元醇，更具體而言，例如可舉出乙二醇、二乙二醇、1,2-丙二醇(丙二醇)、2-甲基-1,3-丙二醇、1,3-丙二醇、1,4-丁二醇(四亞甲基二醇)、1,3-丁二醇、2,3-丁二醇、1,5-戊二醇、2-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、2,3,5-三甲基-1,5-戊二醇、1,6-己二醇、2-乙基-1,6-己二醇、2,2,4-三甲基-1,6-己二醇、2,6-己二醇、1,8-辛二醇、1,4-環己烷二甲醇、1,2-二羥甲基環己烷、1,3-二羥甲基環己烷、1,4-二羥甲基環己烷、1,12-十二烷二醇、聚丁二烯二醇、新戊二醇、二丙二醇、丙三醇、三羥甲基丙烷、1,3-二羥基丙酮、己二醇、1,2,6-己三醇、雙三羥甲基丙烷、甘露糖醇、山梨糖醇、新戊四醇等之多元醇類的多聚物；上述多元醇類與環氧乙烷、環氧丙烷、1,2-環氧丁烷、1,3-環氧丁烷、2,3-環氧丁烷、四氫呋喃、環氧氯丙烷等的環氧烷之加成物；四氫呋喃類等的環狀醚之開環聚合物(例如，聚四亞甲基二醇)等。

【0175】上述聚醚多元醇係可藉由眾所周知或慣用的製造方法而製造，並沒有特別的限定，例如可藉由環狀醚化合物往多元醇類之加成反應(開環加成聚合)、環氧烷之開環聚合(均聚合或共聚合)等而製造。聚合時之條件亦沒有特別的限定，可從眾所周知或慣用的反應條件中適宜選擇。

【0176】作為上述聚醚多元醇，例如可使用商品名「PEP-101」(FREUND 產業(股)製)、商品名「Adeka Pluronic L」、「Adeka Pluronic P」、「Adeka Pluronic

F」, 「Adeka Pluronic R」, 「Adeka Pluronic TR」, 「Adeka PEG」(以上, Adeka(股)製)、商品名「PEG#1000」, 「PEG#1500」, 「PEG#11000」(以上, 日油(股)製)、商品名「Newpol PE-34」, 「Newpol PE-61」, 「Newpol PE-78」, 「Newpol PE-108」, 「PEG-200」, 「PEG-600」, 「PEG-2000」, 「PEG-6000」, 「PEG-10000」, 「PEG-20000」(以上, 三洋化成工業(股)製)、商品名「PTMG1000」, 「PTMG1800」, 「PTMG2000」(以上, 三菱化學(股)製)、 「PTMG Prepolymer」(三菱樹脂(股)製)等之市售品。

【0177】上述聚碳酸酯多元醇係在分子內具有 2 個以上的羥基之聚碳酸酯。其中, 作為上述聚碳酸酯多元醇, 較佳為在分子內具有 2 個末端羥基之聚碳酸酯二醇。

【0178】上述聚碳酸酯多元醇係可與通常製造聚碳酸酯多元醇之方法相同, 藉由光氣法或使用如碳酸二甲酯、碳酸二乙酯之碳酸二烷酯或碳酸二苯酯之碳酸酯交換反應(日本特開昭 62-187725 號公報、日本特開平 2-175721 號公報、日本特開平 2-49025 號公報、日本特開平 3-220233 號公報、日本特開平 3-252420 號公報等)等而合成。上述聚碳酸酯多元醇中之碳酸酯鍵由於不易遭受熱分解, 故包含聚碳酸酯多元醇的樹脂硬化物係在高溫高濕下亦顯示優異的安定性。

【0179】作為與上述碳酸二烷酯或碳酸二苯酯一起在碳酸酯交換反應中使用的多元醇, 例如可舉出 1,6-己二醇、乙二醇、二乙二醇、1,3-丙二醇、1,4-丁二醇、1,3-

丁二醇、2,3-丁二醇、1,5-戊二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、1,4-環己烷二甲醇、1,8-辛二醇、1,9-壬二醇、1,12-十二烷二醇、丁二烯二醇、新戊二醇、四亞甲基二醇、丙二醇、二丙二醇等。

【0180】作為上述聚碳酸酯多元醇，例如可使用商品名「Placel CD205PL」、「Placel CD205HL」、「Placel CD210PL」、「Placel CD210HL」、「Placel CD220PL」、「Placel CD220HL」(以上，DAICEL(股)製)、商品名「UH-CARB50」、「UH-CARB100」、「UH-CARB300」、「UH-CARB90(1/3)」、「UH-CARB90(1/1)」、「UC-CARB100」(以上，宇部興產(股)製)、商品名「PCDL T4671」、「PCDL T4672」、「PCDL T5650J」、「PCDL T5651」、「PCDL T5652」(以上，旭化成化學(股)製)等之市售品。

【0181】作為上述聚醚多元醇、聚酯多元醇、聚碳酸酯多元醇以外之多元醇化合物，例如可使用商品名「YP-50」、「YP-50S」、「YP-55U」、「YP-70」、「ZX-1356-2」、「YPB-43C」、「YPB-43M」、「FX-316」、「FX-310T40」、「FX-280S」、「FX-293」、「YPS-007A30」、「TX-1016」(以上，新日鐵化學(股)製)、商品名「jER1256」、「jER4250」、「jER4275」(以上，三菱化學(股)製)等之苯氧樹脂；商品名「Epotohto YD-014」、「Epotohto YD-017」、「Epotohto YD-019」、「Epotohto YD-020G」、「Epotohto YD-904」、「Epotohto YD-907」、「Epotohto YD-6020」(以上，新日鐵化學(股)製)、商品

名「jER1007」、「jER1009」、「jER1010」、「jER1005F」、「jER1009F」、「jER1006FS」、「jER1007FS」(以上，三菱化學(股)製)等之環氧當量超過 1000g/eq.的雙酚型高分子環氧樹脂；商品名「Poly bd R-45HT」、「Poly bd R-15HT」、「Poly ip」、「KRASOL」(以上，出光興產(股)製)，商品名「 α - ω 聚丁二烯二醇 G-1000」、「 α - ω 聚丁二烯二醇 G-2000」、「 α - ω 聚丁二烯二醇 G-3000」(以上，日本曹達(股)製)等之具有羥基的聚丁二烯類；商品名「Hitaloid 3903」、「Hitaloid 3904」、「Hitaloid 3905」、「Hitaloid 6500」、「Hitaloid 6500B」、「Hitaloid 3018X」(以上，日立化成工業(股)製)、商品名「Acrylic DL-1537」、「Acrylic BL-616」、「Acrylic AL-1157」、「Acrylic A-322」、「Acrylic A-817」、「Acrylic A-870」、「Acrylic A-859-B」、「Acrylic A-829」、「Acrylic A-49-394-IM」(以上，DIC(股)製)、商品名「Dianal SR-1346」、「Dianal SR-1237」、「Dianal AS-1139」(以上，三菱麗陽(股)製)等之丙烯酸多元醇等之市售品。

【0182】上述多元醇化合物之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於上述成分(A)及成分(B)之合計量(100重量份)，較佳為 1~50 重量份，更佳為 1.5~40 重量份，尤佳為 5~30 重量份。若多元醇化合物之含量超過 50 重量份，則硬化物之 Tg 過度降低，因加熱所致的體積變化大，有發生光半導體裝置之不亮燈等不合適之情況。若多元醇化合物之含量小於 1 重量份，則有光反射性容易隨著時間經過而降低之情況。

【0183】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)時，上述多元醇化合物之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於上述成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100 重量份)，較佳為 1~50 重量份，更佳為 1.5~40 重量份，尤佳為 5~30 重量份。若多元醇化合物之含量超過 50 重量份，則硬化物之 Tg 過度降低，因加熱所致的體積變化大，有發生光半導體裝置之不亮燈等不合適之情況。若多元醇化合物之含量小於 1 重量份，則有光反射性容易隨著時間經過而降低之情況。

【0184】

[丙烯酸嵌段共聚物]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為進一步包含丙烯酸嵌段共聚物。更詳細而言，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含丙烯酸嵌段共聚物時，使用該硬化性環氧樹脂組成物所製造之光半導體裝置，尤其即使在高亮度、高輸出之情況，也有光度不易降低之傾向。即，藉由使用丙烯酸嵌段共聚物，將本發明之硬化性環氧樹脂組成物硬化而得的硬化物係可發揮更高水準的耐熱性、耐光性及抗龜裂性。

【0185】上述丙烯酸嵌段共聚物係含有丙烯酸系單體作為必要的單體成分之嵌段共聚物。作為上述丙烯酸系單體，例如可舉出丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸正丁酯、丙烯酸三級丁酯、丙烯酸 2-乙基己酯、甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸正丁酯、甲基

丙烯酸三級丁酯、甲基丙烯酸 2-乙基己酯、甲基丙烯酸月桂酯、甲基丙烯酸十八酯等之(甲基)丙烯酸烷酯；丙烯酸環己酯、甲基丙烯酸環己酯等之具有脂環結構的(甲基)丙烯酸酯；甲基丙烯酸苄酯等之具有芳香環的(甲基)丙烯酸酯；甲基丙烯酸 2-三氟乙酯等之(甲基)丙烯酸的(氟)烷酯；丙烯酸、甲基丙烯酸、馬來酸、馬來酸酐等之在分子中具有羧基之含有羧基的丙烯酸單體；丙烯酸 2-羥基乙酯、丙烯酸 2-羥基丙酯、丙烯酸 4-羥基丁酯、甲基丙烯酸 2-羥基乙酯、甲基丙烯酸 2-羥基丙酯、甲基丙烯酸 4-羥基丁酯、丙三醇的單(甲基)丙烯酸酯等之在分子中具有羥基之含有羥基的丙烯酸單體；甲基丙烯酸環氧丙酯、甲基丙烯酸甲基環氧丙酯、甲基丙烯酸 3,4-環氧基環己基甲酯等之在分子中具有環氧基的丙烯酸單體；丙烯酸烯丙酯、甲基丙烯酸烯丙酯等之在分子中具有烯丙基之含有烯丙基的丙烯酸單體； γ -甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、 γ -甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷等之在分子中具有水解性矽基之含有矽烷基的丙烯酸單體；2-(2'-羥基-5'-甲基丙烯醯氧基乙基苯基)-2H-苯并三唑等之苯并三唑系具有紫外線吸收性基的紫外線吸收性丙烯酸單體等。

【0186】再者，於上述丙烯酸嵌段共聚物中，亦可使用上述丙烯酸系單體以外的單體作為單體成分。作為上述丙烯酸系單體以外的單體，例如可舉出苯乙烯、 α -甲基苯乙烯等之芳香族乙烯基化合物、丁二烯、異戊二烯等之共軛二烯、乙烯、丙烯、異丁烯等之烯烴等。

【0187】作為上述丙烯酸嵌段共聚物，並沒有特別的限定，例如可舉出由 2 個聚合物嵌段所成的二嵌段共聚物、或由 3 個聚合物嵌段所成的三嵌段共聚物、由 4 個以上的聚合物嵌段所構成的多嵌段共聚物等。

【0188】其中，作為上述丙烯酸嵌段共聚物，於耐熱性、耐光性及抗龜裂性升高之觀點上，較佳為玻璃轉移溫度(T_g)低的聚合物嵌段[S](軟嵌段)與具有 T_g 比聚合物嵌段[S]更高的聚合物嵌段[H](硬嵌段)交替排列的嵌段共聚物，更佳為在中間具有聚合物嵌段[S]，在其兩端具有聚合物嵌段[H]的 H-S-H 結構之三嵌段共聚物。再者，構成上述丙烯酸嵌段共聚物的聚合物嵌段[S]之聚合物的 T_g 係沒有特別的限定，但較佳為小於 30°C 。又，構成聚合物嵌段[H]的聚合物之 T_g 係沒有特別的限定，但較佳為 30°C 以上。於上述丙烯酸嵌段共聚物具有複數的聚合物嵌段[H]時，各自的聚合物嵌段[H]可具有相同的組成，也可相異。同樣地，於上述丙烯酸嵌段共聚物具有複數的聚合物嵌段[S]時，亦各自的聚合物嵌段[S]可具有相同的組成，也可相異。

【0189】於上述丙烯酸嵌段共聚物(上述 H-S-H 結構的三嵌段共聚物等)中，作為構成聚合物嵌段[H]的單體成分，並沒有特別的限定，例如可舉出均聚物的 T_g 為 30°C 以上之單體，更詳細而言，可舉出甲基丙烯酸甲酯、苯乙烯、丙烯醯胺、丙烯腈等。另一方面，於上述丙烯酸嵌段共聚物中，作為構成聚合物嵌段[S]的單體成分，並沒有特別的限定，例如可舉出均聚物的 T_g 小於 30°C

之單體，更詳細而言，可舉出丙烯酸丁酯或丙烯酸 2-乙基己酯等之丙烯酸 C₂₋₁₀ 烷酯、丁二烯(1,4-丁二烯)等。

【0190】作為本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的丙烯酸嵌段共聚物之較佳具體例，例如上述聚合物嵌段[S]以丙烯酸丁酯(BA)為主要單體所構成的聚合物，上述聚合物嵌段[H]以甲基丙烯酸甲酯(MMA)為主要單體所構成的聚合物，可舉出聚甲基丙烯酸甲酯-嵌段-聚丙烯酸丁酯-嵌段-聚甲基丙烯酸甲酯三聚物(PMMA-b-PBA-b-PMMA)等。上述 PMMA-b-PBA-b-PMMA 係在耐熱性、耐光性及抗龜裂性升高之點上較宜。再者，上述 PMMA-b-PBA-b-PMMA 係按照需要，以提高對於成分(A)及成分(B)等的相溶性為目的，亦可使具有親水性基(例如，羥基、羧基、胺基等)的單體例如(甲基)丙烯酸羥基乙酯、(甲基)丙烯酸羥基丙酯、(甲基)丙烯酸等共聚合於 PMMA 嵌段及/或 PBA 嵌段。

【0191】上述丙烯酸嵌段共聚物之數量平均分子量係沒有特別的限定，但較佳為 3000~500000，更佳為 30000~400000。若數量平均分子量小於 3000，則硬化物的強韌性不充分，有抗龜裂性降低之情況。另一方面，若數量平均分子量超過 500000，則與脂環式環氧化合物(A)的相溶性降低，有對硬化物的機械物性造成不良影響及抗龜裂性降低之情況。

【0192】上述丙烯酸嵌段共聚物係可藉由眾所周知或慣用的嵌段共聚物之製造方法而製造。作為上述丙烯酸嵌段共聚物之製造方法，尤其在容易控制丙烯酸嵌段

共聚物的分子量、分子量分布及末端結構等之觀點上，較佳為活性聚合(活性自由基聚合、活性陰離子聚合、活性陽離子聚合等)。上述活性聚合係可藉由眾所周知或慣用的方法而實施。

【0193】又，作為上述丙烯酸嵌段共聚物，例如亦可使用商品名「Nanostrength M52N」、「Nanostrength M22N」、「Nanostrength M51」、「Nanostrength M52」、「Nanostrength M53」(ARKEMA 製、PMMA-b-PBA-b-PMMA)、商品名「Nanostrength E21」、「Nanostrength E41」(ARKEMA 製，PSt(聚苯乙烯)-b-PBA-b-PMMA)等之市售品。

【0194】上述丙烯酸嵌段共聚物之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於上述成分(A)及成分(B)之合計量(100 重量份)，較佳為 1~30 重量份，更佳為 3~15 重量份，尤佳為 3~10 重量份。若丙烯酸嵌段共聚物之使用量小於 1 重量份，則硬化物的強韌性不充分，有耐熱性、耐光性降低之情況。另一方面，若丙烯酸嵌段共聚物之使用量超過 30 重量份，則與脂環式環氧化合物(A)的相溶性降低，有硬化物的抗龜裂性降低之情況。

【0195】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)時，上述丙烯酸嵌段共聚物之使用量(含量)係沒有特別的限定，但相對於上述成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100 重量份)，較佳為 1~30 重量份，更佳為 3~15 重量份，尤佳為 3~10 重量份。若丙烯酸嵌段共聚物之使用量小於

1 重量份，則硬化物的強韌性不充分，有耐熱性、耐光性降低之情況。另一方面，若丙烯酸嵌段共聚物之使用量超過 30 重量份，則與脂環式環氧化合物(A)的相溶性降低，有硬化物的抗龜裂性降低之情況。

【0196】

[聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可進一步包含聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子(以下，亦僅稱「橡膠粒子」)。作為上述橡膠粒子，例如可舉出粒狀 NBR(丙烯腈-丁二烯橡膠)、反應性末端羧基 NBR(CTBN)、無金屬的 NBR、粒狀 SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠)等之橡膠粒子。作為上述橡膠粒子，較佳為具有由具有橡膠彈性的芯部分與被覆該芯部分的至少 1 層之殼層所構成之多層結構(芯殼結構)的橡膠粒子。上述橡膠粒子特佳為以(甲基)丙烯酸酯作為必要單體成分的聚合物(聚合物)所構成，在表面具有羥基及/或羧基(羥基及羧基之任一者或兩者)作為能與脂環式環氧化合物(A)等具有環氧基的化合物反應之官能基的橡膠粒子。當羥基及/或羧基不存在於上述橡膠粒子之表面時，有在硬化物容易發生裂痕之情況。

【0197】構成上述橡膠粒子中的具有橡膠彈性的芯部分之聚合物係沒有特別的限定，但較佳為以(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸丁酯等之(甲基)丙烯酸酯作為必要單體成分。構成上述具有橡膠彈性的芯部分之聚合物，另外例如亦可包含苯乙烯、 α -甲基苯乙烯等之芳香族乙烯基(芳香族乙烯基化合物)、丙烯

腈、甲基丙烯腈等之腈、丁二烯、異戊二烯等之共軛二烯、乙烯、丙烯、異丁烯等作為單體成分。

【0198】其中，構成上述具有橡膠彈性的芯部分之聚合物，係在作為單體成分，較佳係將(甲基)丙烯酸酯以及選自包含芳香族乙烯基、腈及共軛二烯之群組的 1 種或 2 種以上一起予以組合而包含。即，作為構成上述芯部分的聚合物，例如可舉出(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基、(甲基)丙烯酸酯/共軛二烯等之二元共聚物；(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基/共軛二烯等之三元共聚物等。再者，於構成上述芯部分的聚合物中，亦可包含聚二甲基矽氧烷或聚苯基甲基矽氧烷等之聚矽氧或聚胺甲酸酯等。

【0199】構成上述芯部分的聚合物，係在作為其它單體成分，亦可含有二乙烯基苯、(甲基)丙烯酸烯丙酯、乙二醇二(甲基)丙烯酸酯、馬來酸二烯丙酯、三聚氰酸三烯丙酯、苯二甲酸二烯丙酯、丁二醇二丙烯酸酯等之在 1 單體(1 分子)中具有 2 個以上的反應性官能基之反應性交聯單體。

【0200】上述橡膠粒子之芯部分，尤其在耐熱性之觀點上，較佳為由(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基的二元共聚物(尤其，丙烯酸丁酯/苯乙烯)、或(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基/反應性交聯單體的三元共聚物(尤其，丙烯酸丁酯/苯乙烯/二乙烯基苯)所構成之芯部分。

【0201】上述橡膠粒子之芯部分係可藉由通常使用的方法而製造，例如可藉由以乳化聚合法將上述單體聚

合之方法等而製造。於乳化聚合法中，可將上述單體之全量成批加入而聚合，也可在聚合上述單體的一部分後，連續地或斷續地添加剩餘者而聚合，再者也可採用使用種子粒子的聚合方法。

【0202】構成上述橡膠粒子的殼層之聚合物，較佳為與構成上述芯部分的聚合物不同種之聚合物。又，如上述，上述殼層較佳為具有羥基及/或羧基作為能與脂環式環氧化合物(A)等具有環氧基的化合物反應之官能基。藉此，尤其在與脂環式環氧化合物(A)之界面，可提高接著性，對於使包含具有該殼層的芯殼型橡膠粒子之硬化性環氧樹脂組成物硬化而成之硬化物，可發揮優異的抗龜裂性。又，亦可防止硬化物的玻璃轉移溫度之降低。

【0203】構成上述殼層的聚合物，較佳為包含(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸丁酯等之(甲基)丙烯酸酯作為必要單體成分之聚合物。例如，於使用丙烯酸丁酯作為上述芯部分中的(甲基)丙烯酸酯時，作為構成殼層的聚合物之單體成分，例如較佳為使用丙烯酸丁酯以外之(甲基)丙烯酸酯(例如，(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸丁酯等)。作為(甲基)丙烯酸酯以外亦可包含的單體成分，例如可舉出苯乙烯、 α -甲基苯乙烯等之芳香族乙烯基、丙烯腈、甲基丙烯腈等之腈等。於上述橡膠粒子中，作為構成殼層的單體成分，較佳為與(甲基)丙烯酸酯一起，單獨或組合二種以上包含上述單體，特別地於耐熱性之觀點上，較佳為至少包含芳香族乙烯基。

【0204】再者，構成上述殼層的聚合物，係在作為單體成分，為了形成羥基及/或羧基作為能與脂環式環氧化合物(A)等具有環氧基的化合物反應的官能基，較佳為含有(甲基)丙烯酸 2-羥基乙酯等之(甲基)丙烯酸羥基烷酯等、或(甲基)丙烯酸等之 α,β -不飽和酸、馬來酸酐等之 α,β -不飽和酸酐等單體。

【0205】構成上述橡膠粒子中之殼層的聚合物，係在作為單體成分，較佳為與(甲基)丙烯酸酯一起，組合包含由上述單體所選出的 1 種或 2 種以上。即，上述殼層例如較佳為由(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基/羥基烷基(甲基)丙烯酸酯、(甲基)丙烯酸酯/芳香族乙烯基/ α,β -不飽和酸、(甲基)丙烯酸酯/ α,β -不飽和酸/反應性交聯單體(甲基丙烯酸甲酯/丙烯酸/甲基丙烯酸烯丙酯等)等的三元共聚物等所構成之殼層。

【0206】又，構成上述殼層的聚合物，係在作為其它的單體成分，與芯部分同樣地，除了上述單體之外，還可含有二乙烯基苯、(甲基)丙烯酸烯丙酯、乙二醇二(甲基)丙烯酸酯、馬來酸二烯丙酯、三聚氰酸三烯丙酯、苯二甲酸二烯丙酯、丁二醇二丙烯酸酯等之在 1 單體(1 分子)中具有 2 個以上的反應性官能基之反應性交聯單體。

【0207】上述橡膠粒子(具有芯殼結構的橡膠粒子)係藉由殼層被覆上述芯部分而得。作為以殼層被覆上述芯部分之方法，例如可舉出藉由於以上述方法所得之具有橡膠彈性的芯部分之表面上，塗布構成殼層的聚合物而被覆之方法；將以上述方法所得之具有橡膠彈性的芯

部分當作幹成分，以構成殼層的各成分作為枝成分而接枝聚合之方法等。

【0208】上述橡膠粒子之平均粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 10~500nm，更佳為 20~400nm。又，上述橡膠粒子之最大粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 50~1000nm，更佳為 100~800nm。若平均粒徑高於 500nm 或最大粒徑高於 1000nm，則硬化物中的橡膠粒子之分散性降低，有抗龜裂性降低之情況。另一方面，若平均粒徑低於 10nm 或最大粒徑低於 50nm，則有難以得到硬化物的抗龜裂性升高之效果的情況。

【0209】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的上述橡膠粒子之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100 重量份)，較佳為 0.5~30 重量份，更佳為 1~20 重量份。若橡膠粒子之含量低於 0.5 重量份，則有硬化物的抗龜裂性降低之傾向。另一方面，若橡膠粒子之含量高於 30 重量份，則有硬化物的耐熱性降低之傾向。

【0210】

[應力緩和劑(I)]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為包含應力緩和劑(I)。應力緩和劑(I)係可緩和硬化物中的內部應力之化合物。本發明之硬化性環氧樹脂組成物係藉由將應力緩和劑(I)與脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)及白色顏料(C)組合使用，而即使增加白色顏料(C)或後述的無機填充劑(J)之填充量，也

能壓縮成型，而且有藉由壓縮成型所形成的硬化物之光反射性、耐熱性及耐光性優異之傾向。又，藉由應力緩和劑(I)來緩和硬化物的內部應力，亦可減少因壓縮成型所致的成形物之翹曲。

【0211】作為上述應力緩和劑(I)，並沒有特別的限定，例如可舉出聚矽氧橡膠粒子(I1)、聚矽氧油(I2)、液狀橡膠成分(I3)、熱塑性樹脂(I4)等。

【0212】作為上述聚矽氧橡膠粒子(I1)，並沒有特別的限定，例如可舉出由聚甲基矽氧烷、聚甲基苯基矽氧烷等之聚矽氧烷所構成者。

又，構成聚矽氧橡膠粒子(I1)的聚矽氧烷較佳為交聯者。作為經交聯的聚矽氧烷，並沒有特別的限定，例如可例示藉由矽醇基等之縮合反應、巰基矽基與乙烯基矽基之自由基反應、乙烯基矽基與氫矽基(SiH基)之加成反應等而交聯的聚矽氧烷等，但從反應性、反應步驟上之點來看，較佳為使含有乙烯基的有機聚矽氧烷與有機氫聚矽氧烷在鉑系觸媒之存在下加成反應而交聯之聚矽氧烷。

【0213】又，從與樹脂組成物的親和性、分散性升高及分散後的樹脂組成物之黏度調整的觀點來看，上述聚矽氧橡膠粒子(I1)亦可被表面處理。表面處理的態樣係沒有特別的限定，例如可舉出經甲基丙烯酸甲酯所被覆的聚矽氧橡膠粒子、經聚矽氧樹脂所被覆的聚矽氧橡膠粒子。

【0214】上述聚矽氧橡膠粒子(I1)之平均粒徑(d_{50})係沒有特別的限定，但較佳為 $0.1\sim 100\mu\text{m}$ ，更佳為 $0.5\sim 50\mu\text{m}$ 。又，上述聚矽氧橡膠粒子(I1)之最大粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 $0.1\sim 250\mu\text{m}$ ，更佳為 $0.1\sim 150\mu\text{m}$ 。藉由將平均粒徑設為 $100\mu\text{m}$ 以下(或，將最大粒徑設為 $250\mu\text{m}$ 以下)，有硬化物的抗龜裂性更升高之傾向。另一方面，藉由將平均粒徑設為 $0.1\mu\text{m}$ 以上(或，將最大粒徑設為 $0.1\mu\text{m}$ 以上)，有上述聚矽氧橡膠粒子(I1)的分散性更升高之傾向。

又，聚矽氧橡膠粒子(I1)之形狀亦沒有特別的限定，但從提高作業性之觀點來看，較佳為球狀。

【0215】作為上述聚矽氧橡膠粒子(I1)，從藉由壓縮成型可形成光反射性、耐熱性及耐光性優異的硬化物之觀點來看，較佳為由經交聯的聚矽氧烷所成者或此之表面經聚矽氧樹脂所被覆者，其中從樹脂成分與聚矽氧橡膠粒子(I1)的相溶性之點來看，特佳為以聚矽氧樹脂被覆經交聯的聚二甲基矽氧烷之表面者。

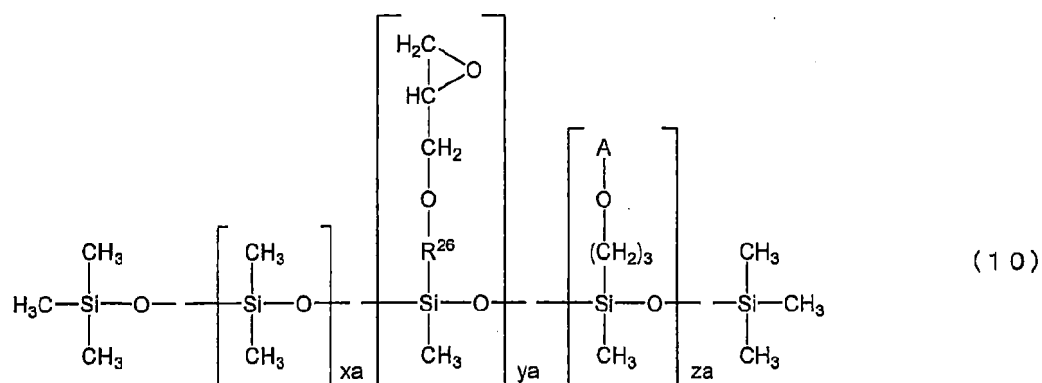
【0216】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，聚矽氧橡膠粒子(I1)係可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。又，作為上述聚矽氧橡膠粒子(I1)，可藉由眾所周知或慣用的方法而製造，其製造方法例如可使用藉由日本特開平 7-196815 號公報記載之方法所製造的聚矽氧橡膠粒子，或亦可使用商品名「KMP-600」、「KMP-601」、「KMP-602」、「KMP-605」、「X-52-7030」、「KMP-597」、「KMP-598」、「KMP-594」、「X-52-875」、「KMP-590」、「KMP-701」(以上，信越化學工業(股)製)等之市售品。

【0217】作為上述聚矽氧油(I2)，並沒有特別的限定，例如可舉出非改質聚矽氧油、改質聚矽氧油等。

【0218】作為非改質聚矽氧油，並沒有特別的限定，例如可舉出聚二甲基矽氧烷型、聚甲基氫矽氧烷型、聚甲基苯基矽氧烷型等。

【0219】作為改質聚矽氧油，並沒有特別的限定，例如可使用對於環氧樹脂具有反應性的反應性聚矽氧油、對於環氧樹脂不具有反應性的非反應性聚矽氧油之任一者。作為反應性聚矽氧油，例如可舉出胺基改質型、環氧基改質型、羧基改質型、甲醇改質型、甲基丙烯酸改質型、巯基改質型、酚改質型等。作為非反應性聚矽氧油，例如可舉出聚伸烷基醚改質型、甲基苯乙烯基改質型、烷基改質型、脂肪酸酯改質型、烷氧基改質型、氟改質型等。又，反應性聚矽氧油亦可具有非反應性改質基，例如可舉出聚伸烷基醚-胺基改質聚矽氧油、聚伸烷基醚-環氧基改質聚矽氧油等，較佳為與脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、矽氧烷衍生物(G)等之具有環氧基的化合物有反應性，能控制流動性或黏度之聚伸烷基醚-環氧基改質聚矽氧油。

【0220】作為上述聚矽氧油(I2)，從藉由壓縮成型可形成光反射性、耐熱性及耐光性優異的硬化物之觀點來看，較佳為聚伸烷基醚-環氧基改質聚矽氧油，特佳為環氧當量3000~15000之具有下述式(10)所示的結構之聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物(以下，亦稱為「聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物(10)」)。



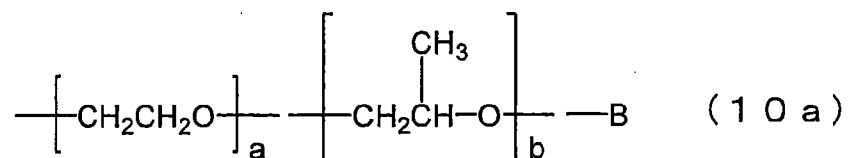
【0221】上述式(10)中， R^{26} 為碳數 2 或 3 的伸烷基。作為碳數 2 或 3 的伸烷基，例如可舉出甲基亞甲基、二甲基亞甲基、伸乙基、伸丙基、三亞甲基等，較佳為三亞甲基。

【0222】上述式(10)中， xa 表示 80~140 之整數。

上述式(10)中， ya 表示 1~5 之整數。於 ya 為 2 以上之整數時，附有 ya 的括弧內之結構係可各自相同，也可相異。

上述式(10)中， za 表示 5~20 之整數。再者，附有 za 的括弧內之結構係可各自相同，也可相異。

【0223】上述式(10)中， A 為具有下述式(10a)所示的結構之聚伸烷基醚基。



【0224】上述式(10a)中， a 及 b 各自獨立地為 0~40 之整數。由於 a 為 40 以下，有硬化物的耐水性升高之傾向。

另一方面，由於 b 為 40 以下，有硬化性環氧樹脂組成物的流動性升高之傾向。

【0225】a 及 b 之合計係沒有特別的限定，但較佳為 1~80 之整數。由於 a 及 b 之合計在該範圍內，變得容易控制硬化物的耐水性與硬化性環氧樹脂組成物的流動性。

【0226】上述式(10a)中，B 為氫原子或甲基。從硬化物的耐水性之觀點來看，B 較佳為甲基。

【0227】上述式(10)中之各結構單元之加成型態只要式(10)中的 2 個三甲基矽基存在於兩末端，則可為隨機型，也可為嵌段型。又，上述式(10a)中之各結構單元之加成型態亦只要 B 存在末端，則可為隨機型，也可為嵌段型。另外，上述式(10)、(10a)中之各結構單元的排列順序亦沒有特別的限定。

【0228】上述聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物(10)之環氧當量係如上述，為 3000~15000，較佳為 4000~15000，更佳為 5000~13000。由於環氧當量為 3000 以上，有硬化物的內部之應力緩和更升高之傾向。另一方面，由於環氧當量為 15000 以下，有與樹脂的相溶性更升高之傾向。

再者，聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物(10)之環氧當量係可依據 JIS K 7236：2001 測定。

【0229】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，聚矽氧油(I2)亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。又，作為上述聚矽氧油(I2)，可藉由眾所周知或慣用的方

法而製造，例如可使用藉由日本特開 2008-201904 號公報記載之方法所製造的聚矽氧油(I2)，或亦可使用商品名「SF8421」(東麗·道康寧(股)製)、商品名「Y-19268」(Momentive Performance Materials·日本(同)製)等之市售品

【0230】作為上述液狀橡膠成分(I3)，並沒有特別的限定，例如可舉出聚丁二烯、馬來酸化聚丁二烯、丙烯酸化聚丁二烯、甲基丙烯酸化聚丁二烯、環氧基化聚丁二烯、丙烯腈丁二烯橡膠、羧基末端丙烯腈丁二烯橡膠、胺基末端丙烯腈丁二烯橡膠、乙烯基末端丙烯腈丁二烯橡膠、苯乙烯丁二烯橡膠等。

上述液狀橡膠成分(I3)亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。

【0231】作為上述熱塑性樹脂(I4)，並沒有特別的限定，例如可舉出聚醯亞胺樹脂、聚醯胺樹脂、聚醚醯亞胺樹脂、聚酯樹脂、聚酯醯亞胺樹脂、苯氧樹脂、聚砜樹脂、聚醚砜樹脂、聚苯硫樹脂、聚醚酮樹脂等。於此等之中，耐從熱性之觀點來看，較佳為苯氧樹脂、聚醯亞胺樹脂。此等之熱塑性樹脂亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。

【0232】上述熱塑性樹脂(I4)之玻璃轉移溫度(Tg)係沒有特別的限定，但較佳為 200℃ 以下。

【0233】上述應力緩和劑(I)亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。

作為上述應力緩和劑(I)，從藉由壓縮成型可形成光反射性、耐熱性及耐光性優異的硬化物之觀點來看，較佳為選自包含聚矽氧橡膠粒子(I1)及聚矽氧油(I2)之群組的至少1種，尤其作為聚矽氧橡膠粒子(I1)，較佳為在表面具備聚矽氧樹脂之經交聯的聚二甲基矽氧烷，作為聚矽氧油(I2)，較佳為聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物(10)。

【0234】本發明之應力緩和劑(I)之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於100重量份的脂環式環氧化合物(A)，較佳為1~250重量份，更佳為5~230重量份，尤佳為10~200重量份。藉由將應力緩和劑(I)之含量設為1重量份以上，即使增加白色顏料(C)或後述的無機填充劑(J)之填充量，也能壓縮成型，而且有所成形的硬化物之光反射性、耐熱性及耐光性更升高之傾向。又，緩和成形品之翹曲，有尺寸安定性升高之傾向。另一方面，藉由將應力緩和劑(I)之含量設為250重量份以下，有硬化性環氧樹脂組成物的硬化性更升高之傾向。

【0235】本發明之應力緩和劑(I)之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量100重量份，較佳為1~200重量份，更佳為5~150重量份，尤佳為8~120重量份。藉由將應力緩和劑(I)之含量設為1重量份以上，即使增加白色顏料(C)或後述的無機填充劑(J)之填充量，也能壓縮成型，而且有所成形的硬化物之硬化物的光反射性、耐熱性及耐光性更升高之傾向。又，緩和成

形品之翹曲，有尺寸安定性升高之傾向。另一方面，藉由將應力緩和劑(I)之含量設為 200 重量份以下，有硬化性環氧樹脂組成物的硬化性更升高之傾向。

【0236】

[無機填充劑(J)]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物係除了白色顏料(C)之外，較佳為還包含無機填充劑(J)。無機填充劑(J)主要是在藉由壓縮成型而形成硬化性環氧樹脂組成物時，對於所成形的硬化物，賦予優異耐熱性及耐光性(尤其，優異的耐熱性)。又，具有減低硬化物(反射器)的線膨脹率之作用。另外，取決於無機填充劑(J)之種類，亦有能對於硬化物(反射器)賦予優異的光反射性之情況。

【0237】作為無機填充劑(J)，可使用眾所周知或慣用的無機填充劑，並沒有特別的限定，例如可舉出矽石、鋯石、矽酸鈣、磷酸鈣、碳化矽、氮化矽、氮化鋁、氮化硼、氧化鐵、氧化鋁、鎂椰欖石、塊滑石、尖晶石、黏土、白雲石、羥基磷灰石、霞石正長岩、方英石、矽灰石、矽藻土等之粉體、或此等之成型體(例如，球形化的珠等)等。又，作為無機填充劑(J)，亦可舉出對於上述之無機填充劑施有眾所周知或慣用的表面處理者等。其中，作為無機填充劑(J)於硬化物(反射器)的耐熱性(尤其，耐黃變性)、耐光性及流動性之觀點上，較佳為矽石、氮化矽、氮化鋁、氮化硼，更佳為矽石(矽石填料)。

【0238】作為矽石，並沒有特別的限定，例如可使用熔融矽石、結晶矽石、高純度合成矽石等之眾所周知

或慣用的矽石。再者，作為矽石，亦可使用施有眾所周知或慣用的表面處理[例如，藉由金屬氧化物、矽烷偶合劑、鈦偶合劑、有機酸、多元醇、聚矽氧等的表面處理劑之表面處理等]者。

【0239】矽石之形狀係沒有特別的限定，例如可舉出粉體、球狀、破碎狀、纖維狀、針狀、鱗片狀等。其中，於分散性之觀點上，較佳為球狀的矽石，特佳為真球狀的矽石(例如，縱橫比為 1.2 以下的球狀矽石)。

【0240】矽石之中心粒徑係沒有特別的限定，但於硬化物(反射器)的光反射性升高之觀點上，較佳為 0.1~50 μm ，更佳為 0.1~30 μm 。再者，上述中心粒徑係意指以雷射繞射·散射法所測定的粒度分布中之在累計值 50%的粒徑(中值徑)。

【0241】再者，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，無機填充劑(J)亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。又，無機填充劑(J)亦可藉由眾所周知或慣用的製造方法而製造，例如亦可使用商品名「FB-910」、「FB-940」、「FB-950」、「FB-105」、「FB-105FD」、「FB-5D」、「FB-8S」、「FB-7SDC」、「FB-5SDC」、「FB-3SDC」、「FB-9FDC」、「FB-7FDC」、「FB-5FDC」、「FB-970FD」、「FB-975FD」、「FB-950FD」、「FB-40RFD」等之 FB 系列、商品名「DAW-03DC」、「DAW-0525」、「DAW-1025」等之 DAW 系列、商品名「SGP」(以上，DENKA(股)製)、商品名「HF-05」(TOKUYAMA(股)製)、商品名「10 μm SE-CC5」(ADMATECHS(股)製)、商品名

「MSR-2212」、「MSR-25」(以上，龍森(股)製)、商品名「HS-105」、「HS-106」、「HS-107」(以上，MICRON公司製)等之市售品。

【0242】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的無機填充劑(J)之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物(100重量%)，較佳為10~90重量%，更佳為13~75重量%，尤佳為15~70重量%，尤佳為20~70重量%。由於將無機填充劑(J)之含量設為10重量%以上，即使藉由壓縮成型而形成硬化性環氧樹脂組成物時，也有所形成的硬化物之耐熱性及耐光性(尤其，優異耐熱性)更升高之傾向。又，硬化物(反射器)之線膨脹係數變低，於使用該反射器的光半導體元件搭載用基板中，有引線框架的翹曲等不良狀況變得難以發生之傾向。另一方面，藉由將無機填充劑(J)之含量設為90重量%以下，硬化物(反射器)之成型性升高，有更適合量產之傾向。

【0243】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中的無機填充劑(J)之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量100重量份，較佳為10~1500重量份，更佳為50~1200重量份，尤佳為100~1000重量份。由於無機填充劑(J)之含量為10重量份以上，於藉由壓縮成型而形成硬化性環氧樹脂組成物時，有硬化物的耐熱性及耐光性(尤其，優異的耐熱性)更升高之傾向。又，硬化物(反射器)之線膨脹係數變低，於使用該反射器的光半導體元

件搭載用基板中，有引線框架的翹曲等不良狀況變得難以發生之傾向。另一方面，由於無機填充劑(J)之含量為1500重量份以下，硬化物(反射器)之成型性升高，有更適合量產之傾向。

【0244】本發明之硬化性環氧樹脂組成物中之白色顏料(C)及無機填充劑(J)的最大粒徑係沒有特別的限定，但較佳為 $200\mu\text{m}$ 以下，更佳為 $185\mu\text{m}$ 以下，尤佳為 $175\mu\text{m}$ 以下，特佳為 $150\mu\text{m}$ 以下。若上述最大粒徑為 $200\mu\text{m}$ 以下，則相較於使用最大粒徑超過 $200\mu\text{m}$ 的白色顏料或無機填充劑之情況，有硬化性環氧樹脂組成物經由壓縮成型所形成的硬化物之耐熱性、耐光性及抗龜裂性(尤其，優異的耐熱性)更優異之傾向。又，藉由使用最大粒徑小的白色顏料(C)及無機填充劑(J)，可增加此等之含量，有硬化物的光反射性、耐熱性及耐光性更進一步升高之傾向。上述最大粒徑之下限例如為 $0.01\mu\text{m}$ 以上。再者，上述最大粒徑係本發明之硬化性環氧樹脂組成物中所包含的白色顏料(C)及無機填充劑(J)之總共的最大粒徑。上述最大粒徑係意指以雷射繞射·散射法所測定的粒度分布中之最大粒徑。

【0245】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中包含氧化鈦時，氧化鈦相對於白色顏料(C)與無機填充劑(J)的總量(100重量%)之比例係沒有特別的限定，但於硬化物(反射器)的耐熱性(耐黃變性)與光反射性的平衡之觀點上，較佳為5~70重量%，更佳為5~60重量%。藉由將氧化鈦之比例設為5重量%以上，有硬化物(反射器)的光

反射性更升高之傾向。又，有耐熱性(尤其，耐黃變性)及耐光性(尤其，耐紫外線性)更升高之傾向。另一方面，藉由將氧化鈦之比例設為 70 重量%以下，硬化物(反射器)之成型性升高，有更適合量產之傾向。

【0246】

[脫模劑]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可進一步包含脫模劑。藉由包含脫模劑，使用轉移成型等之模具的成型法之連續成型係變得容易，可以高生產性製造硬化物(反射器)。作為脫模劑，可使用眾所周知或慣用的脫模劑，並沒有特別的限定，例如可舉出氟系脫模劑(含有氟原子的化合物；例如，氟油、聚四氟乙烯等)、聚矽氧系脫模劑(聚矽氧化合物；例如，聚矽氧油、聚矽氧蠟、聚矽氧樹脂、具有聚氧化烯單元的聚有機矽氧烷等)、蠟系脫模劑(蠟類；例如巴西棕櫚蠟等之植物蠟、羊毛蠟等之動物蠟、石蠟等之石蠟類、聚乙烯蠟、氧化聚乙烯蠟等)、高級脂肪酸或其鹽(例如，金屬鹽等)、高級脂肪酸酯、高級脂肪酸醯胺、礦油等。

【0247】再者，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，脫模劑亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。又，脫模劑亦可藉由眾所周知或慣用的方法而製造，也可使用市售品。

【0248】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有脫模劑時，脫模劑之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的

化合物之全量 100 重量份，較佳為 1~12 重量份，更佳為 2~10 重量份。藉由將脫模劑之含量設為 1 重量份以上，硬化物(反射器)之脫模性更升高，有反射器的生產性更升高之傾向。另一方面，藉由將脫模劑之含量設為 12 重量份以下，有能確保光半導體元件搭載用基板中的反射器對於引線框架之良好密著性的傾向。

【0249】

[抗氧化劑]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含抗氧化劑。藉由包含抗氧化劑，可製造耐熱性(尤其，耐黃變性)更優異的硬化物(反射器)。作為抗氧化劑，可使用眾所周知或慣用的抗氧化劑，並沒有特別的限定，例如可舉出酚系抗氧化劑(酚系化合物)、受阻胺系抗氧化劑(受阻胺系化合物)、磷系抗氧化劑(磷系化合物)、硫系抗氧化劑(硫系化合物)等。

【0250】作為酚系抗氧化劑，例如可舉出 2,6-二三級丁基對甲酚、丁基化羥基茴香醚、2,6-二三級丁基對乙基苯酚、十八基- β -(3,5-二三級丁基-4-羥基苯基)丙酸酯等之單酚類；2,2'-亞甲基雙(4-甲基-6-三級丁基苯酚)、2,2'-亞甲基雙(4-乙基-6-三級丁基苯酚)、4,4'-硫代雙(3-甲基-6-三級丁基苯酚)、4,4'-亞丁基雙(3-甲基-6-三級丁基苯酚)、3,9-雙[1,1-二甲基-2- $\{\beta$ -(3-三級丁基-4-羥基-5-甲基苯基)丙醯氧基}乙基]2,4,8,10-四氧雜螺[5.5]十一烷等之雙酚類；1,1,3-三(2-甲基-4-羥基-5-三級丁基苯基)丁烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-三(3,5-二三級丁基-4-羥

基苄基)苯、四-[亞甲基-3-(3',5'-二三級丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯]甲烷、雙[3,3'-雙-(4'-羥基-3'-三級丁基苯基)丁酸]二醇酯、1,3,5-三(3',5'-二三級丁基-4'-羥基苄基)-s-三吡-2,4,6-(1H,3H,5H)三酮、生育酚等之高分子型酚類等。

【0251】作為受阻胺系抗氧化劑，例如可舉出雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)[[3,5-雙(1,1-二甲基乙基)-4-羥基苯基]甲基]丁基丙二酸酯、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、甲基-1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基癸二酸酯、4-苯甲醯氧基-2,2,6,6-四甲基哌啶等。

【0252】作為磷系抗氧化劑，例如可舉出亞磷酸三苯酯、亞磷酸二苯基異癸酯、亞磷酸苯基二異癸酯、亞磷酸三(壬基苯基)酯、二異癸基新戊四醇亞磷酸酯、三(2,4-二三級丁基苯基)亞磷酸酯、環狀新戊烷四基雙(十八基)亞磷酸酯、環狀新戊烷四基雙(2,4-二三級丁基苯基)亞磷酸酯、環狀新戊烷四基雙(2,4-二三級丁基-4-甲基苯基)亞磷酸酯、雙[2-三級丁基-6-甲基-4-{2-(十八烷氧基羰基)乙基}苯基]亞磷酸氫酯等之亞磷酸酯類；9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲-10-氧化物、10-(3,5-二三級丁基-4-羥基苄基)-9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲-10-氧化物等之氧雜磷雜菲氧化物類等。

【0253】作為硫系抗氧化劑，例如可舉出十二烷硫醇、二月桂基-3,3'-硫代二丙酸酯、二肉豆蔻基-3,3'-硫代二丙酸酯、二硬脂基-3,3'-硫代二丙酸酯等。

【0254】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物中，抗氧化劑亦可單獨使用一種，也可組合二種以上使用。又，抗氧化劑亦可藉由眾所周知或慣用的方法而製造，例如也可使用商品名「Irganox1010」(BASF公司製，酚系抗氧化劑)、商品名「AO-60」、「AO-80」((股)ADEKA製，酚系抗氧化劑)、商品名「Irgafos168」(BASF公司製，磷系抗氧化劑)、商品名「ADK STAB HP-10」、「ADK STAB PEP-36」((股)ADEKA製，磷系抗氧化劑)、商品名「HCA」(三光(股)製，磷系抗氧化劑)等之市售品。

【0255】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有抗氧化劑，抗氧化劑之含量(摻含量)係沒有特別的限定，但相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量 100 重量份，較佳為 0.1~5 重量份，更佳為 0.5~3 重量份。藉由將抗氧化劑之含量設為 0.1 重量份以上，有效率地防止硬化物(反射器)之氧化，有耐熱性、耐黃變性更升高之傾向。另一方面，藉由將抗氧化劑之含量設為 5 重量份以下，抑制著色，有容易得到色相更良好的反射器之傾向。

【0256】

[添加劑]

本發明之硬化性環氧樹脂組成物係除了上述成分以外，在不損害本發明的效果之範圍內，還可含有各種添加劑。作為上述添加劑，例如若含有乙二醇、二乙二醇、丙二醇、丙三醇等之具有羥基的化合物(尤其脂肪族多元醇；但上述多元醇化合物除外)，則可平緩地進行反應。

此外，於不損害黏度或光反射性之範圍內，可使用消泡劑、 γ -環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷或 3-巰基丙基三甲氧基矽烷等之矽烷偶合劑、螢光增白劑、界面活性劑、難燃劑、著色劑、離子吸附體、紫外線吸收劑、光安定劑、白色顏料(C)以外之顏料等慣用的添加劑。此等添加劑之含量係沒有特別的限定，可適宜選擇。

【0257】作為上述螢光增白劑，可使用眾所周知或慣用的螢光增白劑。於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含螢光增白劑時，有藉由壓縮成型所形成的硬化物之光反射性、耐熱性、耐光性及抗龜裂性更優異的傾向。作為上述螢光增白劑，例如可舉出吡啶啉衍生物、二苯乙烯衍生物、三吡啶衍生物、噻啶衍生物、苯并噻啶衍生物、吡啶酮衍生物、三吡啶衍生物、噻啶衍生物、噻吩衍生物、香豆素衍生物、蔡二甲醯亞胺衍生物等。

【0258】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)及硬化促進劑(F)時，包含脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、硬化劑(D)及硬化促進劑(F)之混合物在 25℃ 的黏度係沒有特別的限定，但較佳為 5000mPa·s 以下。再者，本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含上述之矽氧烷衍生物(G)、脂環式聚酯樹脂(H)、聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子、選自包含聚矽氧系調平劑及氟系調平劑之群組的至少 1 種調平劑、多元醇化合物、丙烯酸嵌段共聚物、應力緩和劑(I)及/或乙二

醇等上述之脂肪族多元醇(以下，稱為「其它的任意成分」)，此時，上述之混合物係包含脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、硬化劑(D)、硬化促進劑(F)及其它的任意成分之混合物。

【0259】另一方面，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物含有脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)及硬化觸媒(E)時，包含脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)及硬化觸媒(E)之混合物在 25℃ 的黏度係沒有特別的限定，但較佳為 5000mPa·s 以下。本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可包含其它的任意成分，此時，上述之混合物係包含脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、硬化觸媒(E)及其它的任意成分之混合物。再者，於本說明書中，亦將上述的二種混合物在 25℃ 之黏度總稱為「樹脂黏度」。

【0260】上述樹脂黏度係在常壓下 25℃ 測定的黏度。上述樹脂黏度較佳為 5000mPa·s 以下，更佳為 4000mPa·s 以下，尤佳為 3500mPa·s 以下，特佳為 3000mPa·s 以下。若上述樹脂黏度為 5000mPa·s 以下，則相較於樹脂黏度超過 5000mPa·s 之情況，有藉由將硬化性環氧樹脂組成物壓縮成型而形成的硬化物之耐熱性、耐光性及抗龜裂性(尤其，優異的耐熱性)更優異的傾向。又，由於上述樹脂黏度比較低，可增加白色顏料(C)或無機填充劑(J)等其它成分之含量，有硬化物的光反射性、耐熱性及耐光性更進一步升高之傾向。上述樹脂

黏度之下限例如為 $100\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上。再者，上述樹脂黏度例如可使用數位黏度計(型號「DVU-EII 型」，TOKIMEC(股)製)，於轉子：標準 $1^{\circ}34'\times\text{R}24$ 、溫度： 25°C 、旋轉數： $0.5\sim 10\text{rpm}$ 之條件下測定。

【0261】上述樹脂黏度例如可藉由使用在 25°C 為液體的成分作為所用的成分(例如，脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、硬化劑(D)、硬化促進劑(F)、硬化觸媒(E)、矽氧烷衍生物(G)及脂環式聚酯樹脂(H)、液狀的應力緩和劑(I)等)，而容易獲得。再者，作為上述成分，亦可使用在 25°C 為固體的成分，但其含量較佳為調整成使上述樹脂黏度成為 $5000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以下。又，亦可在不損害本發明的效果之範圍內，藉由調整橡膠粒子、固體的應力緩和劑(I)之含量而容易獲得。

【0262】再者，本發明之硬化性環氧樹脂組成物亦可為藉由加熱使該硬化性環氧樹脂組成物中的脂環式環氧化合物(A)及硬化劑(D)之一部分反應而得之經 B 階段化的硬化性環氧樹脂組成物(B階段狀態的硬化性環氧樹脂組成物)。

【0263】如上述，本發明之硬化性環氧樹脂組成物由於硬化後的光反射性、耐熱性及耐光性優異，尤其可較佳地作為轉移成型用樹脂組成物或壓縮成型用樹脂組成物使用。其中，本發明之硬化性環氧樹脂組成物由於藉由壓縮成型所形成的硬化物(反射器)之光反射性、耐熱性及耐光性特別優異，故特佳為壓縮成型用之樹脂組成物。

【 0264 】

< 硬化性環氧樹脂組成物之調製方法 >

作為本發明之硬化性環氧樹脂組成物之製造方法，並沒有特別的限定，可採用眾所周知或慣用的方法。具體的而言，例如可舉出摻合特定量的脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)、硬化促進劑(F)及任意的添加劑，或摻合特定量的脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化觸媒(E)及任意的添加劑，使用溶解器、均質器等之各種混合器、捏合機、輥、珠磨機、自轉公轉式攪拌裝置等，進行攪拌、混合之方法等。又，於攪拌、混合後，亦可在減壓下或真空下脫泡。

【 0265 】更具體而言，本發明之硬化性環氧樹脂組成物，例如可藉由分別調製：包含脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、在分子內具有2個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)等之具有環氧基的化合物當作必要成分之 α 劑，與包含硬化劑(D)及硬化促進劑(F)、或硬化觸媒(E)當作必要成分之 β 劑；以特定的比例攪拌、混合該 α 劑與 β 劑，視需要在真空下脫泡之方法而調製。再者，脂環式聚酯樹脂(H)係可預先作為 α 劑及/或 β 劑之構成成分混合(摻合)，也可在混合 α 劑與 β 劑之際，作為 α 劑、 β 劑以外的第三成分摻合。又，白色顏料(C)亦同樣，可預先作為 α 劑及/或 β 劑之構成成分混合(摻合)，也在混合 α 劑與 β 劑之際，作為 α 劑、 β 劑以外的第三成分摻合。

【0266】調製上述 α 劑之際的攪拌・混合時之溫度係沒有特別的限定，但較佳為 30~150℃，更佳為 35~130℃。又，調製上述 β 劑(由 2 個以上的成分所構成時)之際的攪拌・混合時之溫度係沒有特別的限定，但較佳為 30~100℃，更佳為 35~80℃。於攪拌・混合中，可使用眾所周知的裝置，例如溶解器、均質器等之各種混合器、捏合機、輥、珠磨機、自轉公轉式攪拌裝置等。又，於攪拌・混合後，亦可在減壓下或真空下脫泡。

【0267】特別地，於本發明之硬化性環氧樹脂組成物包含硬化劑(D)當作必要成分時，在得到均勻的組成物之觀點上，較佳為於預先混合脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)，得到此等之混合物(脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)之混合物)後，在該混合物中摻合硬化促進劑(F)或其他的添加劑而調製 β 劑，接著藉由混合該 β 劑與 α 劑而調製。混合脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)之際的溫度係沒有特別的限定，但較佳為 60~130℃，更佳為 90~120℃。混合時間係沒有特別的限定，但較佳為 30~100 分鐘，更佳為 45~80 分鐘。混合係沒有特別的限定，但較佳為在氮氣環境下進行。又，於混合中，可使用上述眾所周知之裝置。

【0268】混合脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)後，雖然沒有特別的限定，但亦可進一步施予適宜的化學處理(例如，氫化或脂環式聚酯之末端改質等)等。再者，於上述脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)之混合物中，硬化劑(D)的一部分亦可與脂環式聚酯樹脂(H)(例如，脂環式聚酯樹脂(H)的羥基等)反應。

【0269】作為上述之脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)之混合物，例如亦可使用「HN-7200」(日立化成工業(股)製)、「HN-5700」(日立化成工業(股)製)等之市售品。

【0270】雖然沒有特別的限定，但是橡膠粒子較佳為以預先分散在脂環式環氧化合物(A)中的組成物(亦將該組成物稱為「橡膠粒子分散環氧化合物」)之狀態摻合。即，本發明之硬化性環氧樹脂組成物較佳為藉由混合上述橡膠粒子分散環氧化合物、白色顏料(C)、硬化劑(D)及硬化促進劑(F)、或硬化觸媒(E)、與視需要的其它成分而調製。藉由如此的調製方法，特別地可提高硬化性環氧樹脂組成物中的橡膠粒子之分散性。惟，橡膠粒子之摻合方法係不限定於上述方法，亦可以其單獨摻合之方法。

【0271】

(橡膠粒子分散環氧化合物)

上述橡膠粒子分散環氧化合物係藉由使橡膠粒子分散於脂環式環氧化合物(A)中而獲得。再者，上述橡膠粒子分散環氧化合物中的脂環式環氧化合物(A)係可為構成硬化性環氧樹脂組成物的脂環式環氧化合物(A)之全量，也可為一部分之量。同樣地，上述橡膠粒子分散環氧化合物中的橡膠粒子係可為構成硬化性環氧樹脂組成物的橡膠粒子之全量，也可為一部分之量。

【0272】上述橡膠粒子分散環氧化合物之黏度，例如可藉由併用反應性稀釋劑而調整(即，橡膠粒子分散環氧化合物亦可進一步包含反應性稀釋劑)。作為上述反應

性稀釋劑，例如可較宜使用常溫(25℃)的黏度為200mPa·s以下之脂肪族聚環氧丙基醚。作為黏度(25℃)為200mPa·s以下的脂肪族聚環氧丙基醚，例如可舉出環己烷二甲醇二環氧丙基醚、環己烷二醇二環氧丙基醚、新戊二醇二環氧丙基醚、1,6-己二醇二環氧丙基醚、三羥甲基丙烷三環氧丙基醚、聚丙二醇二環氧丙基醚等。

【0273】上述反應性稀釋劑之使用量係可適宜調整，並沒有特別的限定，但相對於上述橡膠粒子分散環氧化合物全量100重量份，較佳為30重量份以下，更佳為25重量份以下(例如，5~25重量份)。若使用量為30重量份以下，則有容易得到強韌性(抗龜裂性升高)等之所欲性能的傾向。

【0274】上述橡膠粒子分散環氧化合物之製造方法係沒有特別的限定，可使用周知慣用的方法。例如，可舉出於將橡膠粒子脫水乾燥成為粉體後，混合於脂環式環氧化合物(A)中，使其分散之方法，或直接混合橡膠粒子的乳液與脂環式環氧化合物(A)，接著脫水之方法等。

【0275】本發明之硬化性環氧樹脂組成物在25℃的黏度係沒有特別的限定，但較佳為100~1000000mPa·s，更佳為200~800000mPa·s，尤佳為300~800000mPa·s。藉由將在25℃的黏度設為100mPa·s以上，有注模時的作業性升高，或硬化物的耐熱性及耐光性更升高之傾向。另一方面，藉由將在25℃的黏度設為1000000mPa·s以下，有注模時的作業性升高，或在硬化物難以發生源自注模不良的不良狀況之傾向。

【0276】**< 硬化物 >**

藉由將本發明之硬化性環氧樹脂組成物加熱而使其硬化，可得到光反射性優異、耐熱性、耐光性及抗龜裂性優異之硬化物。再者，將使本發明之硬化性環氧樹脂組成物硬化而成的硬化物，即本發明之硬化性環氧樹脂組成物的硬化物亦稱為「本發明之硬化物」。硬化時的加熱溫度(硬化溫度)係沒有特別的限定，但較佳為 50~200℃，更佳為 80~180℃。又，硬化時的加熱時間(硬化時間)係沒有特別的限定，但較佳為 60~1800 秒，更佳為 90~900 秒。硬化溫度與硬化時間低於上述範圍之下限值時，硬化變不充分，相反地高於上述範圍之上限值時，因熱分解而發生黃變，故不宜。硬化條件係依賴於各種的條件，但例如可藉由提高硬化溫度而縮短硬化時間，降低硬化溫度而加長硬化時間等，進行適宜調整。又，硬化處理係可以一階段(例如，僅壓縮成型)進行，也可以例如作為多階段(例如，壓縮成型後，作為後硬化(二次硬化)，在烘箱等中更加熱等)進行。又，進行後硬化時，此時的加熱溫度較佳為 50~200℃，更佳為 60~180℃，尤佳為與硬化溫度相同程度之溫度。另外，進行後硬化的時間較佳為 0.5~10 小時，更佳為 1~8 小時。

【0277】本發明之硬化物係具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異。因此，上述硬化物不易劣化，反射率不易隨著時間經過而降低。因此，本發明之硬化性環氧樹脂組成物可較宜使用作為 LED 封裝用途(LED 封裝

之構成材料，例如光半導體裝置中的反射器材料、外殼材料等)、電子零件之接著用途、液晶顯示器用途(例如，反射板等)、白色基板用印墨、密封劑等。其中，可特宜使用作為 LED 封裝用的硬化性樹脂組成物(尤其，光半導體裝置中的反射器用之硬化性樹脂組成物(即，反射器形成用的硬化性樹脂組成物))。

【0278】本發明之硬化物的反射率係沒有特別的限定，例如波長 450nm 的光之反射率較佳為 90%以上，更佳為 90.5%以上。特別地，450~800nm 的光之反射率較佳為 90%以上，更佳為 90.5%以上。再者，上述反射率例如係可將本發明之硬化物(厚度：3mm)當作試驗片，使用分光光度計(商品名「分光光度計 UV-2450」，島津製作所(股)製)測定。

【0279】本發明之硬化物在 120℃ 加熱 250 小時後之波長 450nm 的光之反射率(亦稱為(亦稱為「250 小時加熱老化後之反射率」)相對於初期反射率之保持率([250 小時加熱老化後之反射率]/[初期反射率]×100)係沒有特別的限定，但較佳為 85%以上，更佳為 90%以上，尤佳為 95%以上，特佳為 98%以上。特別地，450~800nm 的光之情況的保持率較佳為 85%以上，更佳為 90%以上，尤佳為 95%以上，特佳為 98%以上。依照本發明之硬化性環氧樹脂組成物，藉由壓縮成型所形成的硬化物係可使上述保持率成為 98%以上。

【0280】本發明之硬化物在 120℃ 加熱 500 小時後之波長 450nm 的光之反射率(亦稱為「500 小時加熱老化

後之反射率」)相對於初期反射率之保持率($[500 \text{ 小時加熱老化後之反射率}]/[\text{初期反射率}] \times 100$)係沒有特別的限定，但較佳為 85%以上，更佳為 90%以上，尤佳為 95%以上，特佳為 98%以上。特別地，450~800nm 的光之情況的保持率較佳為 85%以上，更佳為 90%以上，尤佳為 95%以上，特佳為 98%以上。依照本發明之硬化性環氧樹脂組成物，藉由壓縮成型所形成的硬化物係可使上述保持率成為 90%以上。

【0281】本發明之硬化物在照射強度 10 mW/cm^2 的紫外線 250 小時後之對於波長 450nm 的光之反射率(亦稱為「紫外線老化後之反射率」)相對於初期反射率的保持率($[\text{紫外線老化後之反射率}]/[\text{初期反射率}] \times 100$)係沒有特別的限定，但較佳為 90%以上，更佳為 95%以上，尤佳為 98%以上。特別地，450~800nm 的光之情況的保持率較佳為 90%以上，更佳為 95%以上，尤佳為 98%以上。

【0282】還有，上述反射率例如可將本發明之硬化物(厚度：3mm)當作試驗片，使用分光光度計(商品名「分光光度計 UV-2450」，島津製作所(股)製)測定。

【0283】本發明之硬化物係具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌。因此，上述硬化物不易劣化，反射率不易隨著時間經過而降低。因此，本發明之硬化性環氧樹脂組成物可較宜使用作為 LED 封裝用途(LED 封裝之構成材料，例如光半導體裝置中的反射器材料、外殼材料等)、電子零件之接著用途、液晶顯示器用途(例如，反射板等)、白色基板用印墨、密封劑等。其

中，可特宜使用作為 LED 封裝用的硬化性樹脂組成物(尤其，光半導體裝置中的反射器用(反射材料)之硬化性樹脂組成物)。

【0284】

< 光反射用硬化性樹脂組成物 >

本發明之光反射用硬化性樹脂組成物包含本發明之硬化性環氧樹脂組成物。再者，本說明書中所謂的「光反射用硬化性樹脂組成物」，就是意指藉由使其硬化，能形成具有高的光反射性之硬化物的硬化性樹脂組成物，具體而言，例如意指能形成對於波長 450nm 的光之反射率為 90%以上的硬化物之硬化性樹脂組成物。藉由使用本發明之光反射用硬化性樹脂組成物，例如可得到具備由光反射性、耐熱性、耐光性及抗龜裂性等諸物性優異的硬化物所形成之反射器的光半導體裝置。上述反射器由於不易發生反射率隨著時間經過而降低，故具備該反射器的光半導體裝置，尤其在具備高輸出、高光度的光半導體元件時，光度不易隨著時間經過而降低，可發揮高的可靠性。特別地，本發明之硬化物係抗龜裂性，尤其對於冷熱循環的抗龜裂性優異，具有高的可靠性。

【0285】於本發明之硬化性環氧樹脂組成物為光半導體裝置中的反射器用之硬化性樹脂組成物時，本發明之硬化性環氧樹脂組成物為成型材料(使用於以模具等成型之材料)，該成型材料係用於形成光半導體裝置中的光半導體元件之基板(光半導體元件搭載用基板)所具有的反射器(光反射構件)之用途。因此，藉由將本發明之

硬化性環氧樹脂組成物予以成型(且使其硬化)，可製造具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且抗龜裂性優異之高品質的(例如，高耐久性的)光半導體元件搭載用基板。再者，所謂的反射器，就是於光半導體裝置中使來自光半導體元件所發出的光反射，提高光的指向性及亮度，提高光的取出效率用之構件。將至少具有由本發明之硬化物所形成的反射器之光半導體元件搭載用的基板亦稱為「本發明之光半導體元件搭載用基板」。

【0286】

<光半導體元件搭載用基板>

本發明之光半導體元件搭載用基板係至少具有由本發明之硬化物所形成的反射器(白色反射器)之基板。圖1係顯示本發明之光半導體元件搭載用基板的一例之概略圖，(a)表示斜視圖，(b)表示剖面圖。圖1中的100表示白色反射器，101表示金屬配線(引線框架)，102表示光半導體元件之搭載區域，103表示封裝基板。再者，於封裝基板103上，安裝有金屬配線101以及白色反射器100，於其中央(光半導體元件之搭載區域102)，放置光半導體元件107及進行晶粒接合，光半導體元件107與封裝基板103上的金屬配線101之間係以線接合來連接。作為封裝基板103之材質，使用樹脂、陶瓷等，但亦可為與白色反射器相同者。本發明之光半導體元件搭載用基板的上側之白色反射器100係環狀地包圍光半導體元件之搭載區域102的周圍，具有以其環的直徑朝向上方擴大之方式傾斜的凹狀形狀。本發明之光半導體元

件搭載用基板只要是上述凹狀形狀的內側表面為至少藉由本發明之硬化物所形成即可。又，如圖 1 所示，也有金屬配線 101 所包圍的部分(102 之下部)為封裝基板 103 之情況，亦有為白色反射器 100 之情況(即，意指圖 1 中的「100/103」可為白色反射器 100，也可為封裝基板 103)。惟，本發明之光半導體元件搭載用基板係不限定於圖 1 所示的態樣。

【0287】作為形成本發明之光半導體元件搭載用基板中的白色反射器之方法，可使用眾所周知或慣用之成型方法(例如，壓縮成型等)，並沒有特別的限定，例如可舉出將本發明之硬化性環氧樹脂組成物交付給轉移成型、壓縮成型、射出成型、LIM 成型(射出成型)、分配的擋板成型等之各種成型方法的方法等(較佳為壓縮成型)。作為形成反射器時的硬化條件，例如可從形成上述之硬化物時的條件等中適宜選擇。於本發明中，尤其在能防止急劇的硬化反應所致的發泡，緩和硬化所致的應力應變，提高韌性(抗龜裂性)之點上，較佳為分成多階段施予加熱處理，使其階段地硬化。

【0288】藉由使用本發明之光半導體元件搭載用基板作為光半導體裝置中的基板，對於該基板搭載光半導體元件，可得到本發明之光半導體裝置。

【0289】

<光半導體裝置>

本發明之光半導體裝置係至少具備作為光源的光半導體元件與由本發明之硬化物所成的反射器(反射材料)

之光半導體裝置。更具體而言，本發明之光半導體裝置係至少具有本發明之光半導體元件搭載用基板與搭載於該基板上的光半導體元件之光半導體裝置。本發明之光半導體裝置由於具有由本發明之硬化物所形成的反射器作為反射器，而光的亮度不易隨著時間經過而降低，可靠性高。圖 2 係顯示本發明之光半導體裝置的一例之概略圖(剖面圖)。圖 2 中的 100 表示白色反射器，101 表示金屬配線(引線框架)，103 表示封裝基板，104 表示接合線，105 表示密封材料，106 表示晶粒接合，107 表示光半導體元件(LED 元件)。於圖 2 所示的光半導體裝置中，從光半導體元件 107 所發出的光係在白色反射器 100 之表面(反射面)反射，故以高效率取出來自光半導體元件 107 的光。再者，如圖 2 所示，本發明之光半導體裝置中的光半導體元件通常係藉由透明的密封材料(圖 2 中的 105)所密封。

【0290】圖 3、4 係顯示本發明之光半導體裝置的另一例之圖。圖 3、4 中的 108 表示散熱片(殼散熱片)，藉由具有如此的散熱片 108，光半導體裝置中的散熱效率升高。圖 3 係散熱片的散熱路徑位於光半導體元件的正下方之例，圖 4 係散熱片的散熱路徑位於光半導體裝置的橫向之例[(a)表示上視圖，(b)表示(a)中的 A-A'剖面圖]。圖 4 中的突出光半導體裝置的側面之散熱片 108 亦稱為散熱鰭。又，圖 4 中的 109 表示陰極標記。惟，本發明之光半導體裝置係不限定於圖 2~4 中所示的態樣。

【0291】本發明之光半導體裝置由於至少具有由本發明之硬化物所成的反射器，故即使輸出高亮度的光時，也可長期間、安定地發光。再者，由本發明之硬化物所成的反射器，由於抗龜裂性(尤其，對於冷熱循環的抗龜裂性)優異，故不易發生光度隨著時間經過而降低等問題。因此，本發明之光半導體裝置係作為長壽命的光半導體裝置，可發揮高的可靠性。

實施例

【0292】以下，以實施例為基礎來更詳細說明本發明，惟本發明不受此等之實施例所限定。表 1~7 中的硬化性環氧樹脂組成物之各成分的摻合量之單位為重量份。再者，表 4~7 中的聚矽氧系調平劑(「BYK-300」、「ACFS 180」)、氟系調平劑(「BYK-340」、「AC 110a」)、應力緩和劑(「KMP-600」、「KMP-602」、「SF8421」、「Y-19268」)之摻合量表示商品之量(商品本身之量)。又，表 1~7 中的「-」表示不進行該成分之摻合。

【0293】

製造例 1

(含有白色顏料的環氧樹脂之製造：實施例 1~5)

依照表 1 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，混合異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯(商品名「MA-DGIC」，四國化成工業(股)製)、脂環式環氧化合物((3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷，DAICEL(股)製；商品名「Celloxide 2021P」，DAICEL(股)製)，在 80℃攪拌 1 小時，使異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯溶解，得到

環氧樹脂(混合物)。接著，依照表 1 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，使用溶解器，均勻地混合上述環氧樹脂與白色顏料(氧化鈦；商品名「DCF-T-17050」，RESINO COLOR 工業(股)製)，藉由輥磨機，在指定條件下(輥間距：0.2mm，旋轉數：25 赫茲，通過 3 次)下混煉，得到含有白色顏料的環氧樹脂(環氧樹脂組成物)。

【0294】

製造例 2

(含有白色顏料的環氧樹脂之製造：比較例 1~10)

依照表 1 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，混合異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯(商品名「MA-DGIC」，四國化成工業(股)製)、脂環式環氧化合物(商品名「Celloxide 2021P」，DAICEL(股)製；商品名「EHPE3150」，DAICEL(股)製)、異三聚氰酸參縮水甘油酯(商品名「TEPIC-PAS B26」，日產化學工業(股)製)，得到環氧樹脂(混合物)(於比較例 1、2、4~6、8 之情況中，由於環氧樹脂的成分為一種，故不進行該混合，直接這樣作成環氧樹脂)。接著，依照表 1 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，使用溶解器，均勻地混合上述環氧樹脂與白色顏料(氧化鈦；商品名「DCF-T-17050」，RESINO COLOR 工業(股)製)，藉由輥磨機，在指定條件下(輥間距：0.2mm，旋轉數：25 赫茲，通過 3 次)下混煉，得到含有白色顏料的環氧樹脂(環氧樹脂組成物)。

【0295】

製造例 3

(至少包含硬化劑的硬化劑組成物(以下，稱為「K劑」)之製造：實施例 1~4、比較例 1~4、9)

依照表 1 所示的摻合配方(摻合比例)，使用自轉公轉式攪拌裝置(THINKY(股)製，商品名「脫泡練太郎 AR-250」)，均勻地混合硬化劑(酸酐)(新日本理化(股)製，商品名「Rikacid MH-700」)、硬化促進劑(SUNAPRO(股)製，商品名「U-CAT 18X」)、添加劑(和光純藥工業(股)製，商品名「乙二醇」)，進行脫泡而得到 K 劑。

【0296】

實施例 1~5、比較例 1~10

(硬化性環氧樹脂組成物之製造)

以成爲表 1 所示的摻合配方(單位：重量份)之方式，使用自轉公轉式攪拌裝置(THINKY(股)製，商品名「脫泡練太郎 AR-250」)，均勻地混合(2000rpm、5 分鐘)製造例 1 所得之含有白色顏料的環氧樹脂、製造例 2 所得之含有白色顏料的環氧樹脂、製造例 3 所得之 K 劑、硬化觸媒(三新化學工業(股)製，商品名「Sunaid SI-100L」)，進行脫泡而得到硬化性環氧樹脂組成物。

【0297】

(硬化物之製造)

以由聚酯所成的脫模薄膜夾入上述硬化性環氧樹脂組成物，放置於 150℃ 的壓縮成型用之模具內，於 3.0MPa 之壓力下加熱及加壓 600 秒而使其硬化，然後藉由進行後硬化(150℃、5 小時)，得到硬化物。

【 0298 】

製造例 4

(含有白色顏料的環氧樹脂之製造：實施例 6~14、比較例 11~21)

依照表 2、3 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，混合異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯(商品名「MA-DGIC」，四國化成工業(股)製)、脂環式環氧化合物((3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷，DAICEL(股)製；商品名「Celloxide 2021P」，DAICEL(股)製；商品名「EHPE3150」，DAICEL(股)製)、異三聚氰酸參縮水甘油酯(商品名「TEPIC-PAS B26」，日產化學工業(股)製)、在分子內具有 2 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2678」，信越化學工業(股)製)、在分子內具有 3 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2720」，信越化學工業(股)製)、在分子內具有 4 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2670」，信越化學工業(股)製)，更在 80℃ 攪拌 1 小時而使異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯溶解，得到環氧樹脂(混合物)(於比較例 11~15 之情況中，由於環氧樹脂的成分為一種，故不進行該混合，直接這樣作成環氧樹脂)。接著，依照表 2、3 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，使用溶解器，均勻地混合上述環氧樹脂與白色顏料(氧化鈦；商品名「DCF-T-17050」，RESINO COLOR 工業(股)製)，藉由輥磨機，在指定條件下(輥間距：0.2mm，旋轉數：25 赫茲，通過 3 次)下混煉，得到含有白色顏料的環氧樹脂(環氧樹脂組成物)。

【 0299】

製造例 5

(至少包含硬化劑的硬化劑組成物(K 劑)之製造：實施例 6~14、比較例 11~21)

依照表 2、3 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，使用自轉公轉式攪拌裝置(商品名「脫泡練太郎 AR-250」，THINKY(股)製)，均勻地混合硬化劑(酸酐)(商品名「Rikacid MH-700」，日立化成工業(股)製)、硬化劑(酸酐)與脂環式聚酯樹脂之混合物(商品名「HN-7200」，日立化成工業(股)製)、硬化劑(酸酐)與脂環式聚酯樹脂之混合物(商品名「HN-5700」，日立化成工業(股)製)、硬化促進劑(商品名「U-CAT 18X」，SUNAPRO(股)製)、添加劑(商品名「乙二醇」，和光純藥工業(股)製)，進行脫泡而得到 K 劑。

【 0300】

實施例 6~14、比較例 11~21

(硬化性環氧樹脂組成物之製造)

以成爲表 2、3 所示的摻合配方(單位：重量份)之方式，使用自轉公轉式攪拌裝置(商品名「脫泡練太郎 AR-250」，THINKY(股)製)，均勻地混合(2000rpm、5 分鐘)製造例 4 所得之含有白色顏料的環氧樹脂、製造例 5 所得之 K 劑，進行脫泡而得到硬化性環氧樹脂組成物。

【 0301】

(硬化物之製造)

以由聚酯所成的脫模薄膜夾入上述硬化性環氧樹脂組成物，放置於 150℃ 的壓縮成型用之模具內，於 3.0MPa 之壓力下加熱及加壓 600 秒而使其硬化，然後藉由進行後硬化(150℃、5 小時)，得到硬化物。

【0302】

製造例 6

(橡膠粒子之製造)

於附回流冷卻器的 1L 聚合容器中，加入 500g 的離子交換水及 0.68g 的二辛基磺基琥珀酸鈉，一邊於氮氣流下攪拌，一邊升溫至 80℃。於其中，一併添加相當於用於形成橡膠粒子的芯部分所需要量的約 5 重量%部分之由 9.5g 的丙烯酸丁酯、2.57g 的苯乙烯及 0.39g 的二乙烯基苯所成之單體混合物，攪拌 20 分鐘而使其乳化後，添加 9.5mg 的過氧二硫酸鉀，攪拌 1 小時而進行最初的種子聚合。接著，添加 180.5mg 的過氧二硫酸鉀，攪拌 5 分鐘。於其中費 2 小時連續地添加用於形成芯部分所需要量的剩餘者(約 95 重量%部分)之由在 180.5g 的丙烯酸丁酯、48.89g 的苯乙烯及 7.33g 的二乙烯基苯中溶解 0.95g 的二辛基磺基琥珀酸鈉而成之單體混合物，進行第 2 次的種子聚合，然後熟成 1 小時而得到芯部分。

接著，添加 60mg 的過氧二硫酸鉀，攪拌 5 分鐘，於其中費 30 分鐘連續地添加由在 60g 的甲基丙烯酸甲酯、1.5g 的丙烯酸及 0.3g 的甲基丙烯酸烯丙酯中溶解 0.3g 的二辛基磺基琥珀酸鈉而成之單體混合物，進行種子聚合。然後熟成 1 小時，形成被覆芯部分的殼層。

接著，冷卻到室溫(25°C)為止，藉由以孔徑 120 μm 之塑膠製網進行過濾，得到包含具有芯殼構造的橡膠粒子之乳膠。以負 30°C 冷凍所得之乳膠，以吸濾器進行脫水洗淨後，在 60°C 送風乾燥一晝夜而得到橡膠粒子。所得之橡膠粒子之平均粒徑為 254nm，最大粒徑為 486nm。

【0303】再者，橡膠粒子之平均粒徑、最大粒徑係使用以動態光散射法為測定原理之「Nanotracs™」形式的 Nanotracs 粒度分布測定裝置(商品名「UPA-EX150」，日機裝(股)製)來測定下述試料，對於所得之粒度分布曲線，將累積曲線成為 50% 的時間點之粒徑的累積平均直徑當作平均粒徑，將粒度分布測定結果的頻度(%)超過 0.00% 的時間點之最大粒徑當作最大粒徑。再者，作為上述試料，使用在 20 重量份的四氫呋喃中分散有 1 重量份的製造例 7 所得之橡膠粒子分散環氧化合物者。

【0304】

製造例 7

(橡膠粒子分散環氧化合物之製造)

於氮氣流下，將 10 重量份的製造例 6 所得之橡膠粒子，在經加溫到 60°C 的狀態下，使用溶解器(1000rpm、60 分鐘)分散於 48 重量份的(3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷(DAICEL(股)製)中，進行真空脫泡，得到橡膠粒子分散環氧化合物(在 25°C 的黏度：3023mPa·s)。

再者，製造例 7 所得之橡膠粒子分散環氧化合物(使 10 重量份的橡膠粒子分散於 48 重量份的(3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷中者)的黏度(在 25°C 的黏度)，係使用數

位黏度計(商品名「DVU-EII 型」，TOKIMEC(股)製)測定。

【0305】

製造例 8

(含有白色顏料的環氧樹脂之製造：實施例 15~46)

依照表 4、5 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，混合異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯(商品名「MA-DGIC」，四國化成工業(股)製)、脂環式環氧化合物((3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷，DAICEL(股)製)、在分子內具有 2 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2678」，信越化學工業(股)製)、在分子內具有 3 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2720」，信越化學工業(股)製)、在分子內具有 4 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2670」，信越化學工業(股)製)、聚矽氧系調平劑(商品名「BYK-300」，BYK 化學·日本(股)製；商品名「AC FS 180」，Algin Chemie 製)、氟系調平劑(商品名「BYK-340」，BYK 化學·日本(股)製；商品名「AC 110a」，Algin Chemie 製)、聚碳酸酯二醇(商品名「Placel CD220PL」，DAICEL(股)製)、聚四亞甲基醚二醇(商品名「PTMG2000」，三菱化學(股)製)、聚己內酯多元醇(商品名「Placel 308」，DAICEL(股)製)、苯氧樹脂(商品名「YP-70」，新日鐵化學(股)製)、含有經基的長鏈環氧樹脂(商品名「Epotohto YD-6020」，新日鐵化學(股)製)、丙烯酸嵌段共聚物(商品名「Nanostrength M52N」，ARKEMA 製)、製造例 7 所得

之橡膠粒子分散環氧化合物、應力緩和劑(商品名「KMP-600」,聚矽氧橡膠粒子,信越化學工業(股)製;商品名「KMP-602」,聚矽氧橡膠粒子,信越化學工業(股)製;商品名「SF8421」,式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物,東麗·道康寧(股)製;商品名「Y-19268」,式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物, Momentive Performance Materials·日本(同)製),在80℃攪拌1小時而使異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯溶解,得到環氧樹脂(混合物)。接著,依照表4、5所示的摻合配方(摻合比例)(單位:重量份),使用溶解器,均勻地混合上述環氧樹脂、白色顏料(氧化鈦;商品名「DCF-T-17050」,RESINO COLOR工業(股)製)與無機填充劑(商品名「FB-970FD」,矽石(無表面處理),平均粒徑16.7 μm ,最大粒徑70 μm),DENKA(股)製),藉由輥磨機,在指定條件下(輥間距:0.2mm,旋轉數:25赫茲,通過3次)下混煉,得到含有白色顏料的環氧樹脂(環氧樹脂組成物)。

【0306】

製造例9

(K劑之製造:實施例15~46)

依照表4、5所示的摻合配方(摻合比例)(單位:重量份),使用自轉公轉式攪拌裝置(商品名「脫泡練太郎AR-250」,THINKY(股)製),均合地混合硬化劑(酸酐)(新日本理化(股)製,商品名「Rikacid MH-700」)、硬化劑(酸酐)與脂環式聚酯樹脂之混合物(商品名「HN-7200」,日

立化成工業(股)製)、硬化促進劑(商品名「U-CAT 18X」, SUNAPRO(股)製)、添加劑(商品名「乙二醇」, 和光純藥工業(股)製), 進行脫泡而得到 K 劑。

【0307】

實施例 15~46

(硬化性環氧樹脂組成物之製造)

以成爲表 4、5 所示的摻合配方(單位：重量份)之方式, 使用自轉公轉式攪拌裝置, 均勻地混合(2000rpm、5 分鐘)製造例 8 所得之含有白色顏料的環氧樹脂、製造例 9 所得之 K 劑, 進行脫泡而得到硬化性環氧樹脂組成物。

【0308】

(硬化物之製造)

以由聚酯所成的脫模薄膜夾入上述硬化性環氧樹脂組成物, 放置於 150℃ 的壓縮成型用之模具內, 於 3.0MPa 之壓力下加熱及加壓 600 秒而使其硬化, 然後藉由進行後硬化(150℃、5 小時), 得到硬化物。

【0309】

製造例 10

(含有白色顏料的環氧樹脂之製造：實施例 47~74、比較例 22~25)

依照表 6、7 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份), 混合異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯(商品名「MA-DGIC」, 四國化成工業(股)製)、脂環式環氧化合物((3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷, DAICEL(股)製; 商品名「EHPE3150」, DAICEL(股)製)、異三聚氰酸參縮水

甘油酯(商品名「TEPIC-PAS B26」,日產化學工業(股)製)、在分子內具有 2 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2678」,信越化學工業(股)製)、在分子內具有 3 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2720」,信越化學工業(股)製)、在分子內具有 4 個環氧基的矽氧烷衍生物(商品名「X-40-2670」,信越化學工業(股)製)、聚矽氧系調平劑(商品名「BYK-300」,BYK 化學・日本(股)製;商品名「AC FS 180」,Algin Chemie 製)、氟系調平劑(商品名「BYK-340」,BYK 化學・日本(股)製;商品名「AC 110a」,Algin Chemie 製)、聚碳酸酯二醇(商品名「Placel CD220PL」,DAICEL(股)製)、聚四亞甲基醚二醇(商品名「PTMG2000」,三菱化學(股)製)、聚己內酯多元醇(商品名「Placel 308」,DAICEL(股)製)、苯氧樹脂(商品名「YP-70」,新日鐵化學(股)製)、含有經基的長鏈環氧樹脂(商品名「Epotoho YD-6020」,新日鐵化學(股)製)、丙烯酸嵌段共聚物(商品名「Nanostrength M52N」,ARKEMA 製)、製造例 7 所得之橡膠粒子分散環氧化合物、應力緩和劑(商品名「KMP-600」,聚矽氧橡膠粒子,信越化學工業(股)製;商品名「KMP-602」,聚矽氧橡膠粒子,信越化學工業(股)製;商品名「SF8421」,式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物,東麗・道康寧(股)製;商品名「Y-19268」,式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物, Momentive Performance Materials・日本(同)製),更在 80℃ 攪拌 1 小時而使異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油

酯溶解，得到環氧樹脂(混合物)(於比較例 22~25 之情況中，由於環氧樹脂的成分為一種，故不進行該混合，直接這樣作成環氧樹脂)。接著，依照表 6、7 所示的摻合配方(摻合比例)(單位：重量份)，使用溶解器，均勻地混合上述環氧樹脂、白色顏料(氧化鈦；商品名「DCF-T-17050」，RESINO COLOR 工業(股)製)與無機填充劑(商品名「FB-970FD」，矽石(無表面處理)，平均粒徑 16.7 μm ，最大粒徑 70 μm)，DENKA(股)製)，藉由輾磨機，在指定條件下(輾間距：0.2mm，旋轉數：25 赫茲，通過 3 次)下混煉，得到含有白色顏料的環氧樹脂(環氧樹脂組成物)。

【0310】

製造例 11

(脂環式聚酯樹脂之製造：實施例 48、73、比較例 22~25)

於具有攪拌機、溫度計及回流冷卻器的反應容器中，加入 172 重量份的 1,4-環己烷二羧酸(東京化成工業(股)製)、208 重量份的新戊二醇(東京化成工業(股)製)、0.1 重量份的鈦酸四丁酯(和光純藥工業(股)製)，加熱到 160 $^{\circ}\text{C}$ 為止，更費 4 小時從 160 $^{\circ}\text{C}$ 升溫到 250 $^{\circ}\text{C}$ 為止。接著，費 1 小時減壓到 5mmHg 為止，更減壓到 0.3mmHg 以下後，在 250 $^{\circ}\text{C}$ 反應 1 小時，得到脂環式聚酯樹脂。

【0311】

實施例 47~74、比較例 22~25

(硬化性環氧樹脂組成物之製造)

以成爲表 6、7 所示的摻合配方(單位：重量份)之方式，使用自轉公轉式攪拌裝置(商品名「脫泡練太郎 AR-250」，THINKY(股)製)，均勻地混合(2000rpm、5 分鐘)製造例 10 所得之含有白色顏料的環氧樹脂、製造例 11 所得之脂環式聚酯樹脂、硬化觸媒(商品名「Sunaid SI-100L」，三新化學工業(股)製)，進行脫泡而得到硬化性環氧樹脂組成物。

【0312】

(硬化物之製造)

以由聚酯所成的脫模薄膜夾入上述硬化性環氧樹脂組成物，放置於 150℃ 的壓縮成型用之模具內，於 3.0MPa 之壓力下加熱及加壓 600 秒而使其硬化，然後藉由進行後硬化(150℃、5 小時)，得到硬化物。

【0313】

< 評價 >

對於實施例及比較例所得之硬化物，依照下述之程序，測定對於 450nm 的光之反射率，更進行在成形(切削加工)時、回焊時、熱衝擊試驗(TST)時是否發生裂痕之評價。表 1~7 中顯示評價結果。

【0314】

[反射率評價]

切削加工實施例及比較例所得之硬化物，製作厚度 3mm 之試驗片。接著，使用分光光度計(商品名「分光光度計 UV-2450」，島津製作所(股)製)，測定各試驗片對於波長 450nm 的光之反射率(當作「初期反射率」)。表 1~7 的「初期反射率」之欄中顯示結果。

【0315】

[耐熱性試驗(加熱老化 250 小時)]

將已測定初期反射率的試驗片(厚度 3mm)在 120℃ 加熱 250 小時後，測定對於波長 450nm 的光之反射率(當作「加熱老化(250 小時)後之反射率」)。然後，藉由下述式，算出反射率保持率(加熱老化前後；250 小時)。表 1~7 的「反射率保持率 加熱老化前後(250 小時)」之欄中顯示結果。

[反射率保持率(加熱老化前後；250 小時)]=[加熱老化(250 小時)後之反射率]/[初期反射率]×100

【0316】

[耐熱性試驗(加熱老化 500 小時)]

將已測定初期反射率的試驗片(厚度 3mm)在 120℃ 加熱 500 小時後，測定對於波長 450nm 的光之反射率(當作「加熱老化(500 小時)後之反射率」)。然後，藉由下述式，算出反射率保持率(加熱老化前後；500 小時)。表 1~7 的「反射率保持率 加熱老化前後(500 小時)」之欄中顯示結果。

[反射率保持率(加熱老化前後；500 小時)]=[加熱老化(500 小時)後之反射率]/[初期反射率]×100

【0317】

[耐光性試驗]

對於已測定初期反射率的試驗片(厚度 3mm)，照射強度 10mW/cm² 的紫外線 250 小時後，測定對於波長 450nm 的光之反射率(當作「紫外線老化後之反射率」)。

然後，藉由下述式，算出反射率保持率(紫外線老化前後)。表 1~7 的「反射率保持率 紫外線老化前後」之欄中顯示結果。

[反射率保持率(紫外線老化前後)]=[紫外線老化後之反射率]/[初期反射率]×100

【 0318】

[切削加工時有無發生裂痕之評價(強韌性評價)]

切削加工實施例及比較例所得之硬化物，製作寬度 5mm×長度 5mm×厚度 3mm 之試驗片。於上述硬化物之切削加工中，使用微切割機(商品名「BS-300CL」，MEIWA FOSIS(股)製)，用數位顯微鏡(商品名「VHX-900」，KEYENCE(股)製)觀察、確認切削加工時是否在硬化物發生裂痕。於表 1~7 的「切削加工時的裂痕數」之欄中，每 1 樣品製作 10 個試驗片，將其中確認有裂痕發生之試驗片的個數[個](稱為「裂痕數」)當作評價結果表示。再者，於表 1~7 中，以「n/10」之方式表示確認有裂痕發生之試驗片的個數(裂痕數)為 n 個之情況。

【 0319】

[回焊時有無發生裂痕之評價(強韌性評價)]

對於經由上述切削加工所得之試驗片(寬度 5mm×長度 5mm×厚度 3mm)，使用回焊爐(商品名「UNI-5016F」，日本 ANATOM(股)製)，將 260℃ 當作最高溫度進行 5 秒，將全部回焊時間設為 90 秒，施予回焊處理。然後，用數位顯微鏡(商品名「VHX-900」，KEYENCE(股)製)觀察、

確認是否因該回焊處理而在試驗片發生裂痕。於表 1~7 中，每 1 樣品進行 10 個試驗片之回焊處理，將其中確認有裂痕發生之試驗片的個數[個](裂痕數)當作評價結果表示。再者，於表 1~7 的「回焊時的裂痕數」之欄中，以「n/10」之方式表示確認有裂痕發生之試驗片的個數(裂痕數)為 n 個之情況。還有，對於在切削加工時已發生裂痕者，不實施評價。

【0320】

[熱衝擊試驗(TST)]

對於經由上述切削加工所得之試驗片(寬度 5mm×長度 5mm×厚度 3mm)，將在 -60℃ 的環境下暴露 30 分鐘，且接著在 150℃ 的環境下暴露 30 分鐘者當作 1 循環的熱衝擊，使用熱衝擊試驗機(ESPEC(股)製 小型冷熱衝擊裝置 TSE-11-A)，給予 200 循環。然後，用數位顯微鏡(商品名「VHX-900」，KEYENCE(股)製)觀察、確認是否因該熱衝擊試驗而在試驗片發生裂痕。於表 1~7 中，每 1 樣品進行 10 個試驗片之熱衝擊試驗，將其中確認有裂痕發生之試驗片的個數[個](裂痕數)當作評價結果表示。再者，於表 1~7 的「TST 時的裂痕數」之欄中，以「n/10」之方式表示確認有裂痕發生之試驗片的個數(裂痕數)為 n 個之情況。還有，對於在切削加工時已發生裂痕者，不實施評價。

【0321】

[綜合評價]

初期反射率爲 90%以上者，在耐熱性試驗(加熱老化 500 小時)中反射率保持率爲 90%以上，耐光性試驗中反射率保持率爲 90%以上，而且於切削加工時有無裂痕評價(強韌性評價)、回焊時有無裂痕評價(強韌性評價)、及熱衝擊試驗(TST)有無裂痕評價(強韌性評價)中，將裂痕數爲 0 個者當作綜合判定○(良好)。另一方面，將其以外者當作綜合判定×(不良)。表 1~4 的「綜合判定」之欄中顯示結果。

【0322】表 1

| | | 實施例 1 | 實施例 2 | 實施例 3 | 實施例 4 | 實施例 5 | 比較例 1 | 比較例 2 | 比較例 3 | 比較例 4 | 比較例 5 | 比較例 6 | 比較例 7 | 比較例 8 | 比較例 9 | 比較例 10 | |
|------------|---------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|---------|-------|-------|---------|---------|-------|-------|--------|-----|
| 硬化性環氧樹脂組成物 | 含有白色顏料的環氧樹脂(3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷 | 90 | 70 | 50 | 60 | 70 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | CEL2021P | - | - | - | 10 | - | 100 | - | 50 | - | 100 | - | 50 | - | 70 | 70 | |
| | MA-DGIC | 10 | 30 | 50 | 30 | 30 | - | - | - | - | - | - | - | - | 30 | 30 | |
| | BHPE3150 | - | - | - | - | - | - | 100 | 50 | - | - | 100 | 50 | - | - | - | |
| | TEPIC-PAS B26 | - | - | - | - | - | - | - | - | 100 | - | - | - | 100 | - | - | |
| | 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | |
| | MH-700 | 100 | 100 | 100 | 100 | - | 100 | 100 | 100 | - | - | - | - | - | 100 | - | |
| | 18X | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | - | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | - | - | - | 0.5 | - | |
| | 乙二醇 | 1 | 1 | 1 | 1 | - | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | - | - | - | 1 | - | |
| | Sunaid SI-100L | - | - | - | - | 0.5 | - | - | - | - | - | 0.5 | 0.5 | 0.5 | - | - | 0.5 |
| 硬化物 | 初期反射率[%] | 90.9 | 91.3 | 91.1 | 91.2 | 90.9 | 91.0 | 89.8 | 89.9 | 90.2 | 90.4 | 89.6 | 89.8 | 90.3 | 91.2 | 91.0 | |
| | 加熟老化前後(250小時) | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 78 | 72 | 74 | 87 | 75 | 71 | 72 | 88 | 100 | 100 | |
| | 反射率保持率[%](加熟老化前後(500小時)) | 93 | 94 | 95 | 91 | 92 | 58 | 53 | 56 | 74 | 58 | 52 | 58 | 72 | 92 | 92 | |
| | 紫外線老化前後 | 100 | 100 | 100 | 98 | 100 | 100 | 94 | 99 | 94 | 97 | 99 | 98 | 95 | 99 | 99 | |
| | 切削加工時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 9/10 | 0/10 | 10/10 | 0/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | |
| | 回焊時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 不實施(*1) | 0/10 | 0/10 | 不實施(*1) | 不實施(*1) | 0/10 | 0/10 | 0/10 | |
| | TST 時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 10/10 | 10/10 | 不實施(*1) | 10/10 | 10/10 | 不實施(*1) | 不實施(*1) | 10/10 | 10/10 | 10/10 | |
| | 綜合判定 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | × | × | × | × | × | × | × | × | × | × | × |

*1)因在切削加工時發生裂痕，不實施評價。

【0323】表 2

| 硬化性環氧樹脂組成物 | 實施例 6 | 實施例 7 | 實施例 8 | 實施例 9 | 實施例 10 | 實施例 11 | 實施例 12 | 實施例 13 | 實施例 14 |
|-------------|-----------------------|-------|-------|-------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 含有白色顏料的環氧樹脂 | (3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷 | 48 | 48 | 48 | 24 | 48 | 48 | 48 | 48 |
| | CEL202IP | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | MA-DGIC | 18 | 12 | 12 | 6 | 12 | 12 | 12 | 12 |
| | EHPE3150 | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | X-40-2678 | 10 | 40 | 40 | 70 | - | - | - | - |
| | X-40-2720 | - | - | - | - | 40 | 40 | - | - |
| | X-40-2670 | - | - | - | - | - | - | 40 | 40 |
| | TEPIC-PAS B26 | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 |
| | MH-700 | 130 | 130 | - | - | 130 | - | 130 | - |
| | HN-7200 | - | - | 130 | - | - | 130 | - | 130 |
| | HN-5700 | - | - | - | 130 | - | - | - | - |
| | 乙二醇 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | 18X | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| 硬化物 | 初期反射率[%] | 91.3 | 91.5 | 90.9 | 90.8 | 91.0 | 91.3 | 91.2 | 91.0 |
| | 加熱老化前後 (250 小時) | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| | 反射率保持率[%] (500 小時) | 96 | 97 | 98 | 99 | 100 | 95 | 96 | 94 |
| | 紫外線老化前後 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| | 切削加工時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | 回焊時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | TST 時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | 綜合判定 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

【0324】表 3

| | | 比較例 11 | 比較例 12 | 比較例 13 | 比較例 14 | 比較例 15 | 比較例 16 | 比較例 17 | 比較例 18 | 比較例 19 | 比較例 20 | 比較例 21 |
|------------|----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 硬化性環氧樹脂組成物 | 含有白色顏料的環氧樹脂 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | (3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | CEL2021P | - | - | - | - | - | 48 | 48 | 48 | 48 | 48 | 48 |
| | MA+DGIC | - | - | - | - | - | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 |
| | EHPE3150 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | X-40-2678 | 100 | 100 | - | - | - | 40 | 40 | - | - | - | - |
| | X-40-2720 | - | - | 100 | - | - | - | - | 40 | 40 | - | - |
| | X-40-2670 | - | - | - | 100 | - | - | - | - | - | - | 40 |
| | TEPIC-PAS E26 | - | - | - | - | 100 | - | - | - | - | - | - |
| | 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 |
| | MH-700 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | HN-7200 | 130 | - | 130 | 130 | 130 | 130 | - | 130 | - | 130 | - |
| | HN-5700 | - | 130 | - | - | - | - | - | 130 | - | - | 130 |
| | 乙二醇 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| | 18X | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| 硬化物 | 初期反射率[%] | | | | | | | | | | | |
| | 加熟老化前後 (250 小時) | 89.5 | 89.3 | 89.7 | 89.9 | 90.2 | 91.1 | 91.0 | 91.2 | 91.0 | 90.9 | 90.8 |
| | 反射率保持率[%] | 85 | 86 | 89 | 84 | 87 | 94 | 93 | 94 | 93 | 93 | 92 |
| | 加熟老化前後 (500 小時) | 56 | 74 | 58 | 52 | 58 | 94 | 93 | 92 | 93 | 91 | 90 |
| | 紫外線老化前後 | 98 | 97 | 98 | 96 | 94 | 100 | 100 | 98 | 99 | 100 | 99 |
| | 切削加工時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | 回焊時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | TST 時的裂痕數[個] | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 | 10/10 |
| | 綜合判定 | × | × | × | × | × | × | × | × | × | × | × |

【0326】表 5

| 硬化性環氧樹脂組成物 | 實施例 34 | | 實施例 35 | | 實施例 36 | | 實施例 37 | | 實施例 38 | | 實施例 39 | | 實施例 40 | | 實施例 41 | | 實施例 42 | | 實施例 43 | | 實施例 44 | | 實施例 45 | | 實施例 46 | | | | | | | |
|-------------------------------------|-------------------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|-----|-----|-----|-----|-----|---|
| | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | | | | | | |
| 含有白色顏料的環氧樹脂 (3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷 | CEL202IP | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | | |
| | MA-DGIC | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | | | | | | |
| | X-40-2678 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | | | | | |
| | X-40-2720 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | |
| | X-40-2670 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | |
| | BYK-300 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | |
| | ACFS 180 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | |
| | BYK-340 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | |
| | AC 110a | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | PTMG2000 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | Placel 308 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | YP-70 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | Epotolito YD-6020 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | CD220PL | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | M52N | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | 橡膠粒子 | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | KMP-600 | - | - | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | KMP-602 | - | - | - | - | - | - | - | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | SF8421 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | Y-19268 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 無機填充劑 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | |
| MH-700 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | 130 | |
| HN-7200 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| 乙二醇 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | |
| 18X | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | |
| 硬化劑組成物 (K 劑) | 91.1 | 91.6 | 92.3 | 92.1 | 92.2 | 92.5 | 92.1 | 92.5 | 92.2 | 92.2 | 92.5 | 92.1 | 92.5 | 92.1 | 92.5 | 92.2 | 92.2 | 92.2 | 92.5 | 92.5 | 94.5 | 94.5 | 95.1 | 94.5 | 95.1 | 94.8 | | | | | | |
| 硬化物 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | | | | | | |
| 初期反射率[%] | 94 | 97 | 94 | 97 | 95 | 99 | 96 | 98 | 94 | 99 | 99 | 96 | 98 | 94 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | 99 | | | | | | |
| 反射率保持率[%] | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | | | | | | |
| 加熱老化前後 (250 小時) | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | | | | | | | |
| 加熱老化前後 (500 小時) | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | | | | | | | |
| 紫外線老化前後 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | | | | | | | |
| 切削加工時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | | | | | | | |
| 回焊時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | | | | | | | |
| TST 時的裂痕數[個] | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | | | | | | | |
| 綜合判定 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | | | | | | | |

【0327】表 6

| 硬化性環氧樹脂組成物 | 實施例 47 | 實施例 48 | 實施例 49 | 實施例 50 | 實施例 51 | 實施例 52 | 實施例 53 | 實施例 54 | 實施例 55 | 實施例 56 | 實施例 57 | 實施例 58 | 實施例 59 | 實施例 60 | 實施例 61 | 實施例 62 | 實施例 63 | 實施例 64 |
|----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| (3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷 | 48 | 48 | 48 | 48 | 80 | 48 | 48 | 48 | 48 | 80 | 48 | 48 | 48 | 48 | 48 | 80 | 48 | 48 |
| CEL2021P | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| MA-DGIC | 12 | 12 | 12 | 12 | 20 | 12 | 12 | 12 | 12 | 20 | 12 | 12 | 12 | 12 | 20 | 12 | 12 | 12 |
| EHPB3150 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| X-40-2678 | 40 | 40 | - | - | - | 40 | 40 | 40 | 40 | - | 40 | 40 | 40 | 40 | - | - | 40 | 40 |
| X-40-2720 | - | - | 40 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| X-40-2670 | - | - | - | 40 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| TEPIC-PAS B26 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| BYK-300 | - | - | - | - | 1 | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| AC FS 180 | - | - | - | - | - | - | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| BYK-340 | - | - | - | - | - | - | - | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| AC 110a | - | - | - | - | - | - | - | - | 1 | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| PTMG2000 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 20 | 20 | - | - | - | - | - | - | - |
| Placel 308 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 20 | - | - | - | - | - | - |
| YP-70 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 20 | - | - | - | - | - |
| Epotohio YD-6020 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 20 | - | - | - | - |
| CD220PL | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 20 |
| M52N | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 5 | - | 5 |
| 橡膠粒子 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| KMP-600 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| KMP-602 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| SFR421 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| Y-19268 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 無機填充劑 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 |
| 脂環式聚硫樹脂 | - | 20 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 硬化劑 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| Sunaid SI-100L | 91.1 | 91.3 | 91.1 | 90.9 | 90.9 | 91.1 | 91.2 | 91.3 | 91.2 | 91.3 | 91.2 | 91.3 | 91.2 | 91.1 | 91.2 | 90.9 | 90.8 | 91.1 |
| 初期反射率[%] | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 反射率保持率[%] | 93 | 95 | 96 | 95 | 92 | 94 | 94 | 93 | 94 | 93 | 96 | 97 | 94 | 95 | 97 | 92 | 94 | 98 |
| 切割加工時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| 回彈時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| TST 時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| 綜合判定 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

【0328】表 7

| 硬化性環氧樹脂組成份 | 實施例 65 | | 實施例 66 | | 實施例 67 | | 實施例 68 | | 實施例 69 | | 實施例 70 | | 實施例 71 | | 實施例 72 | | 實施例 73 | | 實施例 74 | | 比較例 22 | | 比較例 23 | | 比較例 24 | | 比較例 25 | | | | | | | | | |
|--------------------------------------|------------------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 80 | 48 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | | | | | | | |
| 含有白色顏料的環氧樹脂 (3,4,3',4'-二環氧基) 雙環己烷 | CEL2021P | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | | | |
| | MA-DGIC | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | 20 | 12 | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | | | |
| | EHPE3150 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | | |
| | X-40-2678 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 40 | - | 100 | - | - | - | - | - | - | - | | | | | | |
| | X-40-2720 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 100 | - | - | - | - | - | - | | | | | | |
| | X-40-2670 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 100 | - | - | - | - | - | | | | | | |
| | TEPIC-PAS B26 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | | |
| | BYK-300 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | | |
| | ACFS 180 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | |
| | BYK-340 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | | |
| | AC 110a | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | PTMG2000 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | Placcel 308 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | YP-70 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | Epotohto YD-6020 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | CD220PL | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| | M52N | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | 橡膠粒子 | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | KMP-600 | - | - | 10 | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| | KMP-602 | - | - | - | - | - | - | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | |
| SF8421 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| Y-19268 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | 10 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| 無機填充劑 | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | | |
| 白色顏料 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | 150 | | |
| Sumaid SI-100L | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | | |
| 初期反射率[%] | 91.3 | 91.4 | 91.3 | 91.2 | 91.3 | 91.2 | 91.2 | 91.2 | 91.2 | 91.2 | 91.1 | 91.3 | 94.3 | 94.3 | 94.5 | 94.7 | 89.6 | 89.2 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.6 | 89.2 | 89.2 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | 89.5 | | |
| 硬化觸媒 脂環式聚醚樹脂 | 加熟老化前後 (250小時) | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | |
| | 加熟老化前後 (500小時) | 92 | 96 | 92 | 96 | 92 | 96 | 92 | 96 | 92 | 94 | 92 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | |
| | 紫外線老化前後 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| | 切割加工時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | 回焊時有無裂痕 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | TST時的裂痕數[個] | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 | 0/10 |
| | 綜合判定 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 硬化物 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

【0329】再者，實施例及比較例所使用之成分係如以下。

[環氧樹脂]

(3,4,3',4'-二環氧基)雙環己烷，DAICEL(股)製

CEL2021P(Celloxide 2021P)：3,4-環氧基環己基甲基(3,4-環氧基)環己烷羧酸酯，DAICEL(股)製

MA-DGIC：異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯，四國化成工業(股)製

EHPE3150：2,2-雙(羥基甲基)-1-丁醇的1,2-環氧基-4-(2-環氧乙烷基)環己烷加成物，DAICEL(股)製

TEPIC-PAS B26：異三聚氰酸參縮水甘油酯，日產化學工業(股)製

X-40-2678：在分子內具有2個環氧基的矽氧烷衍生物，信越化學工業(股)製

X-40-2720：在分子內具有3個環氧基的矽氧烷衍生物，信越化學工業(股)製

X-40-2670：在分子內具有4個環氧基的矽氧烷衍生物，信越化學工業(股)製

BYK-300：聚矽氧系調平劑(包含聚矽氧系聚合物之調平劑)，BYK化學·日本(股)製

AC FS 180：聚矽氧系調平劑(包含聚矽氧系聚合物之調平劑)，Algin Chemie 製

BYK-340：氟系調平劑(包含含氟丙烯酸系聚合物之調平劑)，BYK化學·日本(股)製

AC 110a：氟系調平劑(包含含氟聚醚系聚合物之調平劑)，Algin Chemie 製

CD220PL(Placel CD220PL)：聚碳酸酯二醇，DAICEL(股)製

PTMG2000：聚四亞甲基醚二醇，三菱化學(股)製

Placel 308：聚己內酯多元醇，DAICEL(股)製

YP-70：苯氧樹脂，新日鐵化學(股)製

Epotohto YD-6020：含有羥基的長鏈環氧樹脂，新日鐵化學(股)製

M52N(Nanostrength M52N)：丙烯酸嵌段共聚物，ARKEMA 製

KMP-600：在表面具備聚矽氧樹脂之經交聯的聚二甲基矽氧烷，信越化學工業(股)製

KMP-602：在表面具備聚矽氧樹脂之經交聯的聚二甲基矽氧烷，信越化學工業(股)製

SF8421：式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物)，東麗·道康寧(股)製

Y-19268：式(10)所示的聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物)，Momentive Performance Materials·日本(同)製
[無機填充劑]

矽石：商品名「FB-970FD」(矽石，無表面處理，平均粒徑 $16.7\mu\text{m}$ ，最大粒徑 $70\mu\text{m}$)，DENKA(股)製
[白色顏料]

氧化鈦，商品名「DCF-T-17050」，RESINO COLOR 工業(股)製

[K 劑]

MH-700(Rikacid MH-700)：4-甲基六氫鄰苯二甲酸酐/六氫鄰苯二甲酸酐=70/30，新日本理化(股)製

HN-7200：4-甲基六氫鄰苯二甲酸酐與脂環式聚酯樹脂之混合物，日立化成工業(股)製

HN-5700：4-甲基六氫鄰苯二甲酸酐/3-甲基六氫鄰苯二甲酸酐=70/30 與脂環式聚酯樹脂之混合物，日立化成工業(股)製

18X(U-CAT 18X)：硬化促進劑，SUNAPRO(股)製

乙二醇：和光純藥工業(股)製

[硬化觸媒]

Sunaid SI-100L：芳基銻鹽，三新化學工業(股)製

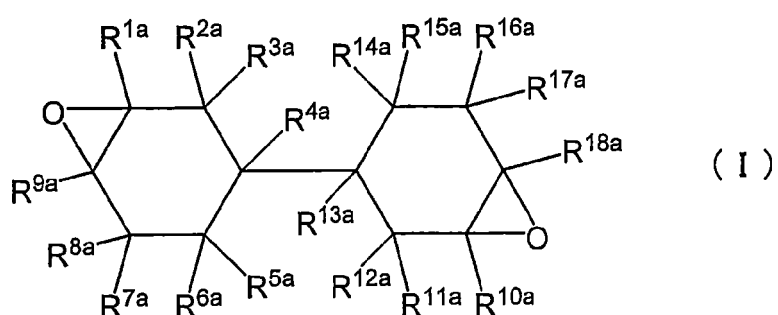
【0330】如表 1~7 所示，本發明之硬化性環氧樹脂組成物的硬化物(實施例)係具有優異光反射性，且在切削加工時、回焊時及熱衝擊試驗時不發生裂痕，尤其對於熱衝擊試驗的抗龜裂性優異、強韌。再者，於加熱老化及紫外線老化後，亦維持高的光反射性，耐熱性及耐光性優異。特別地，於除了脂環式環氧化合物及異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯之外，還更包含脂環式聚酯樹脂(或更包含脂環式聚酯樹脂及在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物)之情況(實施例 8、9、12、14、17、45、48、73)中，即使更長時間(500 小時)的加熱，光反射性也幾乎沒有降低，發揮非常優異的耐熱性。

另一方面，由不滿足本發明之規定的硬化性環氧樹脂組成物所形成的硬化物(比較例)，係在加熱老化及紫

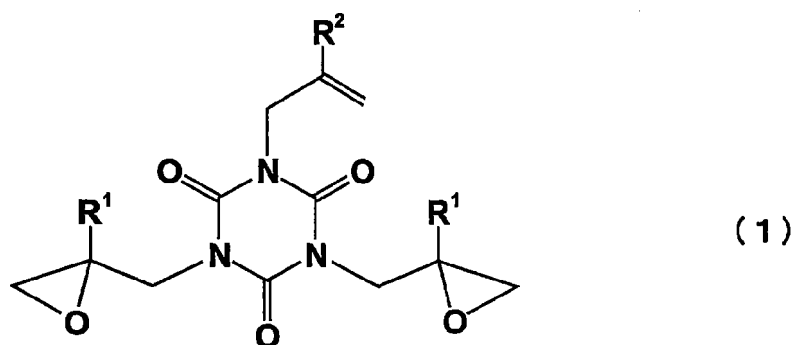
外線老化後，光反射性降低，耐熱性及耐光性差。再者，於熱衝擊試驗時容易發生裂痕，韌性亦差。

【0331】以下附記上述說明的本發明之變型。

[1]一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有下述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)與硬化促進劑(F)，



[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基(較佳為氫原子)]；



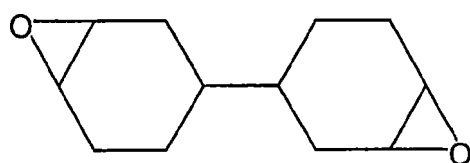
[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數1~8的烷基(較佳為氫原子)]。

[2]如上述[1]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)為5~90重量%(較佳為5~80重量%，更佳為5~70重量%)。

【0332】[3]一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有上述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、上述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)與硬化觸媒(E)。

[4]如上述[3]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)為25~95重量%(較佳為30~92重量%，更佳為30~90重量%)。

【0333】[5]如上述[1]~[4]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中前述脂環式環氧化合物(A)係下述式(I-1)所示的化合物。



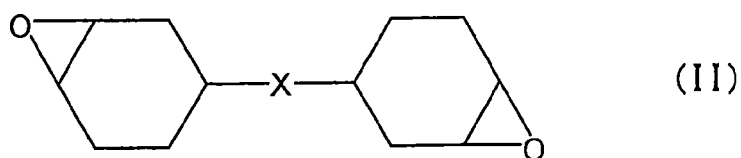
(I-1)

[6]如上述[1]~[5]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於脂環式環氧化合物(A)與異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)之總量(100重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)為30~95重量%(較佳為35~95重量%，更佳為40~95重量%)。

【0334】[7]如上述[1]~[6]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含脂環式環氧化合物(A)以外的脂環式環氧化合物(以下，亦稱為「其它的脂環式環氧化合物」)。

[8]如上述[7]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中其它的脂環式環氧化合物係選自包含(i)具有以構成脂環之鄰接的2個碳原子與氧原子所構成之環氧基(亦稱為「脂環環氧基」)的化合物(脂環式環氧化合物(A)除外)及(ii)環氧基直接以單鍵鍵結至脂環之化合物之群組的至少1種。

[9]如上述[8]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中(i)具有脂環環氧基的化合物係下述式(II)所示的脂環式環氧化合物：



[式(II)中，X表示連結基(具有1個以上的原子之二價基)]。

[10]如上述[9]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中其它的脂環式環氧化合物為3,4-環氧基環己基甲基(3,4-環氧基)環己烷羧酸酯。

[11]如上述[7]~[10]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於其它的脂環式環氧化合物與脂環式環氧化合物(A)之總量(100重量%)，其它的脂環式環氧

化合物之使用量(含量)爲 1~50 重量%(較佳爲 5~40 重量%，更佳爲 5~30 重量%，特佳爲 5~20 重量%)。

【0335】[12]如上述[1]~[11]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中脂環式環氧化合物(A)：異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)爲 50：50~95：5(重量比)(較佳爲 50：50~90：10(重量比))。

【0336】[13]如上述[1]~[12]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其在 25℃ 爲液狀。

[14]如上述[13]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其在常壓下 25℃ 所測定的黏度爲 1000000mPa·s 以下(較佳爲 800000mPa·s 以下)。

【0337】[15]如上述[1]~[14]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中白色顏料(C)係選自包含氧化鋁、氧化鎂、氧化錒、氧化鈦、氧化鋯、氧化矽及無機中空粒子之群組的 1 種以上(較佳爲氧化鈦)。

[16]如上述[1]~[15]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中白色顏料(C)之中心粒徑爲 0.1~50 μm (較佳爲 0.1~30 μm ，更佳爲 0.1~20 μm ，特佳爲 0.1~10 μm ，最佳爲 0.1~5 μm)。

[17]如上述[1]~[16]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(全部含有環氧基的化合物)100 重量份，白色顏料(C)之使用量(摻含量)爲 80~500 重量份(較佳爲 90~400 重量份，更佳爲 100~380 重量份)。

【0338】[18]如上述[1]、[2]、[5]~[17]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中硬化劑(D)為飽和單環烴二羧酸之酐(亦包含在環上鍵結有烷基等的取代基者)。

[19]如上述[1]、[2]、[5]~[18]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100重量份)，硬化劑(D)之使用量(含量)為50~200重量份(較佳為80~145重量份)。

[20]如上述[1]、[2]、[5]~[19]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100重量份)，硬化促進劑(F)之使用量(含量)為0.05~5重量份(較佳為0.1~3重量份，更佳為0.2~3重量份，特佳為0.25~2.5重量份)。

【0339】[21]如上述[3]~[20]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100重量份)，硬化觸媒(E)之使用量(含量)為0.01~15重量份(較佳為0.01~12重量份，更佳為0.05~10重量份，特佳為0.1~10重量份)。

【0340】[22]如上述[1]~[21]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含在分子內具有2個以上(較佳為2~4個)的環氧基之矽氧烷衍生物(G)。

[23]如上述[22]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)係選自包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷及在分子內具有 2 個以上的環氧基之直鏈狀聚矽氧之群組的至少 1 種(較佳為在分子內具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷)。

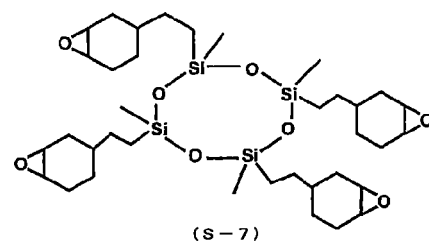
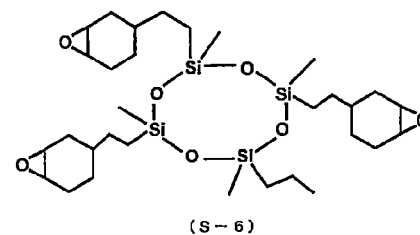
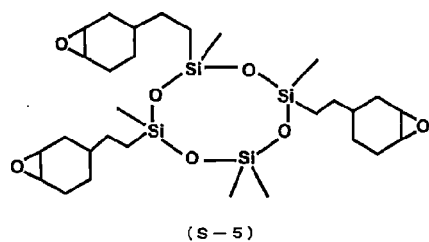
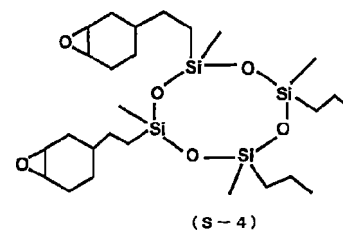
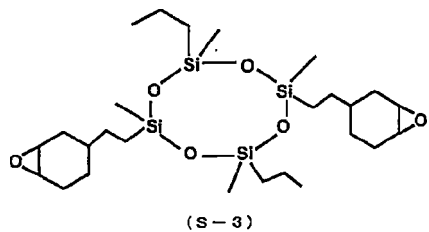
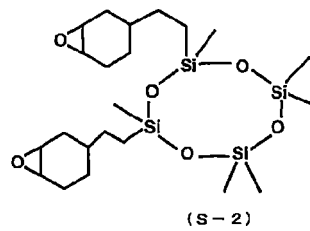
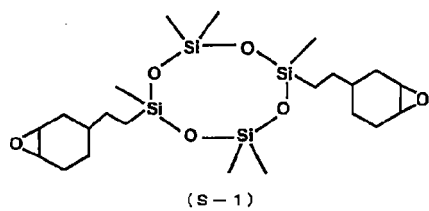
[24]如上述[23]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中形成環狀矽氧烷的 Si-O 單元之數為 2~12(較佳為 4~8)。

[25]如上述[22]~[24]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之重量平均分子量為 100~3000(較佳為 180~2000)。

[26]如上述[22]~[25]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之環氧當量(依據 JIS K7236)為 180~400(較佳為 240~400，更佳為 240~350)。

[27]如上述[22]~[26]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)中之環氧基為脂環環氧基(較佳為環氧環己烷基)。

[28]如上述[22]~[27]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)係選自包含下述式(S-1)~(S-7)所示之在一分子中具有 2 個以上的環氧基之環狀矽氧烷之群組的至少 1 種。



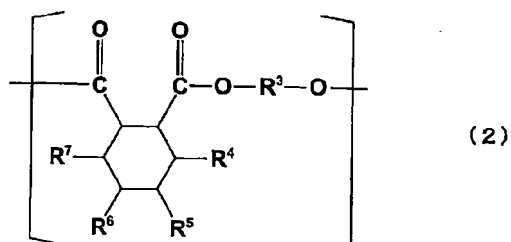
[29]如上述[22]~[28]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100重量%)，在分子內具有2個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之使用量(含量)為5~90重量%(較佳為5~85重量%，更佳為5~80重量%，特佳為8~75重量%)。

[30]如上述[22]~[29]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於具有環氧基的化合物(環氧樹脂)之總量(100重量%)，脂環式環氧化合物(A)、異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)及在分子內具有2個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)之總量為30~100重量%(較佳為40~100重量%)。

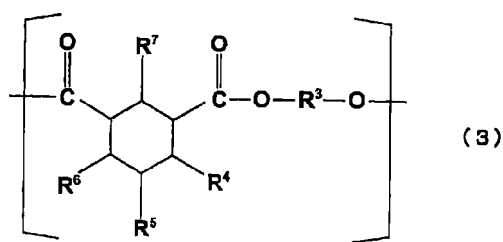
【0341】[31]如上述[1]~[30]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含脂環式聚酯樹脂(H)。

[32]如上述[31]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中脂環式聚酯樹脂(H)為在主鏈具有脂環的脂環式聚酯樹脂。

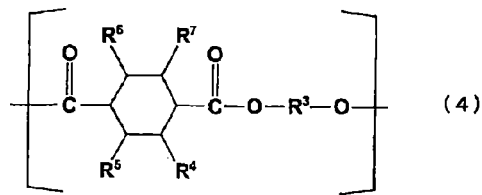
[33]如上述[31]或[32]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中脂環式聚酯樹脂(H)係包含至少一種的下述式(2)~(4)所示的構成單元之脂環式聚酯樹脂；



(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個亦可鍵結而形成環)；

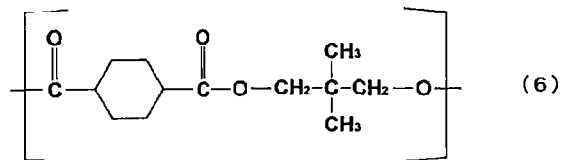
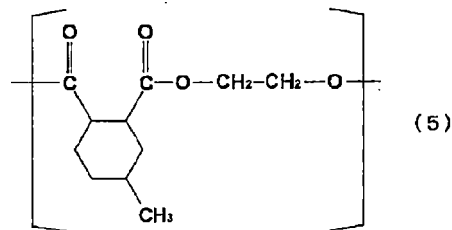


(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個亦可鍵結而形成環)；



(式中， R^3 表示直鏈、支鏈或環狀之碳數 2~15 的伸烷基；又， $R^4 \sim R^7$ 各自獨立地表示氫原子或直鏈狀或支鏈狀之碳數 1~4 的烷基，亦可形成由 $R^4 \sim R^7$ 所選出的二個鍵結成的環)。

[34]如上述 [31]~[33]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中脂環式聚酯樹脂(H)係包含至少一種的下述式(5)及(6)所示的構成單元之脂環式聚酯樹脂。



[35]如上述 [31]~[34]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中脂環式聚酯樹脂(H)之數量平均分子量為 300~100000(較佳為 300~30000)。

[36]如上述 [31]~[35]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中將硬化劑(D)當作必要成分時，相對於脂環式聚酯樹脂(H)與硬化劑(D)之合計量(100 重量%)，脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量(含量)為 1~60 重量%(較佳為 5~30 重量%)。

[37]如上述[31]~[35]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中將硬化觸媒(E)當作必要成分時，相對於脂環式聚酯樹脂(H)與硬化觸媒(E)之合計量(100 重量%)，脂環式聚酯樹脂(H)之摻含量(含量)為 50~99 重量%(較佳為 65~99 重量%)。

【0342】[38]如上述[22]~[37]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中將硬化劑(D)當作必要成分時，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)為 5~90 重量%(較佳為 8~80 重量%，更佳為 8~75 重量%)。

[39]如上述[22]~[37]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中將硬化觸媒(E)當作必要成分時，相對於白色顏料(C)及無機填充劑(J)以外的硬化性環氧樹脂組成物全量(100 重量%)，脂環式環氧化合物(A)之使用量(含量)為 10~95 重量%(較佳為 15~85 重量%，更佳為 20~75 重量%)。

【0343】[40]如上述[1]~[39]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子。

[41]如上述[40]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子係以將(甲基)丙烯酸酯當作必要的單體成分之聚合物所構成，在表面具有羥基及/或羧基，平均粒徑為 10~500nm(較佳為 20~400nm)，最大粒徑為 50~1000nm(較佳為 100~800nm)。

[42]如上述[40]或[41]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子為具有芯殼結構的橡膠粒子。

[43]如上述[40]~[42]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100重量份)，聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子之含量(摻含量)為0.5~30重量份(較佳為1~20重量份)。

【0344】[44]如上述[1]~[43]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含選自包含聚矽氧系調平劑及氟系調平劑之群組的至少1種調平劑。

[45]如上述[44]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量(100重量份)，前述調平劑的不揮發分之含量(摻含量)為0.1~10重量份(較佳為0.1~5重量份，更佳為0.1~4重量份)。

【0345】[46]如上述[1]~[45]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含多元醇化合物。

[47]如上述[46]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中多元醇化合物係選自包含聚酯多元醇、聚醚多元醇、聚碳酸酯多元醇、苯氧樹脂、雙酚型高分子環氧樹脂、具有羥基的聚丁二烯類及丙烯酸多元醇之群組的至少1種。

[48]如上述[46]或[47]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中多元醇化合物之數量平均分子量為200~100000(較佳為300~50000，更佳為400~40000)。

[49]如上述[46]~[48]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於成分(A)及成分(B)之合計量(100重量份)，多元醇化合物之使用量(含量)為 1~50 重量份(較佳為 1.5~40 重量份，更佳為 5~30 重量份)。

[50]如上述[46]~[49]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中於硬化性環氧樹脂組成物包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)時，相對於上述成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100 重量份)，多元醇化合物之使用量(含量)為 1~50 重量份(較佳為 1.5~40 重量份，更佳為 5~30 重量份)。

【0346】[51]如上述[1]~[50]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含丙烯酸嵌段共聚物。

[52]如上述[51]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中丙烯酸嵌段共聚物較佳為玻璃轉移溫度(Tg)低的聚合物嵌段[S](軟嵌段)與具有 Tg 比聚合物嵌段[S]更高的聚合物嵌段[H](硬嵌段)交替排列的嵌段共聚物。

[53]如上述[52]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中丙烯酸嵌段共聚物係在中間具有聚合物嵌段[S]，在其兩端具有聚合物嵌段[H]的 H-S-H 結構之三嵌段共聚物。

[54]如上述[51]~[53]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中丙烯酸嵌段共聚物之數量平均分子量為 3000~500000(較佳為 30000~400000)。

[55]如上述[51]~[54]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於成分(A)及成分(B)之合計量(100重量份)，丙烯酸嵌段共聚物之使用量(含量)為 1~30 重量份(較佳為 3~15 重量份，更佳為 3~10 重量份)。

[56]如上述[51]~[55]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中於硬化性環氧樹脂組成物包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)時，相對於成分(A)、成分(B)及成分(G)之合計量(100 重量份)，丙烯酸嵌段共聚物之使用量(含量)為 1~30 重量份(較佳為 3~15 重量份，更佳為 3~10 重量份)。

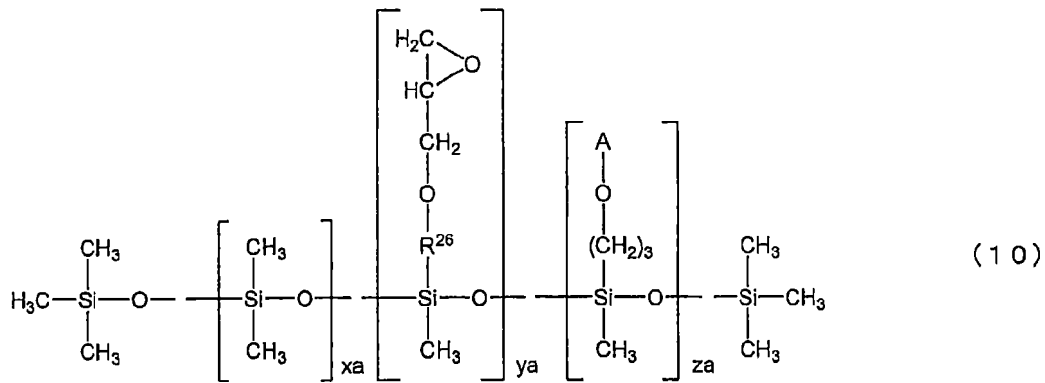
【0347】[57]如上述[1]~[56]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含應力緩和劑(I)。

[58]如上述[57]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中應力緩和劑(I)係選自包含聚矽氧橡膠粒子(I1)、聚矽氧油(I2)、液狀橡膠成分(I3)及熱塑性樹脂(I4)之群組的至少 1 種(較佳為選自包含聚矽氧橡膠粒子(I1)及聚矽氧油(I2)之群組的至少 1 種)。

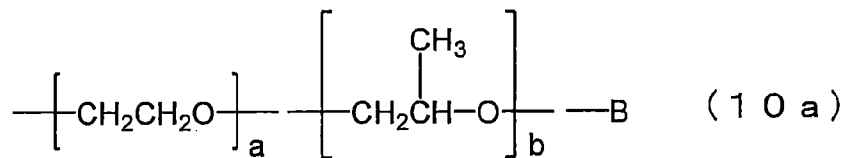
[59]如上述[58]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧橡膠粒子(I1)係在表面具備聚矽氧樹脂之經交聯的聚二甲基矽氧烷。

[60]如上述[58]或[59]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中聚矽氧橡膠粒子(I1)之平均粒徑(d_{50})為 0.1~100 μm (較佳為 0.5~50 μm)，最大粒徑為 0.1~250 μm (較佳為 0.1~150 μm)。

[61]如上述[58]~[60]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧油(I2)係環氧當量 3000~15000(較佳為 4000~15000，更佳為 5000~13000)之具有下述式(10)所示的結構之聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物；



[式中， x_a 為 80~140 之整數， y_a 為 1~5 之整數， z_a 為 5~20 之整數； R^{26} 為碳數 2 或 3 的伸烷基(較佳為甲基亞甲基、二甲基亞甲基、伸乙基、伸丙基、三亞甲基，更佳為三亞甲基)；A 為具有下述式(10a)所示的結構之聚伸烷基醚基；



(式中， a 及 b 各自獨立地為 0~40 之整數；B 為氫原子或甲基(較佳為甲基))。

[62]如上述[61]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中 a 及 b 之合計為 1~80 之整數。

[63]如上述[57]~[62]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於脂環式環氧化合物(A)100 重量份，應力緩和劑(I)之含量(摻含量)為 1~250 重量份(較佳為 5~230 重量份，更佳為 10~200 重量份)。

[64]如上述[57]~[63]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含

之具有環氧基的化合物之全量 100 重量份，應力緩和劑(I)之含量(摻合量)為 1~200 重量份(較佳為 5~150 重量份，更佳為 8~120 重量份)。

【0348】[65]如上述[1]~[64]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含無機填充劑(J)。

[66]如上述[65]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中無機填充劑(J)為矽石(矽石填料)。

[67]如上述[66]記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中矽石之中心粒徑為 $0.1\sim 50\mu\text{m}$ (較佳為 $0.1\sim 30\mu\text{m}$)。

[68]如上述[65]~[67]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物(100 重量%)，無機填充劑(J)之含量(摻合量)為 10~90 重量%(較佳為 13~75 重量%，更佳為 15~70 重量%，尤佳為 20~70 重量%)。

[69]如上述[65]~[68]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中相對於硬化性環氧樹脂組成物中所包含之具有環氧基的化合物之全量 100 重量份，無機填充劑(J)之含量(摻合量)為 10~1500 重量份(較佳為 50~1200 重量份，更佳為 100~1000 重量份)。

[70]如上述[65]~[69]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其中白色顏料(C)及無機填充劑(J)之最大粒徑為 $200\mu\text{m}$ 以下(較佳為 $185\mu\text{m}$ 以下，更佳為 $175\mu\text{m}$ 以下，特佳為 $150\mu\text{m}$ 以下)，且為 $0.01\mu\text{m}$ 以上。

【0349】[71]如上述[1]~[70]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物，其係壓縮成型用之樹脂組成物。

[72]一種硬化物，其係如上述[1]~[71]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物的硬化物。

[73]如上述[72]記載之硬化物，其中硬化物之波長450nm的光之反射率為90%以上(較佳為90.5%以上)。

[74]如上述[72]或[73]記載之硬化物，其在120℃加熱250小時後之波長450nm的光之反射率(亦稱為「250小時加熱老化後之反射率」)相對於初期反射率的保持率([250小時加熱老化後之反射率]/[初期反射率]×100)為85%以上(較佳為90%以上，更佳為95%以上，特佳為98%以上)。

[75]如上述[72]~[74]中任一項記載之硬化物，其在120℃加熱500小時後之波長450nm的光之反射率(亦稱為「500小時加熱老化後之反射率」)相對於初期反射率的保持率([500小時加熱老化後之反射率]/[初期反射率]×100)為85%以上(較佳為90%以上，更佳為95%以上，特佳為98%以上)。

[76]如上述[72]~[75]中任一項記載之硬化物，其在照射強度10mW/cm²的紫外線250小時後之對於波長450nm的光之反射率(亦稱為「紫外線老化後之反射率」)相對於初期反射率的保持率([紫外線老化後之反射率]/[初期反射率]×100)為90%以上(較佳為95%以上，更佳為98%以上)。

【0350】[77]一種光反射用硬化性樹脂組成物，其包含如上述[1]~[71]中任一項記載之硬化性環氧樹脂組成物。

[78]一種光半導體裝置，其特徵為至少具備光半導體元件與由如上述[72]~[76]中任一項記載的硬化物所成之反射器。

產業上的利用可能性

【0351】本發明之硬化性環氧樹脂組成物係可較宜使用作為LED封裝用途(LED封裝之構成材料，例如光半導體裝置中的反射器材料、外殼材料等)、電子零件之接著用途、液晶顯示器用途(例如，反射板等)、白色基板用印墨、密封劑等。

【符號說明】

【0352】

- 100 白色反射器
- 101 金屬配線(電極)
- 102 光半導體元件之搭載區域
- 103 封裝基板
- 104 接合線
- 105 光半導體元件的密封材料
- 106 晶粒接合
- 107 光半導體元件
- 108 散熱片
- 109 陰極標記

發明摘要

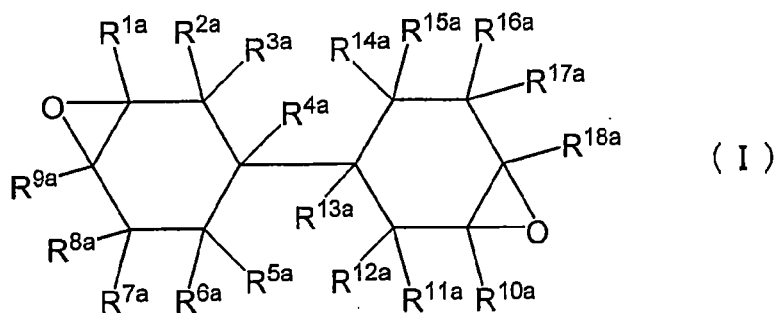
【發明名稱】(中文/英文)

硬化性環氧樹脂組成物及其硬化物、以及光半導體裝置

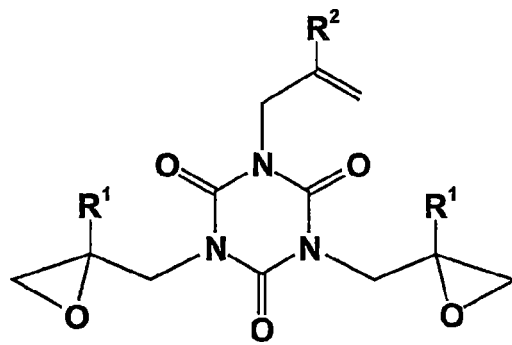
【中文】

本發明之目的在於提供一種硬化性環氧樹脂組成物，其適合壓縮成型，可提供：具有高的光反射性，耐熱性及耐光性優異，而且強韌、抗龜裂性優異，光反射性不易隨著時間經過而降低之硬化物。

本發明提供硬化性環氧樹脂組成物、及其硬化物、以及包含由該硬化物所成的反射器之半導體裝置，其中該硬化性環氧樹脂組成物含有下述式(I)所示的脂環式環氧化合物(A)、下述式(1)所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物(B)、白色顏料(C)、硬化劑(D)與硬化促進劑(F)，



[式中， $R^{1a} \sim R^{18a}$ 相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]；



(1)

[式中，R¹及R²表示氫原子或碳數1~8的烷基]。

【英文】

無。

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

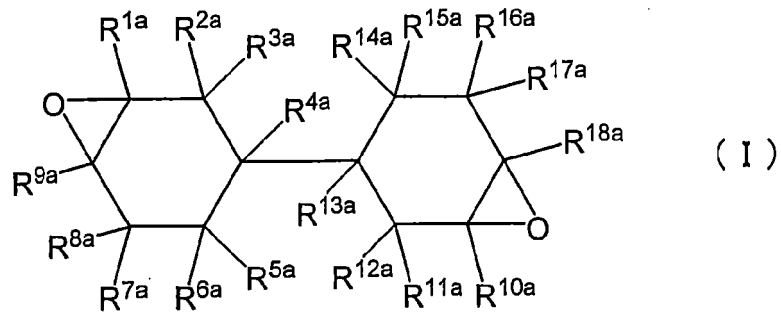
無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

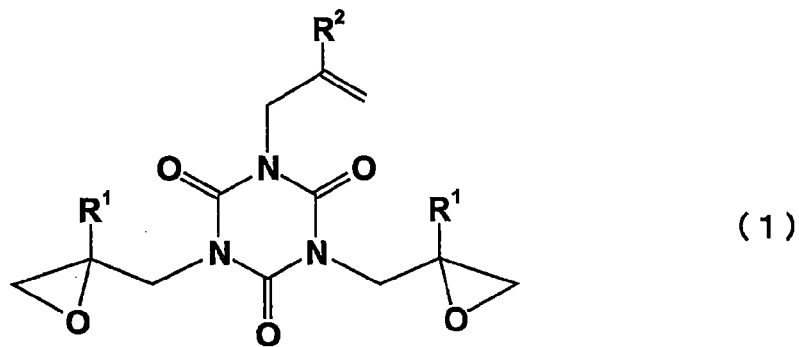
無。

申請專利範圍

1. 一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有下述式 (I) 所示的脂環式環氧化合物 (A)、下述式 (1) 所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物 (B)、白色顏料 (C)、硬化劑 (D) 與硬化促進劑 (F)，

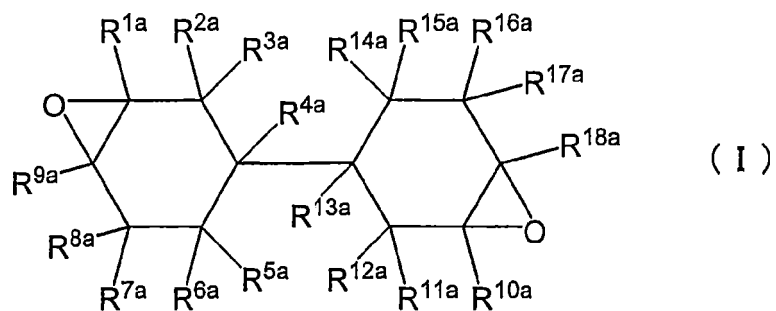


[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]；

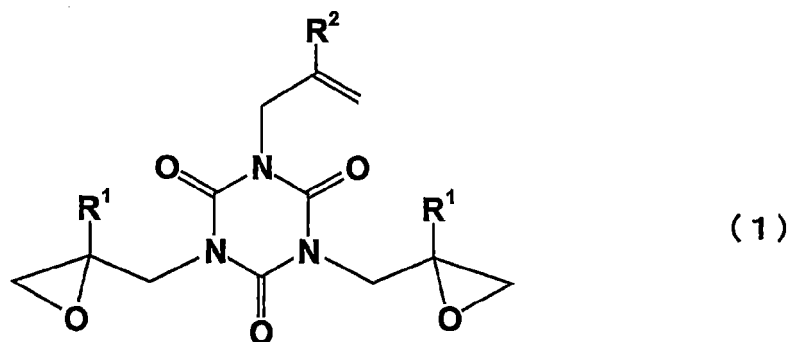


[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烷基]。

2. 一種硬化性環氧樹脂組成物，其特徵為含有下述式 (I) 所示的脂環式環氧化合物 (A) 所示的脂環式環氧化合物 (A)、下述式 (1) 所示的異三聚氰酸單烯丙基二縮水甘油酯化合物 (B)、白色顏料 (C) 與硬化觸媒 (E)，

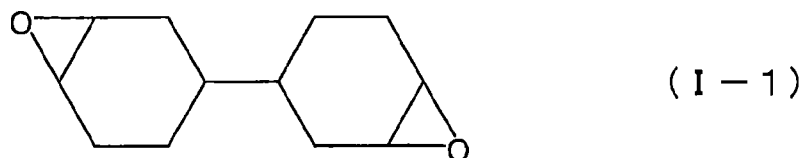


[式中， R^{1a} 、 R^{2a} 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{6a} 、 R^{7a} 、 R^{8a} 、 R^{9a} 、 R^{10a} 、 R^{11a} 、 R^{12a} 、 R^{13a} 、 R^{14a} 、 R^{15a} 、 R^{16a} 、 R^{17a} 及 R^{18a} 係相同或相異，表示氫原子、鹵素原子、可具有氧原子或鹵素原子的烴基、或可具有取代基的烷氧基]，



[式中， R^1 及 R^2 表示氫原子或碳數 1~8 的烷基]。

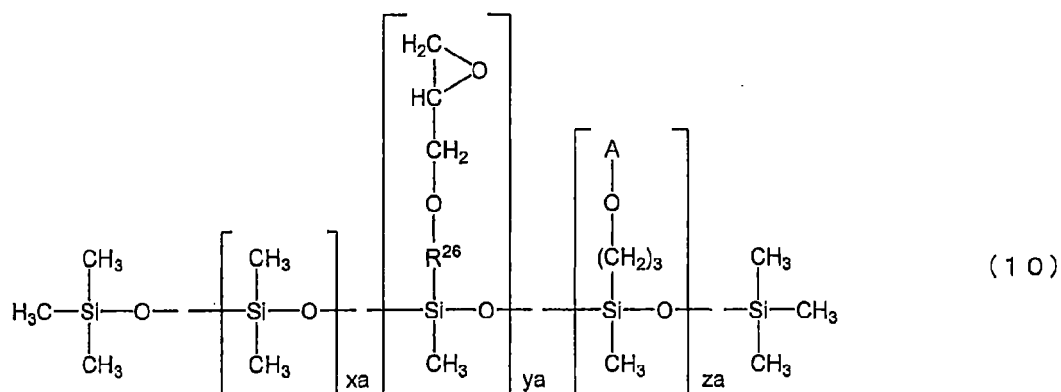
- 3.如請求項 1 或 2 之硬化性環氧樹脂組成物，其中該脂環式環氧化合物(A)係下述式(I-1)所示的化合物，



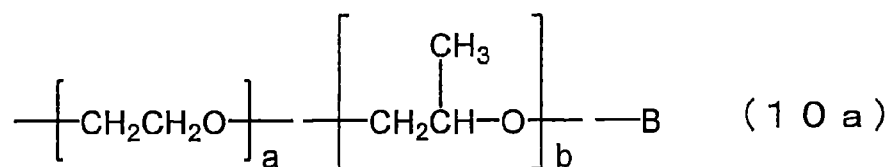
- 4.如請求項 1 至 3 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其在 25°C 為液狀。

- 5.如請求項 1 至 4 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含在分子內具有 2 個以上的環氧基之矽氧烷衍生物(G)。
- 6.如請求項 1 至 5 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含脂環式聚酯樹脂(H)。
- 7.如請求項 6 之硬化性環氧樹脂組成物，其中該脂環式聚酯樹脂(H)係在主鏈具有脂環的脂環式聚酯樹脂。
- 8.如請求項 1 至 7 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含聚矽氧橡膠粒子以外的橡膠粒子。
- 9.如請求項 1 至 8 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含選自包含聚矽氧系調平劑及氟系調平劑之群組的至少 1 種調平劑。
- 10.如請求項 1 至 9 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含多元醇化合物。
- 11.如請求項 1 至 10 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含丙烯酸嵌段共聚物。
- 12.如請求項 1 至 11 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含應力緩和劑(I)。
- 13.如請求項 12 之硬化性環氧樹脂組成物，其中該應力緩和劑(I)係選自包含聚矽氧橡膠粒子(I1)及聚矽氧油(I2)之群組的至少 1 種。
- 14.如請求項 13 之硬化性環氧樹脂組成物，其中該聚矽氧橡膠粒子(I1)係在表面具備聚矽氧樹脂的經交聯之聚二甲基矽氧烷。

- 15.如請求項 13 或 14 之硬化性環氧樹脂組成物，其中該聚矽氧油(I2)係環氧當量 3000~15000 之具有下述式(10)所示的結構之聚伸烷基醚改質聚矽氧化合物；



[式中， x_a 為 80~140 之整數， y_a 為 1~5 之整數， z_a 為 5~20 之整數； R^{26} 為碳數 2 或 3 的伸烷基；A 為具有下述式(10a)所示的結構之聚伸烷基醚基；



(式中， a 及 b 各自獨立地為 0~40 之整數；B 為氫原子或甲基)]。

- 16.如請求項 1 至 15 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物，其進一步包含無機填充劑(J)。
- 17.一種硬化物，其係如請求項 1 至 16 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物的硬化物。
- 18.一種光反射用硬化性樹脂組成物，其包含如請求項 1 至 16 中任一項之硬化性環氧樹脂組成物。

19. 一種光半導體裝置，其特徵為至少具備光半導體元件與由如請求項 18 之光反射用硬化性樹脂組成物的硬化物所成之反射器。

