



(21)申請案號：106130220

(22)申請日：中華民國 106 (2017) 年 09 月 05 日

(51)Int. Cl.：

C08L83/04 (2006.01)

C08L83/06 (2006.01)

C08G77/14 (2006.01)

C08K3/00 (2006.01)

C09K11/80 (2006.01)

C09K11/02 (2006.01)

H01L33/50 (2010.01)

(30)優先權：2016/09/07 日本

2016-175089

(71)申請人：日商住友化學股份有限公司(日本) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED (JP)

日本

(72)發明人：增井建太郎 MASUI, KENTARO (JP)；土居篤典 DOI, ATSUNORI (JP)

(74)代理人：林志剛

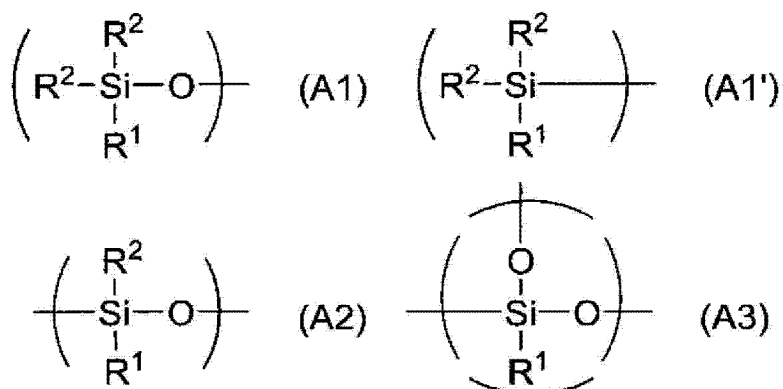
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：15 項 圖式數：2 共 73 頁

(54)名稱

聚矽氧樹脂組成物、含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物及含有波長轉換材料之薄片

(57)摘要

提供一種具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物耐熱性優異的聚矽氧樹脂組成物 該聚矽氧樹脂組成物係含有聚矽氧樹脂及溶劑的聚矽氧樹脂組成物， 前述聚矽氧樹脂組成物係在 25℃ 中，黏度為 100~50000mPa·s 的液狀組成物， 前述聚矽氧樹脂含有下述式(A3)所示之構造單位， 前述聚矽氧樹脂中所含的下述式(A1)所示之構造單位、下述式(A1')所示之構造單位、下述式(A2)所示之構造單位及下述式(A3)所示之構造單位的合計含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全部構造單位的合計含量而言，為 80 莫耳%以上，



[式中，R¹ 表示烷基或芳基；R² 表示烷氧基或羥基]。

【發明說明書】

【中文發明名稱】

聚矽氧樹脂組成物、含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物及含有波長轉換材料之薄片

【技術領域】

[0001] 本發明係關於聚矽氧樹脂組成物、含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物及含有波長轉換材料之薄片。

【先前技術】

[0002] 半導體雷射(LD、Laser Diode)在高電流密度領域中亦可維持高變換效率。又，半導體雷射亦可藉由分離發光部及激勵部以使裝置小型化。因此，將半導體雷射用於照明裝置是可期待的。

[0003] 半導體雷射的發光譜係取決於為半導體雷射之形成材料的半導體材料。現今，用半導體雷射發光出RGB全部3色的方式(前者之方式)，以及配置LD元件及波長轉換材料，且將從LD元件發光出的光照射於波長轉換材料上，並變換發光波長以藉此獲得白色光的方式(後者之方式)已被採用。後者之方式由於適合裝置的小型化，故探討其向投影機等之應用的開展。

[0004] 在發光二極體(LED、Light Emitting Diode)元件之發光面上，配置含有作為波長轉換材料之螢光體的薄

片(以下，有時稱為「螢光體薄片」)之發光裝置是已知的(例如，參照專利文獻1)。又，在玻璃基質中分散著無機螢光體粉末的波長轉換構件亦是已知的(例如，參照專利文獻2)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[0005]

[專利文獻1] 日本特開2013-001792號公報

[專利文獻2] 日本特開2013-095849號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

[0006] 半導體雷射係可發光出較發光二極體更高能量密度的光。因此，對於LD用之螢光體薄片，尋求著較LED用之螢光體薄片更高的耐熱性。專利文獻1中記載之螢光體薄片，作為LD用之螢光體薄片有耐熱性不足的情形。具體來說，當從半導體雷射發光出的光照射於專利文獻1中記載之螢光體薄片上時，因高能量密度之光照射伴隨的發熱，使得螢光體薄片中含有之樹脂劣化，而有產生龜裂、著色、皺摺等的情形。

[0007] 又，專利文獻2中記載之波長轉換構件雖然耐熱性優良，但因玻璃基質之燒結溫度為350~900℃，故於燒結玻璃基質之際有無機螢光體粉末產生劣化的情形。又，專利文獻2中記載之波長轉換構件係難以塗佈於基材

上，亦難以在燒結後進行加工。

[0008] 本發明之目的係有鑑於此類情事所成者，提供一種具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物具有優良耐熱性的聚矽氧樹脂組成物。

[解決課題之手段]

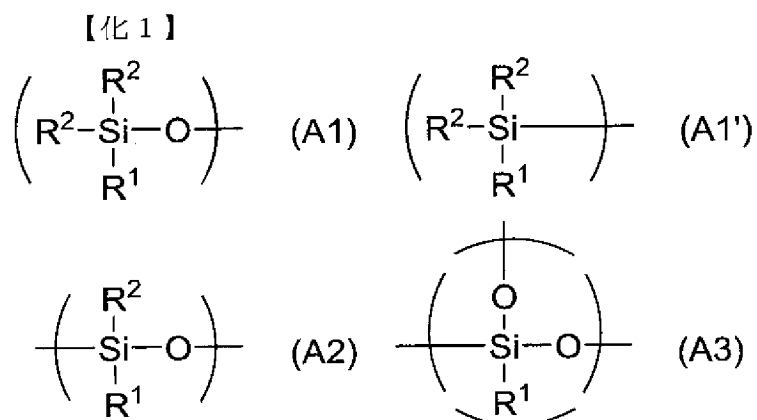
[0009] 為解決上述之課題，本發明提供以下之[1]~[15]。

[0010] [1] 一種聚矽氧樹脂組成物，其係含有聚矽氧樹脂及溶劑的聚矽氧樹脂組成物，

前述聚矽氧樹脂組成物係在25℃中，黏度為100~50000mPa·s的液狀組成物，

前述聚矽氧樹脂含有下述式(A3)所示之構造單位，

前述聚矽氧樹脂中所含之下述式(A1)所示之構造單位、下述式(A1')所示之構造單位、下述式(A2)所示之構造單位及下述式(A3)所示之構造單位的合計含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量而言，為80莫耳%以上，



[式(A1)、式(A1')、式(A2)及式(A3)中，

R^1 表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R^2 表示碳數1~4之烷氧基或羥基；

複數之 R^1 及 R^2 分別可相同亦可不同]。

[2] 如[1]中記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂中所含之前述式(A3)所示之構造單位的含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量而言，為55莫耳%以上。

[3] 如[1]或[2]中記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂組成物中所含之前述溶劑的含量，相對於前述聚矽氧樹脂組成物中所含之全成分的合計含量而言，為10~40質量%。

[4] 如[1]~[3]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂，實質上由縮合型聚矽氧樹脂所構成。

[5] 如[1]~[4]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述 R^1 為甲基，且前述 R^2 為碳數1~3之烷氧基或羥基。

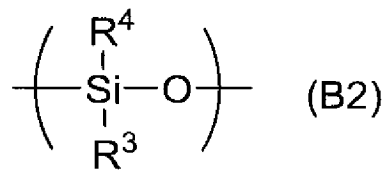
[6] 如[1]~[5]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂之聚苯乙烯換算的重量平均分子量為1500~15000。

[7] 如[1]~[6]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂含有第1寡聚物，

且前述第1寡聚物含有下述式(B2)所示之構造單位，

並且前述第1寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量為1000~10000，

【化 2】



[式 (B2) 中，

R³ 表示碳數 1~10 之烷基或碳數 6~10 之芳基；

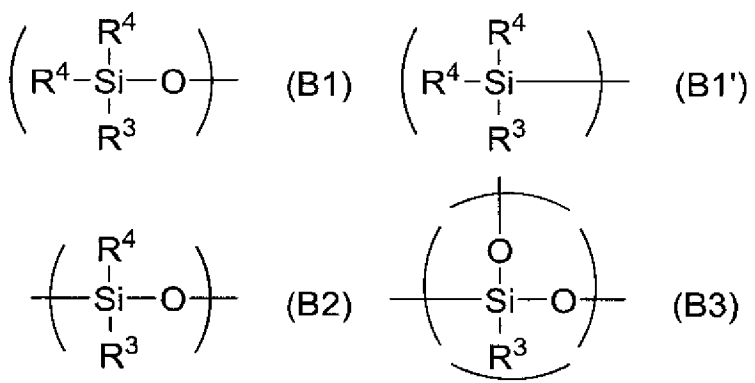
R⁴ 表示碳數 1~10 之烷基、碳數 6~10 之芳基、碳數 1~4 之烷氧基或羥基]。

[8] 如 [7] 中記載的聚矽氧樹脂組成物，其中前述第 1 寡聚物中所含之前述式 (B2) 所示之構造單位中，前述 R⁴ 為碳數 1~4 之烷氧基或羥基的構造單位之含量，相對於前述第 1 寡聚物中所含之全構造單位的合計含量而言為 30~60 莫耳 %。

[9] 如 [7] 或 [8] 中記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述第 1 寡聚物含有下述式 (B1)、下述式 (B1')、下述式 (B2) 或下述式 (B3) 所示之構造單位，

且前述第 1 寡聚物之平均組成式為下述式 (I) 所示，

【化 3】

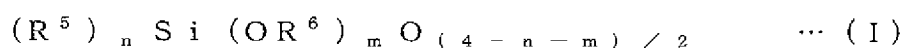


[式 (B1)、式 (B1')、式 (B2) 及式 (B3) 中，

R^3 表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R^4 表示碳數1~10之烷基、碳數6~10之芳基、碳數1~4之烷氧基或羥基；

複數之 R^3 及 R^4 分別可相同亦可不同]，



[式中，

R^5 表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R^6 表示碳數1~10之烷基、碳數6~10之芳基或氫原子；

n 表示滿足 $1 < n < 2$ 的實數； m 表示滿足 $0 < m < 1$ 的實數]。

[10] 如[7]~[9]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，其中前述第1寡聚物中所含之下述T體及D體的莫耳比為60：40~90：10，

(此處，

T體係指含有與3個氧原子鍵結之矽原子的構造單位；

D體係指含有與2個氧原子鍵結之矽原子的構造單位)。

[11] 如[1]~[10]中任一項記載之聚矽氧樹脂組成物，前述聚矽氧樹脂含有第2寡聚物，

且前述第2寡聚物含有前述式(A1)、前述式(A1')、前述式(A2)或前述式(A3)所示之構造單位，

前述第2寡聚物中所含之前述式(A3)所示之構造單位的含量，相對於前述式(A1)所示之構造單位、前述式(A1')所示之構造單位、前述式(A2)所示之構造單位及前述式(A3)所示之構造單位的合計含量而言為0~30莫耳%，

且前述第2寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量未滿1500。

[12] 一種含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其含有如[1]~[11]任一記載之聚矽氧樹脂組成物與波長轉換材料。

[13] 如[12]中記載之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其係在25℃中，黏度為1000~500000mPa·s之液狀組成物。

[14] 如[12]或[13]中記載之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其中前述波長轉換材料的含量，相對於前述含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之全成分的合計含量而言為40質量%以上。

[15] 一種含有波長轉換材料的薄片，其係以如[12]~[14]中任一項記載之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的硬化物作為形成材料。

[發明效果]

[0011] 若依據本發明，可提供具有良好的塗佈性，硬化後之硬化物耐熱性優異的聚矽氧樹脂組成物。

【圖式簡單說明】

[0012]

[圖1] 顯示具備波長轉換薄片之發光裝置的一態樣之剖面圖。

[圖2] 顯示具備波長轉換薄片之發光裝置的一態樣之剖面圖。

【實施方式】

[0013] 以下針對本發明之實施形態進行說明。

[0014] 聚矽氧樹脂中所含之構造單位，以作為重複單位包含在聚矽氧樹脂中較佳。

[0015]

<聚矽氧樹脂組成物>

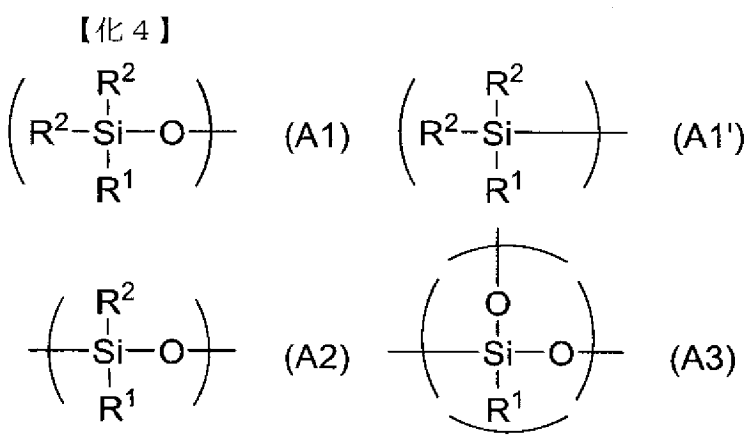
本實施形態之聚矽氧樹脂組成物含有聚矽氧樹脂及溶劑，

且為在25℃中，黏度為100~50000mPa·s之液狀組成物，

並含有下述式(A3)所示之構造單位，

且聚矽氧樹脂中所含之下述式(A1)所示之構造單位、下述式(A1')所示之構造單位、下述式(A2)所示之構造單位及下述式(A3)所示之構造單位的合計含量，相較於聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量，為80莫耳%以上。

[0016]



[式(A1)、式(A1')、式(A2)及式(A3)中，
R¹表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；
R²表示碳數1~4之烷氧基或羥基；
複數之R¹及R²分別可相同亦可不同]。

[0017] 如同實施例所示，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物(基質)耐熱性優異。因此，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物，例如，係適用於LD用之螢光體薄片的形成材料，且亦適用於LED之封裝層的形成材料。本實施形態之聚矽氧樹脂組成物由於對於塗佈性、耐熱性及填料容受性均優良，故特別適用於LD用之螢光體薄片的形成材料。

[0018] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的黏度，在25℃中，以300~20000mPa・s較佳，以400~15000mPa・s更佳，以500~10000mPa・s再更佳。

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的黏度，在25℃中，只要是在上述範圍內，在與波長轉換材料混合時，其與波長轉換材料之混合性良好，並同時抑制波長轉換材料的沉降。

[0019]

(聚矽氧樹脂)

本實施形態的聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂，可為單獨1種，亦可為2種以上。

[0020] 針對本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中所含之構造單位進行說明。

[0021] 本說明書中，含有與3個氧原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「T體」。

又，含有該3個氧原子全部與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「T3體」。

又，含有該3個氧原子中其中2個氧原子與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「T2體」。

又，含有該3個氧原子中其中1個氧原子與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「T1體」。

亦即，「T體」係指「T1體」、「T2體」及「T3體」。

[0022] 本說明書中，含有與2個氧原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「D體」。含有與1個氧原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「M體」。

[0023] 式(A3)所示之構造單位，包含與其他矽原子鍵結之3個氧原子及與 R^1 鍵結之矽原子。由於 R^1 為碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基，故式(A3)所示之構造單位為T3體。

[0024] 式(A2)所示之構造單位，包含與其他矽原子

鍵結之2個氧原子、與 R^1 及 R^2 鍵結之矽原子。由於 R^2 為碳數1~4之烷氧基或羥基，故式(A2)所示之構造單位為T2體。

[0025] 式(A1)所示之構造單位，包含與其他矽原子鍵結之1個氧原子、與 R^1 及2個 R^2 鍵結之矽原子。由於 R^1 為碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基， R^2 為碳數1~4之烷氧基或羥基，故式(A1)所示之構造單位為T1體。

[0026] 式(A1')所示之構造單位，包含與 R^1 及2個 R^2 鍵結之矽原子，且該矽原子係與已與其他構造單位中之矽原子鍵結的氧原子鍵結。由於 R^1 為碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基，且 R^2 為碳數1~4之烷氧基或羥基，故式(A1')所示之構造單位為T1體。

[0027] 式(A1)所示之構造單位及式(A1')所示之構造單位，構成縮合型聚矽氧樹脂中所含之有機聚矽氧烷鏈的末端。又，式(A3)所示之構造單位，構成縮合型聚矽氧樹脂中所含之有機聚矽氧烷鏈的支鏈構造。即，式(A3)所示之構造單位，形成縮合型聚矽氧樹脂中的網目構造及環構造的一部分。

[0028] 本說明書中，T3體中所含之矽原子稱為「T3矽原子」。又，T2體中所含之矽原子稱為「T2矽原子」。又，T1體所含之矽原子稱為「T1矽原子」。

[0029] 在本實施形態的聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中，T體的含量(即，T1體、T2體及T3體的合計含量)，相對於聚矽氧樹脂所含之全構造單位的合計含

量而言，以80莫耳%以上較佳。換言之，T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子的合計含量，相對於聚矽氧樹脂中所含之全矽原子的合計含量而言，以80莫耳%以上較佳。

[0030] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂，含有選自由上述式(A3)所示之構造單位，亦可進一步含有選自上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位及上述式(A2)所示之構造單位所成群組中之1種以上的構造單位。

[0031] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物所含的聚矽氧樹脂，以包含上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位之全部較佳。

[0032] 本說明書中，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂含有後述之寡聚物成分之情形中，對於「本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中所含之全構造單位」，定為包含寡聚物成分所含之構造單位者。

[0033] 在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中，上述式(A3)所示之構造單位的含量，相對於聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量而言，以55莫耳%以上較佳，60莫耳%以上更佳，65莫耳%以上再更佳，70莫耳%以上特佳。

[0034] 即，在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中，T3體的含量，相對於聚矽氧樹脂中所

含之全構造單位的合計含量而言，以55莫耳%以上較佳，60莫耳%以上更佳，65莫耳%以上再更佳，70莫耳%以上特佳。換言之，聚矽氧樹脂中所含之T3矽原子的含量，相對於聚矽氧樹脂中所含之全矽原子的合計含量而言，以55莫耳%以上較佳，60莫耳%以上更佳，65莫耳%以上再更佳，70莫耳%以上特佳。

[0035] 如實施例所示，在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂中，T體之含量及T3體之含量，只要在上述範圍內，則聚矽氧樹脂組成物之硬化物顯示出充分的耐熱性，同時在耐熱試驗後亦顯示出高透光率。

[0036] T3矽原子的含量，係可以歸屬為T3矽原子之信號的面積相對於 ^{29}Si -NMR測定中所求得之全矽原子的信號之合計面積的比例來求得。關於T1矽原子及T2矽原子的含量，亦可用相同的方法求得。

[0037] 在上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位中， R^1 以烷基較佳，從耐熱性的觀點來看，以甲基較佳。

[0038] R^1 所示之碳數1~10係可為直鏈狀之烷基，亦可為支鏈狀之烷基，亦可為具有環狀構造的烷基。在此等之中，亦以直鏈狀或支鏈狀之烷基較佳，直鏈狀之烷基更佳，甲基再更佳。

[0039] R^1 所示之碳數1~10之烷基，構成該烷基的1個

以上之氫原子亦可被其他官能基所取代。作為烷基之取代基，例如可舉出苯基、萘基等碳數6~10之芳基，並以苯基較佳。

[0040] 作為 R^1 所示之碳數1~10之烷基，例如可舉出甲基、乙基、n-丙基、異丙基、n-丁基、異丁基、三級丁基、n-戊基、新戊基、己基、辛基、壬基、癸基等無取代之烷基、苯基甲基、苯基乙基、苯基丙基等之芳烷基。在此等之中，以甲基、乙基、n-丙基、異丙基或n-丁基較佳，甲基、乙基或異丙基更佳，甲基尤更佳。

[0041] R^1 所示之碳數6~10之芳基，構成該芳基的1個以上之氫原子亦可被其他官能基所取代。作為芳基之取代基，例如可舉出甲基、乙基、n-丙基、n-丁基等碳數1~10之烷基。

[0042] 作為 R^1 所示之碳數6~10之芳基，例如可舉出苯基、萘基等無取代之芳基；甲基苯基、乙基苯基、丙基苯基等之烷基芳基。此等之中，以苯基較佳。

[0043] 在上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位及上述式(A2)所示之構造單位中， R^2 以甲氧基、乙氧基、異丙氧基或羥基較佳。

[0044] R^2 所示之碳數1~4之烷氧基，可為直鏈狀之烷氧基，亦可為支鏈狀之烷氧基，亦可為具有環狀構造之烷氧基。在此等之中，以直鏈狀或支鏈狀之烷氧基較佳，直鏈狀之烷氧基更佳。

[0045] 作為 R^2 所示之碳數1~4之烷氧基，例如可舉出

甲氧基、乙氧基、n-丙氧基、異丙氧基、n-丁氧基、異丁氧基或三級丁氧基，並從平衡良好地兼具本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的安定性與硬化性兩者的觀點來看，以甲氧基、乙氧基或異丙氧基較佳。

[0046] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂，實質上由縮合型聚矽氧樹脂所構成較佳。此處，所謂之縮合型聚矽氧樹脂，係指藉由使鍵結於矽原子之羥基與鍵結於其他矽原子之烷氧基或羥基進行脫醇反應或脫水反應而聚縮合之樹脂。所謂加成型聚矽氧樹脂，係透過讓氫矽烷基和碳-碳雙鍵進行加成反應所聚合的樹脂。又，雖然亦有透過同時發生加成反應和聚縮合反應所聚合的樹脂，但在本說明書中係當作加成型的其中一種。此處，所謂「實質上由縮合型聚矽氧樹脂所構成」，係指含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂為僅由縮合型聚矽氧樹脂所構成的形態，以及在不曾使含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物之硬化物的耐熱性降低的程度下含有其他聚矽氧樹脂的形態。此處，所謂「不會使硬化物之耐熱性降低的程度」，係指耐熱性之降低幅度不會產生實用上問題的程度。具體而言，其他聚矽氧樹脂的含量，係指相對於含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂的合計含量而言為1質量%以下，並以0.1質量%以下較佳。

[0047] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂若為實質上由縮合型聚矽氧樹脂所構成之樹脂，

則聚矽氧樹脂組成物之硬化物可在耐熱試驗後維持較高的光透率。

[0048] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂，以在上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位中的 R^1 為甲基，且 R^2 為碳數1~3之烷氧基或羥基較佳。

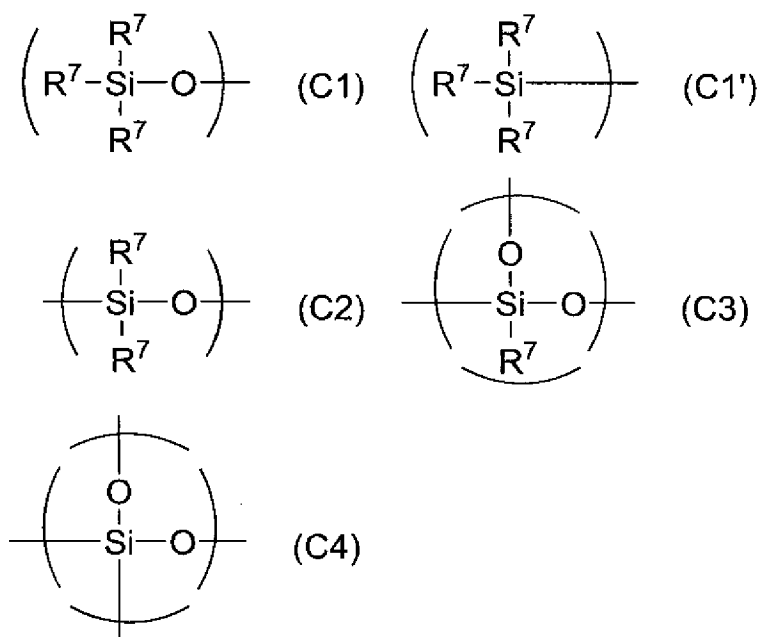
[0049] 又，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂之聚苯乙烯換算的重量平均分子量，以1500~15000較佳，2000~10000更佳，2000~8000再更佳，2500~6000特佳。聚矽氧樹脂之聚苯乙烯換算的重量平均分子量只要是在上述之範圍內，因為硬化性、對溶劑的溶解性優異，故在使用聚矽氧樹脂組成物時的操作性、塗佈性提升。

[0050] 聚矽氧樹脂的重量平均分子量，一般而言，可使用藉由凝膠滲透層析(GPC)法所測定的值。具體而言，在將聚矽氧樹脂溶解於可溶性溶劑後，將所得溶液在使用了存在大量細孔(Pore)之填充劑的管柱中與流動相溶劑一同進行通液，並在管柱內依照分子量的大小進行分離，分離出之分子量成分的含量用差示折射計或UV計、黏度計、光散射檢測器等作為檢測器來檢測。GPC專用裝置已廣泛市售，且重量平均分子量以標準聚苯乙烯換算進行測定為普遍的。本說明書中的重量平均分子量係以此標準聚苯乙烯換算進行測定者。

[0051] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物所含的聚矽氧樹脂，亦可進一步含有下述式(C1)、式(C1')、式(C2)、式(C3)或式(C4)所示之構造單位。

[0052]

【化5】



[式(C1)、式(C1')、式(C2)、式(C3)及式(C4)中， R^7 表示碳數1~4之烷氧基或羥基。複數之 R^7 可相同亦可不同]。

[0053] 在本說明書中，含有與4個氧原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「Q體」。

又，含有該4個氧原子中的其中1個氧原子與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「Q1體」。式(C1)所示之構造單位及式(C1')所示之構造單位為Q1體。

又，含有該4個氧原子中的其中2個氧原子與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「Q2體」。式(C2)所示之構造單位為Q2體。

又，含有該4個氧原子中的其中3個氧原子與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「Q3體」。式(C3)所示之構造單位為Q3體。

又，含有該4個氧原子全部與其他矽原子鍵結之矽原子的構造單位稱為「Q4體」。式(C4)所示之構造單位為Q4體。

[0054] 亦即，Q體係指Q1體、Q2體、Q3體及Q4體。

[0055]

《聚矽氧樹脂A》

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂，以混合有作為主劑之聚矽氧樹脂(以下稱為「聚矽氧樹脂A」)與後述之寡聚物成分者較佳。

[0056] 聚矽氧樹脂A含有上述式(A3)所示之構造單位。又，聚矽氧樹脂A，進一步含有選自由上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位及上述式(A2)所示之構造單位所成群組中之1種以上的構造單位較佳。

[0057] 在聚矽氧樹脂A中，T1體、T2體及T3體的合計含量，通常，相對於聚矽氧樹脂A之全部構造單位的合計含量而言，為70莫耳%以上。

在聚矽氧樹脂A中，T3體的含量，通常，相對於聚矽氧樹脂A之全構造單位的合計含量而言，為60莫耳%以上、90莫耳%以下。

聚矽氧樹脂A之聚苯乙烯換算的重量平均分子量，通常，為1500以上、8000以下。

[0058] 在聚矽氧樹脂 A 中，T1 體、T2 體及 T3 體的合計含量，相對於聚矽氧樹脂 A 之全構造單位的合計含量而言，以 80 莫耳 % 以上較佳，90 莫耳 % 以上更佳，95 莫耳 % 以上再更佳。

[0059] 在聚矽氧樹脂 A 中，T3 體的含量，相對於聚矽氧樹脂 A 之全構造單位的合計含量而言，以 65 % 以上、90 % 以下較佳，70 % 以上、85 % 以下更佳。

[0060] 聚矽氧樹脂 A 之聚苯乙烯換算的重量平均分子量，以 1500 以上、7000 以下較佳，2000 以上、5000 以下更佳。聚矽氧樹脂 A 之聚苯乙烯換算的重量平均分子量只要在此範圍內，則與後述之螢光體的混合性變得良好。

[0061] 作為聚矽氧樹脂 A，係可使用市售之聚矽氧樹脂。

[0062] 聚矽氧樹脂 A 係以具有矽醇基 (Si-OH) 者較佳。在聚矽氧樹脂 A 中，具有矽醇基的矽原子，相對於聚矽氧樹脂 A 中所含的全矽原子而言，以 1~30 莫耳 % 較佳，5~27 莫耳 % 更佳，10~25 莫耳 % 再更佳。在聚矽氧樹脂 A 中，具有矽醇基之矽原子的含量只要在上述範圍內，則在與後述之波長轉換材料混合時，因為聚矽氧樹脂 A 與波長轉換材料的表面形成氫鍵，故與波長轉換材料的混合性為良好。又，因為易於進行本實施形態之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的硬化反應，故可得到耐熱性高的波長轉換薄片。

[0063] 又，在聚矽氧樹脂 A 中，具有烷氧基的矽原

子，相對於聚矽氧樹脂A中所含的全部矽原子而言，以超過0莫耳%、20莫耳%以下較佳，超過0莫耳%、10莫耳%以下更佳，1莫耳%以上、10莫耳%以下更佳。在聚矽氧樹脂A中，具有烷氧基之矽原子的含量只要在上述範圍內，則本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的保存安定性良好，且其流動性在適當的範圍內，該聚矽氧樹脂組成物的操作性提升。

[0064] 聚矽氧樹脂A，係可用具有可生成矽氧烷鍵之官能基的有機矽化合物作為起始原料來合成。此處，作為「可生成矽氧烷鍵之官能基」，可舉出鹵素原子、羥基、烷氧基。作為對應上述式(A3)所示之構造單位的有機矽化合物，例如可舉出有機三鹵矽烷、有機三烷氧基矽烷等。聚矽氧樹脂A，可藉由以對應於各構造單位之豐度比的比例，在鹽酸等之酸或氫氧化鈉等之鹼的存在下，將作為起始原料之有機矽化合物以水解縮合法使其反應而合成。藉由適當選擇作為起始原料之有機矽化合物，可調整聚矽氧樹脂A中所含之T3矽原子的豐度比。

[0065] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂A的含量，相對於聚矽氧樹脂組成物中所含之全部聚矽氧樹脂的合計含量而言，以60質量%~100質量%較佳，70~95質量%更佳。

[0066]

(寡聚物成分)

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹

脂，除了聚矽氧樹脂A之外，亦可含有寡聚物成分。藉由在聚矽氧樹脂中含有寡聚物成分，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的硬化物成為柔軟性及耐龜裂性優異者。

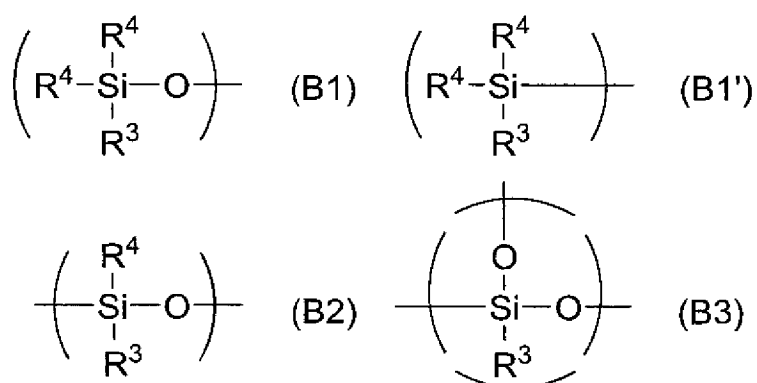
[0067]

《寡聚物B(第1寡聚物)》

作為寡聚物成分，係可舉出含有下述式(B1)、式(B1')、式(B2)或式(B3)所示之構造單位的寡聚物。

[0068]

【化6】



[式(B1)、式(B1')、式(B2)及式(B3)中，

R^3 表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R^4 表示碳數1~10之烷基、碳數6~10之芳基、碳數1~4之烷氧基或羥基；

複數 R^3 及 R^4 分別可相同亦可不同]。

[0069] 含有式(B1)、式(B1')、式(B2)及式(B3)所示之構造單位的寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量，以1000~10000較佳，2000~8000更佳，3000~6000再更佳。寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量若是在此範圍內，則與聚矽氧樹脂A或後述之寡聚物C的混合性良好。

[0070] 在以下之說明中，將包含式(B1)、式(B1')、式(B2)及式(B3)所示之構造單位，且聚苯乙烯換算之重量平均分子量為1000~10000的寡聚物成分稱為「寡聚物B」。

[0071] 寡聚物B係以(a)含有T2體的寡聚物或(b)含有D體的寡聚物較佳，以滿足(a)及(b)的寡聚物，即(c)含有T2體及D體的寡聚物更佳。在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中含有滿足(c)的寡聚物時，易於製作無皺摺及龜裂的螢光體薄片。

[0072]

(a)含有T2體的寡聚物

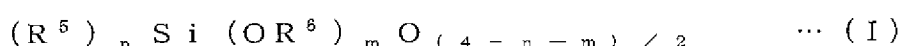
作為(a)含有T2體的寡聚物，係以式(B2)所示之構造單位，且R⁴為碳數1~4之烷氧基或羥基的構造單位之含量，即T2體之含量為30~60莫耳%較佳，為40~55莫耳%更佳。

[0073] 寡聚物B為(a)含有T2體之寡聚物之情形中，T2體之含量若是在上述之範圍內，則本實施形態之聚矽氧樹脂組成物確保了聚矽氧樹脂A及寡聚物B的溶解性，並同時在熱硬化時顯示出良好的硬化反應性。

[0074]

(b)含有D體之寡聚物

作為(b)含有D體之寡聚物，係以含有式(B1)、式(B1')、式(B2)或式(B3)所示之構造單位的聚矽氧樹脂，且平均組成式為下述式(I)所示之聚矽氧樹脂較佳。



[式(I)中，

R^5 表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R^6 表示碳數1~10之烷基、碳數6~10之芳基或氫原子；

n 表示滿足於 $1 < n < 2$ 的實數； m 表示滿足於 $0 < m < 1$ 的實數]。

[0075] 平均組成式為上述式(I)所示之寡聚物B，含有上述之「T體」及「D體」。

[0076] 在式(I)中， R^5 以甲基較佳， R^6 以甲基或氫原子較佳。較佳為 n 為滿足 $1 < n \leq 1.5$ 的實數，且 m 為滿足 $0.5 \leq m < 1$ 的實數，更佳為 n 為滿足 $1.1 \leq n \leq 1.4$ 的實數，且 m 為滿足 $0.55 \leq m \leq 0.75$ 的實數。式(I)中之 n 及 m 若在此等之範圍內，則與寡聚物B及聚矽氧樹脂A的相溶性變得良好。

[0077] 在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，為式(B1)所示之構造單位及式(B1')所示之構造單位，且2個 R^4 中其中一者為碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基，而另一者為碳數1~4之烷氧基或羥基的構造單位，係「D1體」。

[0078] 在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，為式(B2)所示之構造單位，且 R^4 為碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基的構造單位，係「D2體」。

[0079] 寡聚物B為(b)含有D體之寡聚物之情形中，在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，D1體及D2體的合計含量為5~80莫耳%較佳，10~70莫耳%更佳，15~50莫耳%再更佳。

[0080]

(c)含有T2體及D體的寡聚物

(c)含有T2體及D體的寡聚物，係滿足(a)含有T2體的寡聚物與(b)含有D體的寡聚物之雙方要件者。

[0081] 在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，為式(B1)所示之構造單位及式(B1')所示之構造單位，且2個 R^4 為碳數1~4之烷氧基或羥基的構造單位，係T1體。

[0082] 在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，為式(B2)所示之構造單位，且 R^4 為碳數1~4之烷氧基或羥基的構造單位，係T2體。

[0083] 在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，式(B3)所示之構造單位係T3體。

[0084] 寡聚物B為(c)含有T2體及D體的寡聚物之情形中，在寡聚物B中所含的全部構造單位之中，T1體、T2體及T3體之合計含量與D體之含量的莫耳比(T體：D體)，以60：40~90：10較佳，75：25~85：15更佳。T體：D體之莫耳比若在上述之範圍內，聚矽氧樹脂A與寡聚物B的相容性變得良好。

[0085] 寡聚物B對應於構成聚矽氧樹脂之上述各構造單位，係可將具有可生成矽氧烷鍵之官能基的有機矽化合物作為起始原料來合成。此處，作為「可生成矽氧烷鍵之官能基」，可舉出鹵素原子、羥基、烷氧基。

[0086] 作為對應於上述式(B3)所示之構造單位的有機矽化合物，例如可舉出有機三鹵矽烷、有機三烷氧基矽烷等。作為對應於上述式(B2)所示之構造單位的有機矽化

合物，例如可舉出有機二鹵矽烷、有機二烷氧基矽烷等。

[0087] 寡聚物B，可透過對應於各構造單位之豐度比的比例，並在存在著鹽酸等之酸或氫氧化鈉等之鹼下，將作為起始原料之有機矽化合物以水解縮合法進行反應而合成之。藉由適當選擇作為起始原料之有機矽化合物，可調整寡聚物B中所含的T體之矽原子及D體之矽原子的豐度比。

[0088] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之寡聚物B的含量，相對於聚矽氧樹脂組成物中所含之全部聚矽氧樹脂的合計含量而言，以0.1~20質量%較佳，0.2~15質量%更佳，0.5~10質量%再更佳。

[0089] 又，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之寡聚物B的含量，相對於本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂A的含量而言，以0.1~20質量%較佳，1~15質量%更佳，5~12質量%再更佳。

[0090] 藉由GPC法測定之寡聚物B的分子量分佈中，波峰係可為單一的，亦可存在複數。寡聚物B之分子量分佈中，存在於聚苯乙烯換算之重量平均分子量7500以上之區域中之波峰面積的總和，相對於全部波峰面積的總和而言為20%以上的大小；且存在於聚苯乙烯換算之重量平均分子量1000以下之區域中之波峰面積的總和，相對於全部波峰面積的總和可為30%以上。

[0091]

《寡聚物C(第2寡聚物)》

作為寡聚物成分的其他示例，例如可舉出為含有上述式(A1)、式(A1')、式(A2)或式(A3)所示之構造單位的聚矽氧樹脂，且上述式(A3)所示之構造單位的含量相對於上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位的合計含量而言為0~30莫耳%，且聚苯乙烯換算之重量平均分子量未滿1500的聚矽氧樹脂。

在以下之說明中，將如此之聚矽氧樹脂稱為「寡聚物C」。

[0092] 寡聚物C為含有上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位中之1種以上之構造單位的聚矽氧樹脂，且亦可為含有全部4種之構造單位的聚矽氧樹脂。

[0093] 寡聚物C，係T3矽原子之含量相對於T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子之合計含量的比例為0~30莫耳%，且聚苯乙烯換算之重量平均分子量未滿1500的聚矽氧樹脂。T3矽原子之含量相對於T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子之合計含量的比例，以0~25莫耳%較佳。

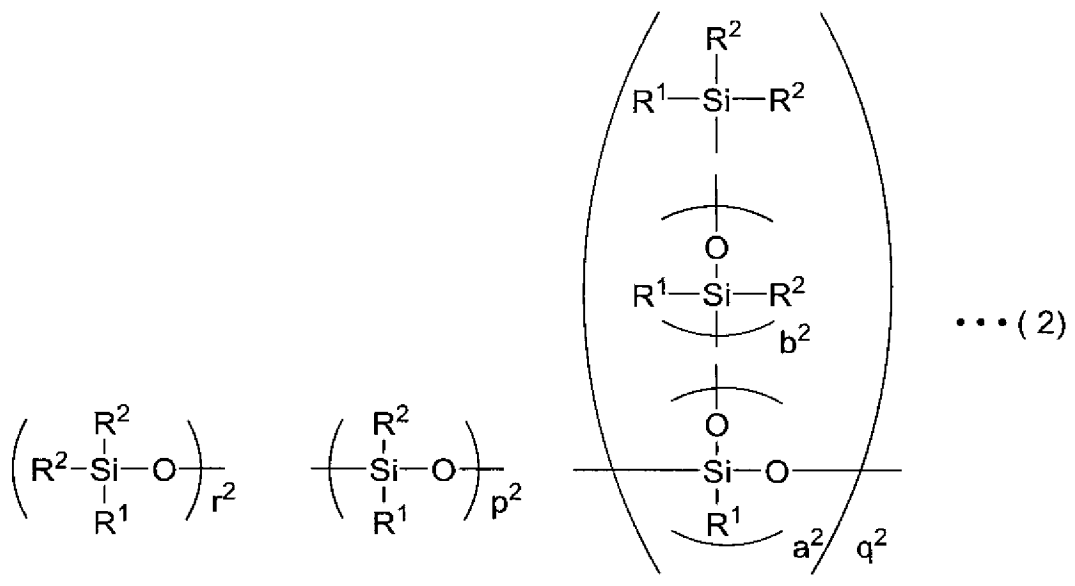
[0094] 寡聚物C係以實質上不具有烯基及氫矽烷基較佳。即，寡聚物C，以作為上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位、上述式(A2)所示之構造單位及上述式(A3)所示之構造單位中的 R^2 不具有烯基及氫原子較佳。寡聚物C若具有烯基或氫矽烷基，則本實施形態之

聚矽氧樹脂組成物之硬化物的耐熱性變低。

[0095] 寡聚物C為具有下述式(2)所示之有機聚矽氧烷構造的寡聚物較佳。

[0096]

【化7】



[式(2)中，

R^1 及 R^2 表示與前述相同的意思；複數之 R^1 及 R^2 分別可相同亦可不同；

p^2 、 q^2 、 r^2 、 a^2 及 b^2 表示成為 $[a^2 \times q^2] / [(p^2 + b^2 \times q^2) + a^2 \times q^2 + (r^2 + q^2)] = 0 \sim 0.3$ 之任意之0以上的數]。

[0097] 對於式(2)所示之有機聚矽氧烷構造，較佳為 R^1 係選自由甲基、乙基及苯基所成群組中之1種以上的基， R^2 係選自由甲氧基、乙氧基、異丙氧基及羥基所成群組中之1種以上的基，更佳為 R^1 係選自由甲基及乙基所成群組中之1種以上的基， R^2 係選自由甲氧基、乙氧基及異丙氧基所成群組中之1種以上的基。特別是從本實施形態

之聚矽氧樹脂組成物之硬化物的耐熱性的觀點來看， R^1 為甲基較佳。

[0098] 具有式(2)所示之有機聚矽氧烷構造的寡聚物C之各構造單位的豐度比，係可用T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子之豐度比表示。即，T1矽原子：T2矽原子：T3矽原子 = $[r^2+q^2] : [p^2+b^2 \times q^2] : [a^2 \times q^2]$ 。寡聚物C中之各矽原子的豐度比係可藉由適當調整 p^2 、 q^2 、 r^2 、 a^2 及 b^2 的數值來進行調整。例如，當 a^2 及 q^2 之至少一者為0時，在寡聚物C中不存在T3矽原子，僅含有直鏈狀或環狀的分子。另一方面，當 r^2 及 q^2 兩者為0時，在寡聚物C中僅存在T2矽原子，僅含有環狀的分子。

[0099] 式(2)所示之有機聚矽氧烷構造中，以T2矽原子之數量作為 x_2 ，以T3矽原子之數量作為 y_2 ，以T1矽原子之數量作為 z_2 之情形中，式(2)所示之有機聚矽氧烷構造中的T3矽原子之豐度比係以 $[y_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 所表示。

[0100] $[a^2 \times q^2]/[(p^2+b^2 \times q^2)+a^2 \times q^2+(r^2+q^2)]$ 係等於式(2)所示之有機聚矽氧烷構造中的T3矽原子之豐度比： $[y_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 。即，式(2)中之 p^2 、 q^2 、 r^2 、 a^2 及 b^2 以使T3矽原子之豐度比落於0~0.3的範圍內之方式來適當地調整。

[0101] 可含有本實施形態之聚矽氧樹脂組成物的寡聚物C，係以具有式(2)所示之有機聚矽氧烷構造的聚矽氧樹脂，且T3矽原子之含量相對於T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子的合計含量之比例： $[y_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 為0~0.3，且

聚苯乙烯換算之重量平均分子量未滿1500的寡聚物較佳。T3矽原子之豐度比若在此範圍內，則T2矽原子之豐度比： $[x_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 及T1矽原子之豐度比： $[z_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 並無特別限定。作為寡聚物C，係以 $[y_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 在0~0.25之範圍內較佳，在0.05~0.2之範圍內更佳。

[0102] 寡聚物C由於T3矽原子之豐度比相對較低，故支鏈構造較少，並含有大量直鏈狀及環狀的分子。作為寡聚物C，雖可為僅含有環狀之分子者，但以大量含有直鏈狀的分子者較佳。作為寡聚物C，例如，以T1矽原子之豐度比： $[z_2/(x_2+y_2+z_2)]$ 在0~0.80之範圍內者較佳，在0.30~0.80之範圍內者更佳，在0.35~0.75之範圍內者再更佳，在0.35~0.55之範圍內者特佳。

[0103] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之寡聚物C的含量，相對於聚矽氧樹脂組成物中所含之全聚矽氧樹脂的合計含量而言，以0.1~20質量%較佳，0.2~15質量%更佳，0.5~10質量%再更佳。

[0104] 又，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之寡聚物C的含量，相對於本實施形態的聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂A的含量而言，以0.1~20質量%較佳，0.3~10質量%更佳，0.5~5質量%再更佳。

[0105] 藉由GPC法測定之寡聚物C之聚苯乙烯換算的重量平均分子量係未滿1500。當寡聚物C之聚苯乙烯換算的重量平均分子量過大時，則有本實施形態之聚矽氧樹脂組成物之硬化物的耐龜裂性變得不足的情形。寡聚物C之

聚苯乙烯換算的重量平均分子量亦可未滿1000。

[0106] 寡聚物C之1個分子中的T1矽原子、T2矽原子及T3矽原子之數量，以使具有式(2)所示之有機聚矽氧烷構造的樹脂成為期望的分子量之方式來適當地調整。在其一實施形態中，寡聚物C1分子中的T1矽原子之數量與T2矽原子之數量與T3矽原子之數量的和，為2以上較佳。

[0107] 寡聚物C，係可對應於構成寡聚物C之上述各構造單位，以具有可生成矽氧烷鍵之官能基的有機矽化合物當作起始原料來合成。此處，「可生成矽氧烷鍵之官能基」係與上述者表示相同的定義。作為對應於上述式(A3)所示之構造單位的有機矽化合物，例如可舉出有機三鹵矽烷、有機三烷氧基矽烷等。寡聚物C，係可藉由將如此之起始原料之有機矽化合物以對應於各構造單位之豐度比的比例，以水解縮合法使其反應而合成。

[0108] 在寡聚物C之合成時，係混合對應於上述式(A1)所示之構造單位的有機矽化合物與對應於上述式(A1')所示之構造單位的有機矽化合物作為起始原料。此等之有機矽化合物在有機矽化合物進行水解縮合反應而聚合時，鍵結於聚合反應的末端使聚合反應停止。

[0109] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物以含有聚矽氧樹脂A，與寡聚物B或寡聚物C較佳，含有聚矽氧樹脂A、寡聚物B及寡聚物C更佳。

[0110]
(溶劑)

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物，因為T3體的含量高，故為達成良好塗佈性的目的而含有溶劑。溶劑只要能使聚矽氧樹脂溶解便無特別限定。作為溶劑，例如可使用沸點各自相異之2種以上的溶劑(以下稱為「溶劑P」及「溶劑Q」)。

[0111] 作為溶劑P，係以沸點未滿100℃的有機溶劑較佳。具體而言，以丙酮、甲基乙酮等之酮系溶劑；甲醇、乙醇、異丙醇、正丙醇等之醇系溶劑；己烷、環己烷、庚烷、苯等之烴系溶劑；乙酸甲酯、乙酸乙酯等之乙酸酯系溶劑；二乙醚、四氫呋喃等之醚系溶劑較佳。

[0112] 在此等之中，作為溶劑P，以甲醇、乙醇、異丙醇、正丙醇等之醇系溶劑更佳。

[0113] 作為溶劑Q，以沸點為100℃以上的有機溶劑較佳。具體而言，以甘醇醚溶劑、甘醇酯溶劑較佳。

[0114] 作為甘醇醚溶劑的具體示例，可舉出乙二醇單甲醚、乙二醇單乙醚、乙二醇單異丙醚、乙二醇單丁醚、乙二醇單己醚、乙二醇單乙基己醚、乙二醇單苯醚、乙二醇單苄醚、二乙二醇單甲醚、二乙二醇單乙醚、二乙二醇單異丙醚、二乙二醇單丁醚、二乙二醇單己醚、二乙二醇單乙基己醚、二乙二醇單苯醚、二乙二醇單苄醚、丙二醇單甲醚、丙二醇單乙醚、丙二醇單異丙醚、丙二醇單丁醚、丙二醇單己醚、丙二醇單乙基己醚、丙二醇單苯醚、丙二醇單苄醚、二丙二醇單甲醚、二丙二醇單乙醚、二丙二醇單異丙醚、二丙二醇單丁醚、二丙二醇單己醚、

二丙二醇單乙基己醚、二丙二醇單苯醚、二丙二醇單苄醚。

[0115] 作為甘醇酯溶劑的具體示例，可舉出乙二醇單乙醚乙酸酯、乙二醇單異丙醚乙酸酯、乙二醇單丁醚乙酸酯、乙二醇單己醚乙酸酯、乙二醇單乙基己醚乙酸酯、乙二醇單苯醚乙酸酯、乙二醇單苄醚乙酸酯。

[0116] 在此等之中，作為溶劑Q，以乙二醇單丁醚、二乙二醇單丁醚、二丙二醇單甲醚、乙二醇單丁醚乙酸酯更佳。

[0117] 在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中，溶劑的含量，相對於聚矽氧樹脂組成物中所含之全部成分的合計含量而言，通常為5~60質量%，以10~40質量%較佳，15~35質量%更佳。本實施形態之聚矽氧樹脂組成物，因為是在25℃中黏度為100~50000mPa·s的液狀組成物，故塗佈性良好。又，即使為本實施形態之聚矽氧樹脂組成物進一步含有後述之波長轉換材料之情形中，亦可易於調整塗佈性。聚矽氧樹脂組成物的黏度，例如可藉由利用錐板式之E型黏度計，以旋轉扭矩檢測錐板受到流體之阻力(黏性阻力)的方法來測定。

[0118]

(聚矽氧樹脂組成物)

《混合比》

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物，係可藉由混合聚矽氧樹脂A、溶劑以及視需要之寡聚物B、寡聚物C或其他成

分來獲得。本實施形態之聚矽氧樹脂組成物，係以含有聚矽氧樹脂A、溶劑、寡聚物B以及寡聚物C較佳。此處，混合相對於聚矽氧樹脂A而言，比聚矽氧樹脂A更少量之寡聚物B與比聚矽氧樹脂A更少量之寡聚物C較佳。在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中，聚矽氧樹脂A、寡聚物B及寡聚物C的混合比，從塗佈性及硬化後之硬化物耐熱性的觀點來看，以聚矽氧樹脂A：寡聚物B：寡聚物C = 100：0.1~20：0.1~20(質量比)較佳。

[0119] 在本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中，聚矽氧樹脂之混合比，為聚矽氧樹脂A：寡聚物B：寡聚物C = 100：0.2~15：0.2~15(質量比)更佳，聚矽氧樹脂A：寡聚物B：寡聚物C = 100：1~10：1~10(質量比)再更佳。

[0120]

《聚矽氧樹脂組成物之製造方法》

聚矽氧樹脂A、寡聚物B及寡聚物C之混合方法並無特別限定，可使用在混合2種類以上之高分子時所施行的任一種周知的方法。例如，可將聚矽氧樹脂A、寡聚物B、寡聚物C及視需要之其他成分分別溶解於有機溶劑中後，混合所得之溶液。

[0121] 為了能更加均勻地使聚矽氧樹脂混合，並且能提升調製之聚矽氧樹脂組成物的安定性，故在將聚矽氧樹脂溶解於揮發性及溶解性高的有機溶劑中後，再將該有機溶劑取代成別的溶劑較佳。

[0122] 具體而言，首先在揮發性及溶解性高之有機

溶劑(例如，上述之溶劑P)中加入聚矽氧樹脂A後，將其加熱至溶劑P之沸點附近的溫度為止，並藉由攪拌使聚矽氧樹脂A溶解。

接著，在所得之溶液中加入寡聚物B、寡聚物C及視需要之其他成分後，以與上述相同的方法使寡聚物B、寡聚物C及視需要之其他成分溶解於溶劑P中。

接著，在所得之溶液中加入比溶劑P揮發性更低的溶劑(例如，上述之溶劑Q)後，藉由加熱蒸餾使溶劑P的濃度達到1%以下為止，可進行將溶劑P取代成溶劑Q。為了有效率地進行溶劑取代，亦可在減壓狀態下進行加熱蒸餾。

[0123] 藉由進行溶劑取代，可去除聚矽氧樹脂A、寡聚物B、寡聚物C，及其他成分各自可含有之殘存溶劑、水等。因此，藉由溶劑取代，可提升聚矽氧樹脂組成物的安定性。

[0124]

(其他成分)

本實施形態之聚矽氧樹脂組成物除了聚矽氧樹脂及溶劑之外，亦可含有硬化用觸媒、矽烷耦合劑、無機粒子、分散劑、流平劑、消泡劑等之其他成分。

[0125]

(矽烷耦合劑)

作為矽烷耦合劑，例如可舉出具有選自由乙烯基、環氧基、苯乙烯基、甲基丙烯酸基、丙烯酸基、胺基、脲基、巰基、硫醚基及異氰酸酯基所成群組中之至少1種以

上的矽烷耦合劑。在此等之中，以具有環氧基或巰基的矽烷耦合劑較佳。

[0126] 作為矽烷耦合劑之具體示例，可舉出2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基三乙氧基矽烷、3-巰基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-巰基丙基三甲氧基矽烷。

[0127] 矽烷耦合劑的含量，相對於本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含之聚矽氧樹脂100質量份而言，通常為0.0001~1.0質量份，以0.001~0.1質量份較佳。

[0128]
(無機粒子)

作為在波長轉換材料以外添加的無機粒子，係可舉出矽、鈦、氧化鋯、鋁、鐵、鋅等之氧化物；碳黑、鈦酸鋇、矽酸鈣、碳酸鈣等。其中，作為無機粒子，以矽、鈦、氧化鋯、鋁等之氧化物更佳。

[0129] 作為無機粒子的形狀，例如可舉出略球狀、板狀、柱狀、針狀、晶鬚狀、纖維狀，為了能得到更加均勻的樹脂組成物，以略球狀較佳。

[0130] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的無機粒子可僅為1種類，亦可為2種類以上，但以粒徑相異之2種類以上的無機粒子較佳。本實施形態之聚矽氧樹脂組成物以同時含有一次粒子之平均粒徑為100~500nm的無機

粒子，與一次粒子之平均粒徑未滿100nm的無機粒子更佳。在後述之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物中，藉由含有一次粒子之平均粒徑相異的2種類以上之無機粒子，光散射所致之波長轉換材料的激發效率提升，且波長轉換材料之沉降被抑制。

[0131] 無機粒子之一次粒子的平均粒徑，例如，可藉由以電子顯微鏡等直接觀察粒子之圖像成像法而求得。

具體而言，首先調製使成為測定對象之無機粒子分散於任意溶劑中的液體，並將所得之分散液滴至載玻片等之上，再使其乾燥。亦可在黏著膠帶之黏著面上直接散佈無機粒子，製作使無機粒子附著之物。

接著，藉由以掃描型電子顯微鏡(SEM)或穿透式電子顯微鏡(TEM)直接觀察粒子，並從所得之形狀推算無機粒子的尺寸，可求得無機粒子之一次粒子的平均粒徑。

[0132] 無機粒子的含量，相對於本實施形態之聚矽氧樹脂組成物中所含的聚矽氧樹脂100質量份而言，以0.01~100質量份較佳，0.1~50質量份更佳。

[0133] 本實施形態之聚矽氧樹脂組成物含有聚矽氧樹脂A、溶劑與視需要之寡聚物成分或其他成分，且為在25℃中黏度為100~50000mPa·s的液狀組成物。如同實施例中的後述，本實施形態之聚矽氧樹脂組成物具有良好的塗佈性，且硬化後的硬化物耐熱性優異。

[0134]
(硬化用觸媒)

作為硬化用觸媒，例如上述式(A1)所示之構造單位、上述式(A1')所示之構造單位及上述式(A2)所示之構造單位中的 R^2 為烷氧基或羥基之情形中，為了促進水解縮合反應，可使用鹽酸、硫酸、硝酸、磷酸、磷酸酯等之無機酸；甲酸、乙酸、草酸、檸檬酸、丙酸、酪酸、乳酸、琥珀酸等之有機酸。

[0135] 作為硬化用觸媒，不僅是酸性化合物，亦可使用鹼性之化合物。具體而言，作為硬化用觸媒，可使用氫氧化銨、氫氧化四甲基銨、氫氧化四乙基銨等。

[0136] 作為硬化用觸媒，亦可使用有機金屬化合物觸媒。具體而言，作為硬化用觸媒，可使用含有鋁、銻、錫、鈦或鋅的有機金屬化合物觸媒。

[0137] 作為含有鋁的有機金屬化合物觸媒，例如可舉出鋁三乙醯基乙酸酯、鋁三異丙氧化物。

[0138] 作為含有銻的有機金屬化合物觸媒，例如可舉出銻四乙醯基丙酮酸酯、銻三丁氧基乙醯基丙酮酸酯、銻二丁氧基二乙醯基丙酮酸酯、銻四正丙氧化物、銻四異丙氧化物、銻四正丁氧化物、銻醯化物、銻三丁氧基硬脂酸酯。

[0139] 作為含有錫的有機金屬化合物觸媒，例如可舉出四丁基錫、單丁基錫三氯化物、二丁基錫二氯化物、二丁基錫氧化物、四辛基錫、二辛基錫二氯化物、二辛基錫氧化物、四甲基錫、二丁基錫月桂酸酯、二辛基錫月桂酸酯、雙(2-乙基己酸酯)錫、雙(新癸酸)錫、二-n-丁基雙

(乙基己基蘋果酸酯)錫、二-正丁基雙(2,4-戊二酮基)錫、二-正丁基丁氧基氯錫、二-正丁基二乙醯氧基錫、二-正丁基二月桂基酸錫、二甲基二新癸酸錫。

[0140] 作為含有鈦的有機金屬化合物觸媒，例如可舉出鈦四異丙氧化物、鈦四正丁氧化物、鈦酸丁酯二聚體、鈦酸四辛酯、乙醯丙酮鈦、鈦伸辛基乙醇酸酯、鈦乙醯乙酸乙酯。

[0141] 作為含有鋅的有機金屬化合物觸媒，例如可舉出鋅三乙醯丙酮酸酯。

[0142] 在此等之中，從所得硬化物之透明性的觀點來看，以磷酸酯或磷酸較佳，磷酸更佳。

[0143] 為了以特定之濃度將硬化用觸媒添加至聚矽氧樹脂組成物中，以在將硬化用觸媒稀釋於水、有機溶劑、聚矽氧系單體、烷氧基矽烷寡聚物等之中後，再添加至聚矽氧樹脂組成物中較佳。

[0144] 硬化用觸媒的含量，可考慮聚矽氧樹脂組成物之硬化反應的加熱溫度、時間、觸媒的種類等來適當地調整。硬化用觸媒的含量，相對於本實施形態之聚矽氧樹脂組成物 100 質量份而言，以 0.01~10 質量份較佳，0.01~5 質量份更佳，0.1~1 質量份再更佳。

[0145] 硬化用觸媒可事前添加至聚矽氧樹脂組成物中，亦可在進行聚矽氧樹脂組成物之硬化反應的前一刻添加至聚矽氧樹脂中。

[0146]

<含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物>

本實施形態之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，含有上述之聚矽氧樹脂組成物與波長轉換材料。

[0147] 本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物，係以在25℃中黏度為1000~500000mPa·s之液狀組成物較佳，黏度為8000~100000mPa·s之液狀組成物更佳，黏度為10000~80000mPa·s之液狀組成物再更佳。藉由使含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的25℃中之黏度在此等之範圍內，塗佈性變得良好。

[0148]

(波長轉換材料)

作為波長轉換材料，例如可舉出螢光體、量子點。作為螢光體，例如可舉出以波長570nm至700nm範圍發出螢光之紅色螢光體、以530nm至620nm範圍發出螢光之黃色螢光體、以490nm至570nm範圍發出螢光之綠色螢光體、以420nm至480nm範圍發出螢光之藍色螢光體。螢光體可僅單獨使用1種類，亦可組合使用2種類以上。

[0149]

《紅色螢光體》

作為紅色螢光體，例如可舉出由具有紅色斷裂面的斷裂粒子所構成，以 $(\text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})_2\text{Si}_5\text{N}_8 : \text{Eu}$ 表示的鎔激活鹼土類氮化矽系螢光體；由具有作為規則的結晶成長形狀之近乎球形的成長粒子所構成，以 $(\text{Y}, \text{La}, \text{Gd}, \text{Lu})_2\text{O}_2\text{S} : \text{Eu}$ 表示的鎔激活稀土類氧硫屬化物系螢光體。

[0150] 作為其他紅色螢光體，可舉出含有選自由 Ti、Zr、Hf、Nb、Ta、W 及 Mo 所成群組中的至少 1 種元素中之氧氮化物或氧硫化物或含有此兩者的螢光體，且含有具有部分或全部 Al 元素被 Ga 元素取代的 α -SiAlON 構造之氧氮化物的螢光體。

[0151] 作為其他紅色螢光體，可舉出 $(La,Y)_2O_2S : Eu$ 等之 Eu 激活氧硫化物螢光體； $Y(V,P)O_4 : Eu$ 、 $Y_2O_3 : Eu$ 等之 Eu 激活氧化物螢光體； $(Ba,Sr,Ca,Mg)_2SiO_4 : Eu,Mn$ 、 $(Ba,Mg)_2SiO_4 : Eu,Mn$ 等之 Eu,Mn 激活矽酸鹽螢光體； $(Ca,Sr)S : Eu$ 等之 Eu 激活硫化物螢光體； $YAlO_3 : Eu$ 等之 Eu 激活鋁酸鹽螢光體； $LiY_9(SiO_4)_6O_2 : Eu$ 、 $Ca_2Y_8(SiO_4)_6O_2 : Eu$ 、 $(Sr,Ba,Ca)_3SiO_5 : Eu$ 、 $Sr_2BaSiO_5 : Eu$ 等之 Eu 激活矽酸鹽螢光體； $(Y,Gd)_3Al_5O_{12} : Ce$ 、 $(Tb,Gd)_3Al_5O_{12} : Ce$ 等之 Ce 激活鋁酸鹽螢光體； $(Ca,Sr,Ba)_2Si_5N_8 : Eu$ 、 $(Mg,Ca,Sr,Ba)SiN_2 : Eu$ 、 $(Mg,Ca,Sr,Ba)AlSiN_3 : Eu$ 等之 Eu 激活氮化物螢光體； $(Mg,Ca,Sr,Ba)AlSiN_3 : Ce$ 等之 Ce 激活氮化物螢光體； $(Sr,Ca,Ba,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2 : Eu,Mn$ 等之 Eu,Mn 激活鹵磷酸鹽螢光體； $(Ba_3Mg)Si_2O_8 : Eu,Mn$ 、 $(Ba,Sr,Ca,Mg)_3(Zn,Mg)Si_2O_8 : Eu,Mn$ 等之 Eu,Mn 激活矽酸鹽螢光體； $3.5MgO \cdot 0.5MgF_2 \cdot GeO_2 : Mn$ 等之 Mn 激活鍺酸鹽螢光體；Eu 激活 α -SiAlON 等之 Eu 激活氧氮化物螢光體； $(Gd,Y,Lu,La)_2O_3 : Eu,Bi$ 等之 Eu,Bi 激活氧化物螢光體； $(Gd,Y,Lu,La)_2O_2S : Eu,Bi$ 等之 Eu,Bi 激活氧硫化物螢光體； $(Gd,Y,Lu,La)VO_4 : Eu,Bi$ 等之

Eu,Bi激活釷酸鹽螢光體； SrY_2S_4 ：Eu,Ce等之Eu,Ce激活硫化物螢光體； CaLa_2S_4 ：Ce等之Ce激活硫化物螢光體； $(\text{Ba},\text{Sr},\text{Ca})\text{MgP}_2\text{O}_7$ ：Eu,Mn、 $(\text{Sr},\text{Ca},\text{Ba},\text{Mg},\text{Zn})_2\text{P}_2\text{O}_7$ ：Eu,Mn等之Eu,Mn激活磷酸鹽螢光體； $(\text{Y},\text{Lu})_2\text{WO}_6$ ：Eu,Mo等之Eu,Mo激活鎢酸鹽螢光體； $(\text{Ba},\text{Sr},\text{Ca})_x\text{Si}_y\text{N}_z$ ：Eu,Ce(此處，x、y及z表示1以上之整數)等之Eu,Ce激活氮化物螢光體； $(\text{Ca},\text{Sr},\text{Ba},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{F},\text{Cl},\text{Br},\text{OH})$ ：Eu,Mn等之Eu,Mn激活鹵磷酸鹽螢光體； $((\text{Y},\text{Lu},\text{Gd},\text{Tb})_{1-x}\text{Sc}_x\text{Ce}_y)_2(\text{Ca},\text{Mg})_{1-r}(\text{Mg},\text{Zn})_{2+r}\text{Si}_{z-q}\text{Ge}_q\text{O}_{12+\delta}$ 等之Ce激活矽酸鹽螢光體。

[0152] 作為其他紅色螢光體，可舉出由以 β -二酮酸酯、 β -二酮、芳香族羧酸、布氏酸等之陰離子作為配體的稀土類元素離子錯合物而成之紅色有機螢光體、芘系顏料(例如，二苯并{[f,f']-4,4',7,7'-四苯基}二茛并[1,2,3-cd：1',2',3'-lm]芘)、蔥醌系顏料、色澱系顏料、偶氮系顏料、喹吖酮系顏料、蔥系顏料、異吡啶啉系顏料、異吡啶啉酮系顏料、酞青素系顏料、三苯基甲烷系鹼性染料、陰丹酮系顏料、靛酚系顏料、青色素(cyanine)系顏料、二噁吡系顏料。

[0153] 紅色螢光體之中，螢光發光的波峰波長為580nm以上，較佳為590nm以上，並且螢光發光的波峰波長為620nm以下，較佳為610nm以下之紅色螢光體，可適合使用作為橙色螢光體。作為如此之橙色螢光體，例如可舉出 $(\text{Sr},\text{Ba})_3\text{SiO}_5$ ：Eu、 $(\text{Sr},\text{Mg})_3\text{PO}_4$ ： Sn^{2+} 、 SrCaAlSiN_3

：Eu。

[0154]

《黃色螢光體》

作為黃色螢光體，例如可舉出氧化物系、氮化物系、氧氮化物系、硫化物系、氧硫化物系等之螢光體。具體而言，可舉出 $\text{RE}_3\text{M}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (此處，RE表示選自由Y、Tb、Gd、Lu及Sm所成群組中之至少1種的元素，M表示選自由Al、Ga及Sc所成群組中之至少1種的元素)、 $\text{M}^2_3\text{M}^3_2\text{M}^4_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (此處， M^2 表示2價之金屬元素， M^3 表示3價之金屬元素， M^4 表示4價之金屬元素)等所示之具有石榴石構造之石榴石系螢光體； $\text{AE}_2\text{M}^5\text{O}_4:\text{Eu}$ (此處，AE表是選自由Ba、Sr、Ca、Mg及Zn所成群組中之至少1種的元素， M^5 表示選自由Si及Ge所成群組中之至少1種的元素)等所示之正矽酸鹽系螢光體；作為此等螢光體之構成元素的部分氧原子被氮原子取代之氧氮化物系螢光體； $\text{AEAlSiN}_3:\text{Ce}$ (此處，AE表示選自由Ba、Sr、Ca、Mg及Zn所成群組中之至少1種的元素)等之具有 CaAlSiN_3 構造之氮化物系螢光體等之以Ce激活的螢光體。

[0155] 作為其他黃色螢光體，可舉出 $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、 $(\text{Ca},\text{Sr})\text{Ga}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、 $(\text{Ca},\text{Sr})(\text{Ga},\text{Al})_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 等之硫化物系螢光體； $\text{Ca}_x(\text{Si},\text{Al})_{12}(\text{O},\text{N})_{16}:\text{Eu}$ 等之具有SiAlON構造的氧氮化物系螢光體等之以Eu激活的螢光體。

[0156]

《綠色螢光體》

作為綠色螢光體，例如可舉出由具有斷裂面之斷裂粒子所構成，以 $(\text{Mg,Ca,Sr,Ba})\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$ 表示的銻激活鹼土類氮氧化矽系螢光體；由具有斷裂面之斷裂粒子所構成，以 $(\text{Ba,Ca,Sr,Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$ 表示的銻激活鹼土類矽酸鹽系螢光體。

[0157] 作為其他綠色螢光體，可舉出 $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25} : \text{Eu}$ 、 $(\text{Ba,Sr,Ca})\text{Al}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活鋁酸鹽螢光體； $(\text{Sr,Ba})\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Ba,Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Ba,Sr,Ca,Mg})_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Ba,Sr,Ca})_2(\text{Mg,Zn})\text{Si}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活矽酸鹽螢光體； $\text{Y}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce,Tb}$ 等之 Ce,Tb 激活矽酸鹽螢光體； $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7\text{-Sr}_2\text{B}_2\text{O}_5 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活硼酸磷酸鹽螢光體； $\text{Sr}_2\text{Si}_3\text{O}_8\text{-2SrCl}_2 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活鹵矽酸鹽螢光體； $\text{Zn}_2\text{SiO}_4 : \text{Mn}$ 等之 Mn 激活矽酸鹽螢光體； $\text{CeMgAl}_{11}\text{O}_{19} : \text{Tb}$ 、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12} : \text{Tb}$ 等之 Tb 激活鋁酸鹽螢光體； $\text{Ca}_2\text{Y}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2 : \text{Tb}$ 、 $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14} : \text{Tb}$ 等之 Tb 激活矽酸鹽螢光體； $(\text{Sr,Ba,Ca})\text{Ga}_2\text{S}_4 : \text{Eu,Tb,Sm}$ 等之 Eu,Tb,Sm 激活硫代鎳酸鹽螢光體； $\text{Y}_3(\text{Al,Ga})_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 、 $(\text{Y,Ga,Tb,Lu,Sm,Pr})_3(\text{Al,Ga})_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 等之 Ce 激活鋁酸鹽螢光體； $\text{Ca}_3\text{Sc}_2\text{Si}_3\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 、 $\text{Ca}_3(\text{Sc,Mg,Na,Li})_2\text{Si}_3\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 等之 Ce 激活矽酸鹽螢光體； $\text{CaSc}_2\text{O}_4 : \text{Ce}$ 等之 Ce 激活氧化物螢光體； $\text{SrSi}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Sr,Ba,Ca})\text{Si}_2\text{O}_2\text{N}_2 : \text{Eu}$ 、Eu 激活 $\beta\text{-SiAlON}$ 、Eu 激活 $\alpha\text{-SiAlON}$ 等之 Eu 激活氧氮化物螢光體； $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu,Mn}$ 等之 Eu,Mn 激活鋁酸鹽螢光體； $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活鋁酸鹽螢光體；

(La,Gd,Y)₂O₂S : Tb等之Tb激活氧硫化物螢光體 ; LaPO₄ : Ce,Tb等之Ce,Tb激活磷酸鹽螢光體 ; ZnS : Cu,Al、ZnS : Cu,Au,Al等之硫化物螢光體 ; (Y,Ga,Lu,Sc,La)BO₃ : Ce,Tb、Na₂Gd₂B₂O₇ : Ce,Tb、(Ba,Sr)₂(Ca,Mg,Zn)B₂O₆ : K,Ce,Tb等之Ce,Tb激活硼酸鹽螢光體 ; Ca₈Mg(SiO₄)₄Cl₂ : Eu,Mn等之Eu,Mn激活鹵矽酸鹽螢光體 ; (Sr,Ca,Ba)(Al,Ga,In)₂S₄ : Eu等之Eu激活硫鋁酸鹽螢光體或硫代鎳酸鹽螢光體 ; (Ca,Sr)₈(Mg,Zn)(SiO₄)₄Cl₂ : Eu,Mn等之Eu,Mn激活鹵矽酸鹽螢光體。

[0158] 作為其他綠色螢光體，可舉出吡啶-酞醯亞胺縮合衍生物、苯并嘔咭酮系、喹啉酮系、香豆素系、喹啉黃系、萘二甲醯亞胺系等之螢光色素；具有水楊酸己酯作為配體的鉍錯合物等之有機螢光體。

[0159]

《藍色螢光體》

作為藍色螢光體，可舉出由具有作為規則的結晶成長形狀之近似六角形的成長粒子所構成，以BaMgAl₁₀O₁₇ : Eu表示之鎔激活鋁鎂鋁酸鹽系螢光體；由具有作為規則的結晶成長形狀之近乎球狀的成長粒子所構成，以(Ca,Sr,Ba)₅(PO₄)₃Cl : Eu表示的鎔激活鹵磷酸鈣系螢光體；由具有作為規則的結晶成長形狀之近似立方體形狀的成長粒子所構成，以(Ca,Sr,Ba)₂B₅O₉Cl : Eu表示之鎔激活鹼土類氯硼酸鹽系螢光體；由具有斷裂面之斷裂粒子所構成，以(Sr,Ca,Ba)Al₂O₄ : Eu或(Sr,Ca,Ba)₄Al₁₄O₂₅ : Eu表示

之銻激活鹼土類鋁酸鹽系螢光體。

[0160] 作為其他藍色螢光體，可舉出 $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7 : \text{Sn}$ 等之 Sn 激活磷酸鹽螢光體； $\text{Sr}_4\text{Al}_{14}\text{O}_{25} : \text{Eu}$ 、 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$ 、 $\text{BaAl}_8\text{O}_{13} : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活鋁酸鹽螢光體； $\text{SrGa}_2\text{S}_4 : \text{Ce}$ 、 $\text{CaGa}_2\text{S}_4 : \text{Ce}$ 等之 Ce 激活硫代鎳酸鹽螢光體； $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}$ 、 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}, \text{Tb}, \text{Sm}$ 等之 Eu 激活鋁酸鹽螢光體； $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{MgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}, \text{Mn}$ 等之 Eu, Mn 激活鋁酸鹽螢光體； $(\text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba}, \text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_5(\text{PO}_4)_3(\text{Cl}, \text{F}, \text{Br}, \text{OH}) : \text{Eu}, \text{Mn}, \text{Sb}$ 等之 Eu 激活鹵磷酸鹽螢光體； $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$ 、 $(\text{Sr}, \text{Ba})_3\text{MgSi}_2\text{O}_8 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活矽酸鹽螢光體； $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活磷酸鹽螢光體； $\text{ZnS} : \text{Ag}$ 、 $\text{ZnS} : \text{Ag}, \text{Al}$ 等之硫化物螢光體； $\text{Y}_2\text{SiO}_5 : \text{Ce}$ 等之 Ce 激活矽酸鹽螢光體； CaWO_4 等之鎢酸鹽螢光體； $(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})\text{BPO}_5 : \text{Eu}, \text{Mn}$ 、 $(\text{Sr}, \text{Ca})_{10}(\text{PO}_4)_6 \cdot n\text{B}_2\text{O}_3 : \text{Eu}$ 、 $2\text{SrO} \cdot 0.84\text{P}_2\text{O}_5 \cdot 0.16\text{B}_2\text{O}_3 : \text{Eu}$ 等之 Eu, Mn 激活硼酸磷酸鹽螢光體； $\text{Sr}_2\text{Si}_3\text{O}_8 \cdot 2\text{SrCl}_2 : \text{Eu}$ 等之 Eu 激活鹵矽酸鹽螢光體。

[0161] 作為其他藍色螢光體，蔡二甲酸鹽亞胺系化合物、苯并噁唑系化合物、苯乙烯基系化合物、香豆素系化合物、吡啶系化合物、三唑系化合物等之螢光色素；銻錯合物等之有機螢光體等。

[0162]

《量子點》

作為量子點，例如可舉出 InAs 系之量子點、CdE (E =

S,Se,Te)系之量子點($\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}/\text{ZnS}$ 等)。

[0163] 在本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物中，波長轉換材料的含量，相對於含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之全部成分的合計含量而言，可為40質量%以上。波長轉換材料的含量上限值，例如相對於含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之全部成分的合計含量而言，為95質量%。

[0164] 本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物，因為是在25℃中黏度為1000~500000mPa·s之液狀組成物，故塗佈性良好。因此，本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物，例如易於藉由施用器、狹縫模塗機、網板印刷來塗佈在基板上。

[0165] 本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物之硬化物，例如適用於半導體雷射用含有波長轉換材料之薄片的形成材料、LED用含有波長轉換材料之薄片的形成材料的用途。

[0166]

<含有波長轉換材料之薄片>

本實施形態之含有波長轉換材料的薄片(以下有時稱為「波長轉換薄片」)，係將本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物之硬化物作為形成材料。

[0167] 本實施形態之波長轉換薄片，可適用於LED、太陽電池、半導體雷射、光電二極體、CCD、CMOS等中的波長轉換薄片的用途。特別是，因為本實施形態之波長

轉換薄片耐熱性優異，故可適合用於要求耐熱性的半導體雷射之發光部用的波長轉換薄片。

[0168] 本實施形態之波長轉換薄片亦可含有上述之無機粒子。本實施形態之波長轉換薄片藉由含有無機粒子，可使光在波長轉換薄片中的散射並有效地激發波長轉換材料。又，在本實施形態之波長轉換薄片的製造階段中，可抑制在聚矽氧樹脂組成物中的波長轉換材料沉降。

[0169]

(膜厚)

本實施形態之波長轉換薄片的厚度(膜厚)，為了能安定地製造波長轉換薄片，以 $10\mu\text{m}$ 以上較佳。又，本實施形態之波長轉換薄片的厚度，從提高波長轉換薄片之光學特性或耐熱性的觀點來看，以 1mm 以下較佳， $500\mu\text{m}$ 以下更佳， $200\mu\text{m}$ 以下再更佳。藉由波長轉換薄片的厚度為 1mm 以下，可減低聚矽氧樹脂所致之光吸收或光散射。

[0170] 本實施形態之波長轉換薄片的膜厚，例如可使用測微器對波長轉換薄片之複數位置的膜厚進行測定，並透過算其此平均值來求得。所謂之複數位置，例如可舉出在波長轉換薄片的形狀為四角形時，波長轉換薄片之中心部的1個位置與波長轉換薄片之四角的4個位置之合計5個位置等。

[0171] 波長轉換薄片亦可形成於支持基材上。作為支持基材，可使用以周知的金屬、薄膜、玻璃、陶瓷、紙等作為形成材料的基材。

[0172] 作為支持基材之形成材料的具體示例，係可舉出石英玻璃、硼矽酸鹽玻璃、藍寶石等之透明的無機氧化物玻璃；鋁(亦包含鋁合金)、鋅、銅、鐵等之金屬板或箔；纖維素乙酸酯、聚對酞酸乙二酯(PET)、聚伸乙基、聚酯、聚醯胺、聚醯亞胺、聚伸苯基硫化物、聚苯乙烯、聚丙烯、聚碳酸酯、聚乙烯基縮醛、聚芳醯胺等之塑膠薄膜；層合有上述塑膠的紙；以上述塑膠塗佈的紙；層合或氣相沉積有上述金屬的紙；層合或氣相沉積有上述金屬的塑膠薄膜。在此等之中，係以無機氧化物玻璃或金屬板較佳。

[0173] 支持基材的厚度係以 $30\mu\text{m}$ 以上較佳，以 $50\mu\text{m}$ 以上更佳。若支持基材的厚度為 $30\mu\text{m}$ 以上，則具有充分的強度來保護波長轉換薄片的形狀。又，支持基材的厚度，從經濟性的觀點來看，以 $5000\mu\text{m}$ 以下較佳， $3000\mu\text{m}$ 以下更佳。

[0174]

(波長轉換薄片的製造方法)

針對本實施形態相關之波長轉換薄片的製造方法進行說明。

[0175] 首先，將波長轉換材料分散於上述之聚矽氧樹脂組成物中，調製含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物。

[0176] 為了波長轉換材料之擴散或含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的塗佈性改善，亦可添加無機粒

子、接著助劑等之添加物。

[0177] 將此等成分調配成規定的組成之後，藉由使用周知的攪拌、捏合機使其均質地混合分散，可獲得含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物。作為周知的攪拌、捏合機，例如可舉出均質機、自轉式攪拌機、三輥研磨機、球磨機、行星球磨機、珠磨機。在混合分散後或混合分散的過程中，視需要亦可在真空或減壓條件下對含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物進行脫氣。

[0178] 接著，將所得之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物塗佈於支持基材上。含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的塗佈，係可使用周知的塗佈裝置來進行。作為周知的塗佈裝置，例如可舉出反向輥塗機、刮刀塗佈機、狹縫模塗機、直接凹版塗佈機、膠印凹版塗佈機、反向輥塗機、刮刀塗佈機、吻式塗佈機、天然輥塗機、氣刀塗佈機、輥刀塗層機、baribar輥刀塗層機、雙流塗佈機、棒式塗佈機、線棒塗佈機、施用器、浸塗機、簾式塗佈機、旋轉塗佈機、刀塗機。在此等之中，從易於使所得之波長轉換薄片的膜厚均一化來看，以狹縫模塗機或施用器塗佈含有波長長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物較佳。

[0179] 作為其他塗佈法，可舉出網板印刷、凹版印刷、平版印刷等之印刷法等。在此等之中，從簡便性的觀點來看，以網板印刷塗佈含有波長長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物較佳。

[0180] 接著，使形成於支持基材上的塗佈膜進行加

熱硬化以獲得波長轉換薄片。塗佈膜的加熱係可使用自然對流式烘箱、送風式烘箱、真空烘箱、惰性烘箱、加熱板、熱壓機、紅外線加熱器等之機器進行。在此等之中，從生產性的觀點來看，以送風式烘箱較佳。

[0181] 作為塗佈膜的加熱條件，例如可舉出於 40°C ~ 250°C ，加熱5分鐘~100小時的方法。加熱時間以1~30小時較佳，2~10小時更佳，3~8時間再更佳。加熱時間若在此範圍內，則可充分地去去除溶劑，並同時防止加熱時的著色。

[0182] 將含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物塗佈於支持基材上之後，係可藉由放置於溫度 250°C 以下的氛圍內使塗佈膜硬化，例如可藉由放置於溫度 40°C ~ 200°C 的氛圍內以使塗佈膜硬化。又，當塗佈膜硬化之際，為了降低含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所存在的溶劑或水，並且抑制聚矽氧樹脂A與聚矽氧寡聚物的縮合反應速度，例如可以於 40°C ~ 60°C 進行5分鐘~30分鐘，接著於 60°C ~ 100°C 進行10分鐘~60分鐘，接著於 140°C ~ 200°C 進行30分鐘~5小時的方式，使塗佈膜階段性地硬化。

[0183] 如此所得之波長轉換薄片耐熱性優異。又，因為本實施形態之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物塗佈性優異，故在所得之波長轉換薄片上的缺損少，量產性優異。

[0184]
(發光裝置)

圖1係表示具備本實施形態之波長轉換薄片的發光裝置之構造之剖面圖。

發光裝置1000具有基板110、半導體雷射元件(光源)120、導光部130、波長轉換薄片140以及反射鏡150。波長轉換薄片140可使用上述之構成者。

[0185] 半導體雷射元件120配置於基板110上。

[0186] 導光部130將由半導體雷射元件120所射出的雷射光La射入至內部，並在內部將雷射光La進行導光。導光部130的一端光學性連接半導體雷射元件120，另一端光學性連接波長轉換薄片140。導光部130呈現寬度自一端側向另一端側遞減的錘狀，且形成由半導體雷射元件120所射出的雷射光La集束在波長轉換薄片140上的構成。

[0187] 反射鏡150係配置於波長轉換薄片140周圍的碗狀構件，且將面向波長轉換薄片140的曲面作為光反射面。反射鏡150係將從波長轉換薄片140射出的光偏向至裝置前方(雷射光La的照射方向)。

[0188] 照射於波長轉換薄片140的雷射光La，藉由含有波長轉換薄片140之波長轉換材料而變換為白色光Lb，並從發光裝置1000輸出。

[0189] 發光裝置1000雖具有1個半導體雷射元件120，亦可具有2個以上。

[0190] 圖2表示發光裝置之變形例的剖面圖。在圖2及以下說明中，關於與圖1中說明之構成相同的構成，附加了與圖1共通的符號。

[0191] 發光裝置1100具有複數之基板110、複數之半導體雷射元件(光源)120、複數之光纖180、導光部130、波長轉換薄片140、反射鏡150以及透明支撐體190。

[0192] 光纖180將由半導體雷射元件120所射出的雷射光La射入至內部，並在內部將雷射光La進行導光。在複數之光纖180的一端各別光學性連接半導體雷射元件120。又，複數之光纖180集束於另一端側，並以整理成一束的狀態於另一端光學性連接導光部130。

[0193] 導光部130將由半導體雷射元件120所射出的雷射光La射入至內部，並在內部將雷射光La進行導光之後，朝向裝置前方射出。導光部130亦可具有將射出至裝置前方之雷射光La集光的機能。

[0194] 波長轉換薄片140在被透明支撐體190支撐的狀態下，與導光部130分隔並與導光部130相向配置。透明支撐體190以覆蓋著反射鏡150之開口部之方式設置於裝置前方。透明支撐體190係以不會因裝置使用中時產生的熱而劣化的透明材料作為形成材料的構件，例如可使用玻璃板。

[0195] 照射於波長轉換薄片140的雷射光La，藉由含有波長轉換薄片140之波長轉換材料而變換為白色光Lb，並從發光裝置1100輸出。

[0196] 在發光裝置1000、1100中，如上述光源(半導體雷射元件120)及發光部(波長轉換薄片140)被分離。依此，發光裝置的小型化或提升設計性變得容易。

[實施例]

[0197] 以下雖以實施例具體說明本發明，但本發明不限定於以下實施例。

[0198]

<評估方法>

[黏度的測定]

聚矽氧樹脂組成物的黏度，係使用E型黏度計進行測定。

[0199] 首先，將循環式恆溫裝置連接於E型黏度計（型式「LVDV-II+pro CP」或「HBDV-II+Pro」或「DV2TLVCJ0」BROOKFIELD公司）的杯子，並將水溫調整至 $25.0\pm0.5^{\circ}\text{C}$ 。

[0200] 接著，使用移液器量測汲取約0.6mL的聚矽氧樹脂組成物（試料），並加至E型黏度計的杯子中。作為錐體使用「SPINDLE CPE-40」（剪切速率7.50N、錐體角度 0.8° 、錐體半徑24mm）或「SPINDLE CPE-52」（剪切速率2.00N、錐體角度 3° 、錐體半徑12mm）。

[0201] 接著，使E型黏度計的轉子旋轉，並以1.5rpm保持聚矽氧樹脂組成物5分鐘之後，讀取聚矽氧樹脂組成物的測定值作為黏度。

[0202]

[耐熱性的評估]

將聚矽氧樹脂組成物的硬化物（直徑4cm、厚度0.5mm

的圓板狀)在 250°C 的烘箱中加熱100小時。對於加熱前後的聚矽氧樹脂組成物之硬化物，評估在波長 400nm 中的透光率及外觀(皺褶、龜裂的有無)。

[0203]

[塗佈性的評估]

將含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物於鋁基板上進行網板印刷。作為網板印刷機，使用型式「LS-150」(NEWLONG精密工業公司製)；作為印網掩模，使用型式「ST250-30-C57」(框架尺寸： 320mm 正方型，印網種類：不鏽鋼)。印網厚為 $56\mu\text{m}$ ，乳劑厚為 $5\mu\text{m}$ ，總膜厚為 $61\mu\text{m}$ 。又，刮刀角度(水平面與刮刀的夾角角度)為 70° 。接著，藉由以下基準，評估硬化前之塗佈膜的外觀。

[0204]

(評估基準)

A...未確認到有缺損。

B...在印刷區域的角落確認到有缺損。

C...在印刷區域的中央部確認到有缺損。

[0205]

[凝膠滲透層析(GPC)測定]

將試料(聚矽氧樹脂)溶解於溶析液中之後，藉由以孔徑尺寸 $0.45\mu\text{m}$ 的膜濾器進行濾過，並調製測定溶液。對於所得之測定溶液，以下述條件測定標準聚苯乙烯換算之重量平均分子量(M_w)。

裝置名：Tosoh公司製HLC-8220 GPC

管柱：TSKgel SuperHM-H×2+SuperH2500×1(內徑
6.0mm×150mm×3支)

溶析液：甲苯

流量：0.6mL/分

檢測器：RI檢測器(極性：-)

管柱溫度：40℃

注入量：40μL

分子量標準：標準聚苯乙烯

[0206]

[透光率的評估]

製作厚度500μm之聚矽氧樹脂組成物的硬化物。對於所得之硬化物，以下述條件測定對於波長400nm之光線的透過率。

裝置名：JASCO V-670 紫外可見近紅外分光光度計

積分球單元(ISN-723/B004861118)

掃描速度：1000nm/分

測定波長：200~800nm

數據採集間隔：1.0nm

[0207]

[溶液NMR測定]

將以下實施例中所使用之有機聚矽氧烷作為主鏈的聚矽氧樹脂及寡聚物成分的構造單位之豐度比，係基於以下述條件所測定之¹H-NMR法、²⁹Si-NMR法的任一測定結果所算出之值。

[0208]

<¹H-NMR測定條件>

裝置名	: JEOL RESONANCE公司製 ECA-500
觀測核	: ¹ H
觀測頻率	: 500.16MHz
測定溫度	: 室溫
測定溶劑	: DMSO-d ₆
脈衝寬度	: 6.60μsec(45°)
脈衝重複時間	: 7.0秒
累積次數	: 16次
試料濃度(試料/測定溶劑)	: 300mg/0.6mL

[0209]

<²⁹Si-NMR測定條件>

裝置名	: Agilent公司製 400-MR
觀測核	: ²⁹ Si
觀測頻率	: 79.42MHz
測定溫度	: 室溫
測定溶劑	: CDCl ₃
脈衝寬度	: 8.40μsec(45°)
脈衝重複時間	: 15.0秒
累積次數	: 4000次
試料濃度(試料/測定溶劑)	: 300mg/0.6mL

[0210]

<聚矽氧樹脂組成物的製造>

[實施例 1]

作為聚矽氧樹脂，係使用樹脂 1(聚苯乙烯換算之重量平均分子量：3500)。將樹脂 1 中所含之構造單位表示於下述表 1 中。

[0211]

[表 1]

樹脂1			
構造單位	$\left(\begin{array}{c} \text{OCH}_2\text{CH}_3 \\ \\ \text{---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$	$\left(\begin{array}{c} \text{OH} \\ \\ \text{---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$	$\left(\begin{array}{c} \text{Si} \\ \\ \text{O} \\ \\ \text{---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$
豐度比	0.03	0.23	0.74

[0212] 作為寡聚物成分，係使用樹脂 2(聚苯乙烯換算之重量平均分子量：<1000)及樹脂 3(聚苯乙烯換算之重量平均分子：量 3400)。

[0213] 樹脂 2 中所含的構造單位表示於下述表 2 中。

[0214]

[表 2]

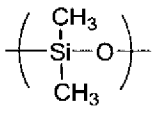
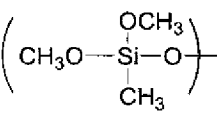
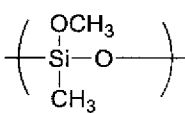
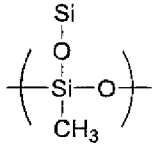
樹脂2			
構造單位	$\left(\begin{array}{c} \text{OCH}_3 \\ \\ \text{CH}_3\text{O---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$	$\left(\begin{array}{c} \text{OH} \\ \\ \text{---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$	$\left(\begin{array}{c} \text{Si} \\ \\ \text{O} \\ \\ \text{---Si---O---} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)$
豐度比	0.39	0.49	0.12

[0215] 樹脂 3 含有 95 質量 % 以上之由下述表 3 所示之構造單位所構成的樹脂。又，樹脂 3，其存在於聚苯乙烯換

算之重量平均分子量7500以上區域之波峰面積的總和，相對於全波峰面積的總和而言，為20%以上的大小，且存在於聚苯乙烯換算之重量平均分子量1000以下區域之波峰面積的總和，相對於全波峰面積的總和而言，為30%以上。

[0216]

[表 3]
樹脂3

構造單位				
豐度比	0.20	0.10	0.45	0.25

[0217] 在油浴內設置的燒瓶內，加入樹脂1：789.60g、乙酸丙酯：96.00g、異丙醇：314.40g，藉由在80℃下攪拌，使樹脂1溶解於溶劑中。

在所得之溶液中，加入樹脂2：8.47g、樹脂3：75.08g，藉由攪拌1小時，使樹脂2及樹脂3溶解於溶劑中。

在所得之溶液中，加入乙酸2-丁氧基乙酯：274.49g、3-環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷：0.22g。

[0218] 將所得之混合物放置於蒸發器中，並定為該混合物的溫度為85℃、蒸發器的減壓度為2.0kPa的條件後，將乙酸丙酯及異丙醇餾去直至該混合物中的乙酸丙酯及異丙醇之合計濃度成為1質量%以下為止。之後，於其中加入乙酸2-丁氧基乙酯：27.76g，藉由均勻地攪拌，得到實施例1之聚矽氧樹脂組成物。

[0219]

[實施例 2]

在實施例 1 中，除了替換乙酸 2-丁氧基乙酯：27.76g，改使用二丙二醇單甲醚：32.06g 以外，與實施例 1 相同，得到實施例 2 之聚矽氧樹脂組成物。

[0220]

[比較例 1]

將 2 液型的熱硬化性加成反應型聚矽氧樹脂之光學裝置用透明封裝樹脂(型式「SCR-1016(A/B)」，信越聚矽氧公司製)的 A 液及 B 液以 50：50(質量比)進行混合，得到比較例 1 之聚矽氧樹脂組成物。比較例 1 之聚矽氧樹脂組成物，係不含有 T 體的聚矽氧樹脂組成物。

[0221]

<評估>

測定實施例 1、實施例 2 及比較例 1 之聚矽氧樹脂組成物的黏度。結果表示於表 4。

[0222] 表 4 中的黏度，係作為 E 型黏度計使用「LVDV-II+Pro」，作為錐體使用「SPINDLE CPE-52」(剪切速率 2.00N、錐體角度 3°、錐體半徑 12mm)所測定的值。

[0223] 相對於實施例 1 及實施例 2 的聚矽氧樹脂組成物 100 重量份而言，加入 2 重量份的硬化促進劑之後進行攪拌。作為硬化促進劑，使用含有 15 質量 % 之磷酸的硬化觸媒溶液。

接著，將所得之聚矽氧樹脂組成物在150℃、5小時的加熱條件下，使其硬化成直徑4cm、厚度0.5mm的圓板狀。藉由上述之耐熱性評估方法，對所得之硬化物的耐熱性進行評估。結果表示於表4。

[0224] 將比較例1之聚矽氧樹脂組成物在150℃、5小時的加熱條件下，使其硬化成直徑4cm、厚度0.5mm的圓板狀。藉由上述之耐熱性評估方法，對所得之硬化物的耐熱性進行評估。結果表示於表4。

[0225] 表4中，透光率表示耐熱試驗後之硬化物透光率相對於耐熱試驗前之硬化物透光率100%的比例(%)。

實施例1及2之聚矽氧樹脂組成物的硬化物，即使在250℃、1000小時的耐熱試驗後，透光率亦為100%，在外觀上，未確認到皺褶、龜裂的發生。

[0226]

[表4]

聚矽氧 樹脂組成物	黏度 (mPa・s)	耐熱性評估結果	
		透光率 (%)	外觀
實施例1	830	100	未確認到皺褶、龜裂的發生。
實施例2	2800	100	未確認到皺褶、龜裂的發生。
比較例1	270	0	顏色變色為黑色，並發生龜裂。

[0227]

[比較例2]

藉由相對於10g的實施例1中所得之聚矽氧樹脂組成物進一步添加3.7g的乙酸2-丁氧基乙酯，得到比較例2之聚矽氧樹脂組成物。比較例2之聚矽氧樹脂組成物的黏度為

32mPa · s。此外，黏度，作為E型黏度計使用「DV2TLVCJ0」，作為錐體使用「SPINDLE CPE-40」(剪切速率 7.50N、錐體角度 0.8°、錐體半徑 24mm)。

[0228] 相對於比較例2之聚矽氧樹脂組成物100重量份而言，加入2重量份之硬化促進劑後進行攪拌。作為硬化促進劑，使用含有15質量%之磷酸的硬化觸媒溶液。

接著，將所得之聚矽氧樹脂組成物在150℃、5小時的加熱條件下，使其硬化成直徑4cm、厚度0.5mm的圓板狀。由於所得之硬化物中已產生皺摺，故無法施行其他的評估。

[0229]

[比較例3]

在實施例1中，除了替換乙酸2-丁氧基乙酯：27.76g，改使用乙酸2-丁氧基乙酯：97.09g以外，與實施例1相同，得到聚矽氧樹脂組成物。藉由將所得之聚矽氧樹脂組成物30g於40℃加熱240小時，得到比較例3之聚矽氧樹脂組成物。比較例3之聚矽氧樹脂組成物的黏度為66000mPa · s。此外，黏度，作為E型黏度計使用「DV2TLVCJ0」，作為錐體使用「SPINDLE CPE-52」(剪切速率 2.00N、錐體角度 3°、錐體半徑 12mm)。

[0230] 對於比較例3之聚矽氧樹脂組成物100重量份而言，加入2重量份之硬化促進劑後進行攪拌。作為硬化促進劑，使用含有15質量%之磷酸的硬化觸媒溶液。

接著，將所得之聚矽氧樹脂組成物在150℃、5小時的

加熱條件下，使其硬化成直徑4cm、厚度0.5mm的圓板狀。由於所得之硬化物中已產生氣泡，故無法施行其他的評估。

[0231]

<含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的製造>

[實施例3~5]

在實施例1之聚矽氧樹脂組成物中，以下述表5所示之含量加入波長轉換材料後，藉由充分地攪拌混合，獲得實施例3~5之含有波長轉換材料的聚矽氧樹脂組成物(墨水)。作為波長轉換材料，使用 $Y_3Al_5O_{12} : Ce$ (型式「C2P」，平均粒徑 $13.6\mu m$ ，東京化學研究所公司製)。此外，表5中的波長轉換材料之含量，係相對於含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含的全部成分之合計含量的質量%。

[0232]

[表5]

含有波長轉換材料之 聚矽氧樹脂組成物	聚矽氧 樹脂組成物	波長轉換材料含量 (質量%)
實施例3	實施例1	40
實施例4	實施例1	50
實施例5	實施例1	65

[0233]

(含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物)

測定實施例3、實施例4及實施例5之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的黏度。結果表示於表6。

[0234] 表 6 中的黏度，係作為 E 型黏度計使用「HBDV-II+Pro」，作為錐體使用「SPINDLE CPE-40」(剪切速率 7.50N、錐體角度 0.8°、錐體半徑 24mm)所測定的值。

[0235] 實施例 3、實施例 4 及實施例 5 之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的塗佈性，係藉由上述之塗佈性的評估方法進行評估。結果表示於表 6。

[0236]

[表 6]

含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物	黏度 (mPa・s)	塗佈性 評估結果
實施例3	5300	A
實施例4	12700	A
實施例5	69000	A

[0237] 從以上之結果來看，確認了實施例之聚矽氧樹脂組成物及含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物耐熱性優異。

[產業上之可利用性]

[0238] 依據本發明，可提供具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物耐熱性優異的聚矽氧樹脂組成物。

【符號說明】

[0239]

110：基板

120：半導體雷射元件(光源)

130：導光部

140：波長轉換薄片

150：反射鏡

La：雷射光

Lb：白色光

180：光纖

190：透明支撐體

1000、1100：發光裝置

201825598

【發明摘要】

【中文發明名稱】

聚矽氧樹脂組成物、含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物及含有波長轉換材料之薄片

【中文】

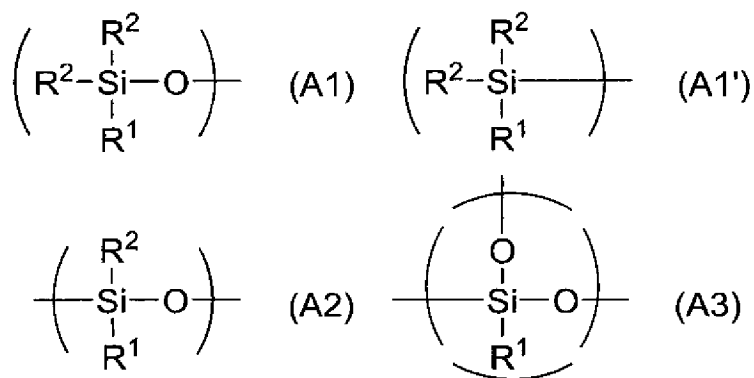
提供一種具有良好的塗佈性，且硬化後之硬化物耐熱性優異的聚矽氧樹脂組成物

該聚矽氧樹脂組成物係含有聚矽氧樹脂及溶劑的聚矽氧樹脂組成物，

前述聚矽氧樹脂組成物係在 25℃ 中，黏度為 100~50000mPa·s 的液狀組成物，

前述聚矽氧樹脂含有下述式(A3)所示之構造單位，

前述聚矽氧樹脂中所含的下述式(A1)所示之構造單位、下述式(A1')所示之構造單位、下述式(A2)所示之構造單位及下述式(A3)所示之構造單位的合計含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全部構造單位的合計含量而言，為 80 莫耳 % 以上，



[式中，R¹表示烷基或芳基；R²表示烷氧基或羥基]。

【指定代表圖】無

【代表圖之符號簡單說明】無

【特徵化學式】無

【發明申請專利範圍】

【第1項】

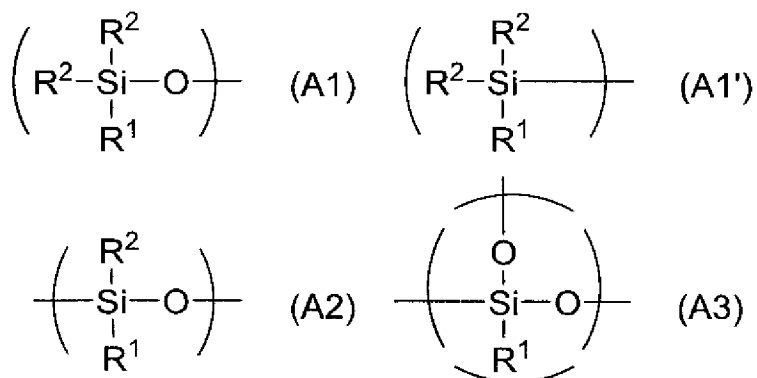
一種聚矽氧樹脂組成物，其係含有聚矽氧樹脂及溶劑之聚矽氧樹脂組成物，

前述聚矽氧樹脂組成物係在 25℃ 中，黏度為 100~50000mPa·s 的液狀組成物，

前述聚矽氧樹脂含有下述式(A3)所示之構造單位，

前述聚矽氧樹脂中所含之下述式(A1)所示之構造單位、下述式(A1')所示之構造單位、下述式(A2)所示之構造單位及下述式(A3)所示之構造單位的合計含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量而言，為 80 莫耳 % 以上，

【化 1】



[式(A1)、式(A1')、式(A2)及式(A3)中，

R¹表示碳數 1~10 之烷基或碳數 6~10 之芳基；

R²表示碳數 1~4 之烷氧基或羥基；

複數之 R¹及 R²分別可相同亦可不同]。

【第2項】

如請求項 1 之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂

脂中所含之前述式(A3)所示之構造單位的含量，相對於前述聚矽氧樹脂中所含之全構造單位的合計含量而言，為55莫耳%以上。

【第3項】

如請求項1或2之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂組成物中所含之前述溶劑的含量，相對於前述聚矽氧樹脂組成物中所含之全成分的合計含量而言，為10~40質量%。

【第4項】

如請求項1~3中任一項之聚矽氧樹脂組成物，前述聚矽氧樹脂，實質上由縮合型聚矽氧樹脂所構成。

【第5項】

如請求項1~4中任一項之聚矽氧樹脂組成物，其中前述 R^1 為甲基，前述 R^2 為碳數1~3之烷氧基或羥基。

【第6項】

如請求項1~5中任一項之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂之聚苯乙烯換算的重量平均分子量為1500~15000。

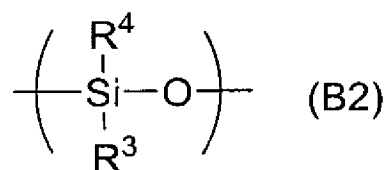
【第7項】

如請求項1~6中任一項之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂含有第1寡聚物，

且前述第1寡聚物含有下述式(B2)所示之構造單位，

前述第1寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量為1000~10000，

【化2】



[式(B2)中，

R³表示碳數1~10之烷基或碳數6~10之芳基；

R⁴表示碳數1~10之烷基、碳數6~10之芳基、碳數1~4之烷氧基或羥基]。

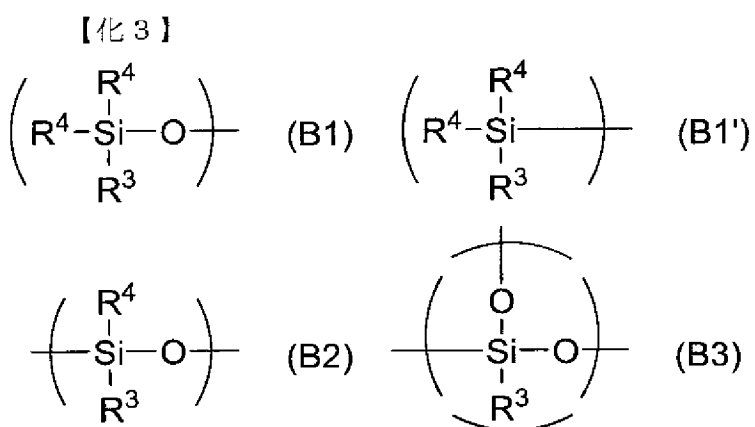
【第8項】

如請求項7之聚矽氧樹脂組成物，其中前述第1寡聚物中所含之前述式(B2)所示之構造單位中，前述R⁴為碳數1~4之烷氧基或羥基的構造單位之含量，相對於前述第1寡聚物中所含之全構造單位的合計含量而言，為30~60莫耳%。

【第9項】

如請求項7或8之聚矽氧樹脂組成物，其中前述第1寡聚物含有下述式(B1)、下述式(B1')、下述式(B2)或下述式(B3)所示之構造單位，

前述第1寡聚物之平均組成式為下述式(I)所示，



[式 (B1)、式 (B1')、式 (B2) 及 式 (B3) 中，
R³ 表示 碳 數 1~10 之 烷 基 或 碳 數 6~10 之 芳 基；
R⁴ 表示 碳 數 1~10 之 烷 基、碳 數 6~10 之 芳 基、碳 數 1~4 之 烷 氧 基 或 羥 基；
複 數 之 R³ 及 R⁴ 分 別 可 相 同 亦 可 不 同]，

$$(R^5)_n Si (OR^6)_m O_{(4-n-m)/2} \cdots (I)$$

[式 中，
R⁵ 表示 碳 數 1~10 之 烷 基 或 碳 數 6~10 之 芳 基；
R⁶ 表示 碳 數 1~10 之 烷 基、碳 數 6~10 之 芳 基 或 氫 原 子；
n 表 示 滿 足 1<n<2 的 實 數；m 表 示 滿 足 0<m<1 的 實 數]。

【 第 10 項 】

如 請 求 項 7~9 中 任 一 項 之 聚 矽 氧 樹 脂 組 成 物，其 中 前 述 第 1 寡 聚 物 中 所 含 之 下 述 T 體 及 D 體 的 莫 耳 比 為 60：40~90：10，
(此 處，
T 體 指 含 有 與 3 個 氧 原 子 鍵 結 之 矽 原 子 的 構 造 單 位；
D 體 指 含 有 與 2 個 氧 原 子 鍵 結 之 矽 原 子 的 構 造 單 位)。

【 第 11 項 】

如請求項1~10中任一項之聚矽氧樹脂組成物，其中前述聚矽氧樹脂含有第2寡聚物，

且前述第2寡聚物含有前述式(A1)、前述式(A1')、前述式(A2)或前述式(A3)所示之構造單位，

前述第2寡聚物中所含之前述式(A3)所示之構造單位的含量，相對於前述式(A1)所示之構造單位、前述式(A1')所示之構造單位、前述式(A2)所示之構造單位及前述式(A3)所示之構造單位的合計含量而言，為0~30莫耳%，

前述第2寡聚物之聚苯乙烯換算的重量平均分子量未滿1500。

【第12項】

一種含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其含有如請求項1~11中任一項之聚矽氧樹脂組成物與波長轉換材料。

【第13項】

如請求項12之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其係在25℃中，黏度為1000~500000mPa·s之液狀組成物。

【第14項】

如請求項12或13之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物，其中前述波長轉換材料的含量，相對於前述含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物中所含之全成分的合計含量而言，為40質量%以上。

【第15項】

一種含有波長轉換材料之薄片，其係以如請求項12~14中任一項之含有波長轉換材料之聚矽氧樹脂組成物的硬化物作為形成材料。

