

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015年5月14日(14.05.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/068652 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 33/50 (2010.01) *B32B 27/40* (2006.01)
B32B 27/18 (2006.01) *H01L 33/52* (2010.01)
B32B 27/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/079062
- (22) 国際出願日: 2014年10月31日(31.10.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-230878 2013年11月7日(07.11.2013) JP
- (71) 出願人: 東レ株式会社(TORAY INDUSTRIES, INC.)
[JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 川本一成(KAWAMOTO, Kazunari); 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 山本哲也(YAMAMOTO, Tetsuya); 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 大関岳成(OHZEKI, Takeshige); 〒5202141 滋賀県大津市大江1丁目1番1号 東レ株式会社 瀬田工場内 Shiga (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

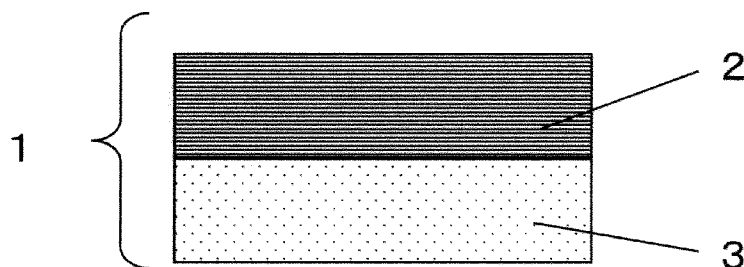
添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: LAMINATED ARTICLE AND METHOD FOR MANUFACTURING LIGHT-EMITTING DEVICE USING SAME

(54) 発明の名称: 積層体およびそれを用いた発光装置の製造方法

【図1】



(57) Abstract: [Problem] The purpose of the present invention is to provide a laminated article obtained by forming a phosphor sheet at a uniform thickness along the upper surface and side surfaces of an LED chip. Another purpose is to provide a method for manufacturing a light-emitting device by covering the upper surface and side surfaces of the LED chip with the phosphor sheet by a highly productive method using this laminated article. [Solution] The laminated article includes a support substrate and a phosphor sheet containing a phosphor and a resin, wherein the support substrate has a rupture elongation, determined by a tensile test, of 200% or greater at 23°C, the Young's modulus of the support substrate at 23°C being 600MPa or less.

(57) 要約: 【課題】LEDチップの上面および側面に追従性よく均一膜厚で蛍光体シートを形成する積層体を提供することを目的とする。またこの積層体を用いて生産性の高い方法によりLEDチップの上面および側面を蛍光体シートで被覆する発光装置の製造方法を提供することを目的とする。【解決手段】支持基材と、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シートを含む積層体であって、引っ張り試験により求められる前記支持基材の23°Cにおける破断伸度が200%以上であり、かつ前記支持基材の23°Cにおけるヤング率が600MPa以下である積層体。



WO 2015/068652 A1

明 細 書

発明の名称： 積層体およびそれを用いた発光装置の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シートを含む積層体に関する。より詳しくは、ＬＥＤチップの上面および側面からの発光波長を変換するための蛍光体シートを含む積層体に関する。

背景技術

[0002] 発光ダイオード（ＬＥＤ、Light Emitting Diode）は、その発光効率の目覚ましい向上を背景とし、低い消費電力、高寿命、意匠性などを特長として液晶ディスプレイ（ＬＣＤ）のバックライト向けや、車のヘッドライト等の車載分野ばかりではなく一般照明向けでも急激に市場を拡大しつつある。

[0003] ＬＥＤはその実装型式によって、ラテラル型、バーティカル型およびフリップチップ型に分類されるが、輝度を高くできることと放熱性に優れることからフリップチップ型ＬＥＤが注目されている。しかしながら、フリップチップ型ＬＥＤにおいて従来のディスペンス方式による封止では、チップの上面と側面との間で蛍光体層の厚みを揃えることが不可能であり、発光色の方位ムラが生じるという課題があった。

[0004] この課題に対し、蛍光体を含有するシートである蛍光体シートをチップ周囲に追従性よく均一に貼り付ける技術が提案されている（例えば、特許文献１～２参照）。特許文献１はＬＥＤチップより一回り大きい凹部が形成された加圧部材を用いてＬＥＤチップの側面に蛍光体シートを貼り付ける方法である。また特許文献２は、支持基材と蛍光体シートを含む積層体をＬＥＤチップに載せ、これを真空状態でダイアフラム膜により加圧する１段階目の貼り付け工程を行い、その後に支持基材を除き、さらに非接触加圧による２段階目の貼り付け工程を経てＬＥＤチップ側面に蛍光体シートを貼り付ける方法である。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2011-138831号公報

特許文献2：国際公開第2012/023119号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献1の方法はLEDの種類が変わる度に加圧部材である金型を作り変える必要があるため経済性が悪い。また加圧部材を蛍光体シートに接触させて押圧するので、シートの損傷や加圧部材の汚染が発生し生産性に劣る、などの課題がある。

[0007] また特許文献2の方法は、一段階目のダイアフラム加圧工程のみでは支持基材の柔軟性不足により蛍光体シートがチップ側面に追従できないため、一度大気圧に戻して支持基材を除いた後に二段階目の非接触加圧工程を行っており、生産性の観点で課題がある。

[0008] 本発明はLEDチップの上面および側面に追従性よく均一な膜厚で蛍光体シートを形成する積層体を提供することを目的とする。またこの積層体を用いて生産性の高い方法によりLEDチップの上面および側面を蛍光体シートで被覆する発光装置の製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明は、以下のとおりである。

[1] 支持基材と、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シートを含む積層体であって、引っ張り試験により求められる前記支持基材の23℃における破断伸度が200%以上であり、かつ前記支持基材の23℃におけるヤング率が600MPa以下である、積層体。

[2] 前記支持基材の23℃におけるヤング率が400MPa以下である
[1]に記載の積層体。

[3] 前記支持基材の23℃におけるヤング率が100MPa以下である
[1]に記載の積層体。

〔４〕 前記支持基材がポリ塩化ビニルまたはポリウレタンである〔１〕から〔３〕のいずれかに記載の積層体。

〔５〕 基板上に接合したＬＥＤチップの発光面を〔１〕から〔４〕のいずれかに記載の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する発光装置の製造方法。

〔６〕 基板上に接合したＬＥＤチップの上面および側面を〔１〕から〔４〕のいずれかに記載の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する発光装置の製造方法。

〔７〕 〔５〕または〔６〕に記載の発光装置の製造方法であって、前記ＬＥＤチップと前記蛍光体シートがＬＥＤチップの上面で接している部分におけるＬＥＤチップ上面から蛍光体シート外面までの距離 a [μm]と、前記ＬＥＤチップと前記蛍光体シートがＬＥＤチップの側面で接している部分におけるＬＥＤチップ側面から蛍光体シート外面までの距離 b [μm]が、

$$1.00 < a/b < 1.20$$

の関係を満たす、発光装置の製造方法。

〔８〕 〔５〕または〔６〕に記載の発光装置の製造方法であって、〔１〕から〔４〕のいずれかに記載の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（前記被覆工程）において、前記ＬＥＤチップと前記蛍光体シートがＬＥＤチップの上面で接している部分におけるＬＥＤチップ上面から蛍光体シート外面までの距離 a [μm]と、前記ＬＥＤチップと前記蛍光体シートがＬＥＤチップの側面で接している部分におけるＬＥＤチップ側面から蛍光体シート外面までの距離 b [μm]が、

$$1.00 < a/b < 1.20$$

の関係を満たす、発光装置の製造方法。

発明の効果

〔００１０〕 本発明によれば、追従性よくＬＥＤチップ上部発光面および側部発光面に蛍光体シートを貼り付けることができる。またこれにより、発光色の方位ム

うがない発光装置を提供できる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]本発明の積層体の模式図

[図2]本発明の積層体であって、粘着剤を有する積層体の模式図

[図3]本発明の積層体を用いた発光装置の製造方法の一例

[図4]蛍光体シートで被覆した発光装置の断面模式図および上面図

発明を実施するための形態

[0012] 図1に本発明の積層体について示す。本発明の積層体1は、支持基材2と、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シート3を含み、23℃において、前記支持基材の引っ張り試験における破断伸度が200%以上であり、かつヤング率が600MPa以下である。

[0013] つまり、本発明の積層体とは、支持基材と、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シートを含む積層体であって、引っ張り試験により求められる前記支持基材の23℃における破断伸度が200%以上であり、かつ前記支持基材の23℃におけるヤング率が600MPa以下である、積層体である。

[0014] <蛍光体シート>

蛍光体シートは、主として樹脂と蛍光体を含むものであれば、特に限定されることなく様々なものを使用することが可能である。必要に応じその他の成分を含んでいてもよい。

[0015] (蛍光体シートの物性)

蛍光体シートは保管性、運搬性および加工性の観点から、室温付近で弾性が高いことが好ましい。一方で、LEDチップに追従するように変形しかつ接着させる観点から、一定の条件下で弾性が低くなり、柔軟性および接着性(粘着性)を発現することが好ましい。これらの観点より本蛍光体シートは60℃以上の加熱により柔軟化し接着性を発現することが好ましい。

[0016] このような蛍光体シートの貯蔵弾性率は、25℃で0.1MPa以上、100℃で0.1MPa未満であることが好ましく、25℃で0.5MPa以上、100℃で0.05MPa未満であることがより好ましい。

[0017] ここで言う貯蔵弾性率とは、動的粘弾性測定を行った場合の貯蔵弾性率である。動的粘弾性とは、材料にある正弦周波数で剪断歪みを加えたときに、定常状態に達した場合に現れる剪断応力を、歪みと位相の一致する成分（弾性的成分）と、歪みと位相が 90° 遅れた成分（粘性的成分）とに分解して、材料の動的な力学特性を解析する手法である。ここで剪断歪みに位相が一致する応力成分を剪断歪みで除したものが、貯蔵弾性率 G' であり、各温度における動的な歪みに対する材料の変形、追従を表すものであるので、材料の加工性や接着性に密接に関連している。

[0018] 本発明における蛍光体シートの場合は、 25°C で 0.1 MPa 以上の貯蔵弾性率を有することにより、室温（ 25°C ）での刃体による切断加工など早い剪断応力に対してもシートが周囲の変形無しに切断されるので高い寸法精度での加工性が得られる。室温における貯蔵弾性率の上限は本発明の目的のためには特に制限されないが、LED素子と貼り合わせた後の応力歪みを低減する必要性を考慮すると 1 GPa 以下であることが望ましい。また、 100°C において貯蔵弾性率が 0.1 MPa 未満であることによって、 $60^\circ\text{C}\sim 150^\circ\text{C}$ での加熱貼り付けを行えばLEDチップ表面の形状に対して素早く変形して追従し、高い接着力が得られるものである。 100°C において 0.1 MPa 未満の貯蔵弾性率が得られる蛍光体シートであれば、室温から温度を上げて行くに従い貯蔵弾性率が低下し、 100°C 未満でも貼り付け性は温度上昇と共に良好となるが、実用的な接着性を得るためには 60°C 以上が好適である。またこのような蛍光体シートは 100°C を超えて加熱することでさらに貯蔵弾性率の低下が進み、貼り付け性が良好になるが、 150°C を超える温度では応力緩和が不十分なうちに樹脂の硬化が急速に進み、クラックや剥離が生じやすくなる。従って好適な加熱貼り付け温度は $60^\circ\text{C}\sim 150^\circ\text{C}$ であり、さらに好ましくは $60^\circ\text{C}\sim 120^\circ\text{C}$ である。 100°C における貯蔵弾性率の下限は本発明の目的のためには特に制限されないが、LED素子上への加熱貼り付け時に流動性が高すぎると、貼り付け前に切断や孔開けで加工した形状が保持できなくなるので、 0.001 MPa 以上であることが

望ましい。

[0019] 蛍光体シートとして上記の貯蔵弾性率が得られるのであれば、そこに含まれる樹脂は未硬化または半硬化状態のものであってもよいが、以下の通りシート取扱性・保存性等を考慮すると、含まれる樹脂は硬化後のものであることが好ましい。樹脂が未硬化、もしくは半硬化状態であると、蛍光体シートの保存中に室温で硬化反応が進み、貯蔵弾性率が適正な範囲から外れる恐れがある。これを防ぐためには樹脂は硬化完了しているかもしくは室温保存で1ヶ月程度の長期間、貯蔵弾性率が変化しない程度に硬化が進行していることが望ましい。

[0020] (樹脂)

本発明の蛍光体シートに含まれる樹脂は、内部に蛍光体を均質に分散せられるものであり、シート形成できるものであれば、いかなる樹脂でも構わない。

[0021] 具体的には、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアリレート樹脂、PET変性ポリアリレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、環状オレフィン、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリメチルメタアクリレート樹脂、ポリプロピレン樹脂、変性アクリル、ポリスチレン樹脂及びアクリルニトリル・スチレン共重合体樹脂等が挙げられる。ここで、PETとはポリエチレンテレフタレートである。本発明においては、透明性の面からシリコーン樹脂やエポキシ樹脂が好ましく用いられる。更に耐熱性の面から、シリコーン樹脂が特に好ましく用いられる。

[0022] 本発明で用いられるシリコーン樹脂としては、硬化型シリコーンゴムが好ましい。一液型、二液型（三液型）のいずれの液構成を使用してもよい。硬化型シリコーンゴムには、空気中の水分あるいは触媒によって縮合反応を起こすタイプとして脱アルコール型、脱オキシム型、脱酢酸型、脱ヒドロキシルアミン型などがある。また、触媒によってヒドロシリル化反応を起こすタイプとして付加反応型がある。これらのいずれのタイプの硬化型シリコーンゴムを使用してもよい。特に、付加反応型のシリコーンゴムは硬化反応に伴

う副成物がなく、硬化収縮が小さい点、加熱により硬化を早めることが容易な点でより好ましい。

[0023] 付加反応型のシリコンゴムは、一例として、ケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物と、ケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物のヒドロシリル化反応により形成される。このような材料としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、プロペニルトリメトキシシラン、ノルボルネニルトリメトキシシラン、オクテニルトリメトキシシラン等のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する化合物と、メチルヒドロジェンポリシロキサン、ジメチルポリシロキサン-C O-メチルヒドロジェンポリシロキサン、エチルヒドロジェンポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン-C O-メチルフェニルポリシロキサン等のケイ素原子に結合した水素原子を有する化合物のヒドロシリル化反応により形成されるものが挙げられる。また、他にも、例えば特開2010-159411号公報に記載されているような公知のものを利用することができる。

[0024] これらの樹脂を適宜設計することで、室温（25℃）での貯蔵弾性率と高温（100℃）での貯蔵弾性率を制御し、本発明の実施に有用な樹脂が得られる。

[0025] また、市販されているものとして、一般的なLED用途のシリコン封止材から適切な貯蔵弾性率を持つものを選択して使用することも可能である。具体例としては、東レ・ダウコーニング社製のOE-6630A/B、OE-6520A/Bなどがある。

[0026] （蛍光体）

蛍光体は、LEDチップから放出される青色光、紫色光、紫外光を吸収して波長を変換し、LEDチップの光と異なる波長の赤、橙色、黄色、緑色、青色領域の波長の光を放出するものである。これにより、LEDチップから放出される光の一部と、蛍光体から放出される光の一部とが混合して、白色を含む多色系のLEDが得られる。具体的には、青色系LEDにLEDから

の光によって黄色系の発光色を発光する蛍光体を光学的に組み合わせることによって、単一のLEDチップを用いて白色系を発光させることができる。

[0027] 上述のような蛍光体には、緑色に発光する蛍光体、青色に発光する蛍光体、黄色に発光する蛍光体、赤色に発光する蛍光体等の種々の蛍光体がある。本発明に用いられる具体的な蛍光体としては、有機蛍光体、無機蛍光体、蛍光顔料、蛍光染料等公知の蛍光体が挙げられる。有機蛍光体としては、アリルスルホアミド・メラミンホルムアルデヒド共縮合染色物やペリレン系蛍光体等を挙げることができ、長期間使用可能な点からペリレン系蛍光体が好ましく用いられる。本発明に特に好ましく用いられる蛍光物質としては、無機蛍光体が挙げられる。以下に本発明に用いられる無機蛍光体について記載する。

[0028] 緑色に発光する蛍光体として、例えば、 $\text{SrAl}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ 、 $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ 、 Tb 、 $\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}:\text{Ce}$ 、 Tb 、 $\text{Sr}_7\text{Al}_{12}\text{O}_{25}:\text{Eu}$ 、(Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba のうち少なくとも1以上) $\text{Ga}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ などがある。

[0029] 青色に発光する蛍光体として、例えば、 $\text{Sr}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}$ 、(SrCaBa) $_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}$ 、(BaCa) $_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}:\text{Eu}$ 、(Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba のうち少なくとも1以上) $_2\text{B}_5\text{O}_9\text{Cl}:\text{Eu}$ 、 Mn 、(Mg 、 Ca 、 Sr 、 Ba のうち少なくとも1以上) $(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}$ 、 Mn などがある。

[0030] 緑色から黄色に発光する蛍光体として、少なくともセリウムで賦活されたイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光体、少なくともセリウムで賦活されたイットリウム・ガドリニウム・アルミニウム酸化物蛍光体、少なくともセリウムで賦活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット酸化物蛍光体、及び、少なくともセリウムで賦活されたイットリウム・ガリウム・アルミニウム酸化物蛍光体などがある（いわゆるYAG系蛍光体）。具体的には、 $\text{Ln}_3\text{M}_5\text{O}_{12}:\text{R}$ (Ln は、 Y 、 Gd 、 La から選ばれる少なくとも1以上である。 M は、 Al 、 Ca の少なくともいずれか一方を含む。 R は、ランタ

ノイド系である。)、 $(Y_{1-x}Ga_x)_3(Al_{1-y}Ga_y)_5O_{12}:R$ (R は、 Ce 、 Tb 、 Pr 、 Sm 、 Eu 、 Dy 、 Ho から選ばれる少なくとも1以上である。 $0 < Rx < 0.5$ 、 $0 < y < 0.5$ である。)を使用することができる。

[0031] 赤色に発光する蛍光体として、例えば、 $Y_2O_2S:Eu$ 、 $La_2O_2S:Eu$ 、 $Y_2O_3:Eu$ 、 $Gd_2O_2S:Eu$ などがある。

[0032] また、現在主流の青色LEDに対応し発光する蛍光体としては、 $Y_3(Al, Ga)_5O_{12}:Ce$ 、 $(Y, Gd)_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $Lu_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ などのYAG系蛍光体、 $Tb_3Al_5O_{12}:Ce$ などのTAG系蛍光体、 $(Ba, Sr)_2SiO_4:Eu$ 系蛍光体や $Ca_3Sc_2Si_3O_{12}:Ce$ 系蛍光体、 $(Sr, Ba, Mg)_2SiO_4:Eu$ などのシリケート系蛍光体、 $(Ca, Sr)_2Si_5N_8:Eu$ 、 $(Ca, Sr)AlSiN_3:Eu$ 、 $CaSiAlN_3:Eu$ 等のナイトライド系蛍光体、 $Cax(Si, Al)_{12}(O, N)_{16}:Eu$ などのオキシナイトライド系蛍光体、さらには $(Ba, Sr, Ca)Si_2O_2N_2:Eu$ 系蛍光体、 $Ca_8MgSi_4O_{16}Cl_2:Eu$ 系蛍光体、 $SrAl_2O_4:Eu$ 、 $Sr_4Al_{14}O_{25}:Eu$ 等の蛍光体が挙げられる。

[0033] これらの中では、YAG系蛍光体、TAG系蛍光体、シリケート系蛍光体が、発光効率や輝度などの点で好ましく用いられる。

[0034] 上記以外にも、用途や目的とする発光色に応じて公知の蛍光体を用いることができる。

[0035] 蛍光体の粒子サイズは、特に制限はないが、 $D50$ が $0.05\mu m$ 以上のものが好ましく、 $3\mu m$ 以上のものがより好ましい。また、 $D50$ が $30\mu m$ 以下のものが好ましい。ここで $D50$ とは、レーザー回折散乱式粒度分布測定法により測定して得られる体積基準粒度分布において、小粒径側からの通過分積算が50%となるときの粒子径のことをいう。 $D50$ が前記範囲であると、蛍光体シート中の蛍光体の分散性が良好で、安定な発光が得られる。

[0036] 本発明では、蛍光体の含有量について特に制限はないが、LEDチップか

らの発光の波長変換効率を高める観点から、蛍光体シート全体の30重量%以上であることが好ましく、40重量%以上であることがより好ましい。蛍光体含有量の上限は特に規定されないが、作業性に優れた蛍光体シートが作成しやすいという観点から、蛍光体シート全体の95重量%以下であることが好ましく、90重量%以下であることがより好ましく、85重量%以下であることがさらに好ましく、80重量%以下であることが特に好ましい。

[0037] 本発明の蛍光体シートは、LEDチップの表面被覆用途に特に好ましく用いられる。その際、蛍光体シート中の蛍光体の含有量が上記範囲であることで、優れた性能を示すLED発光装置を得ることができる。

[0038] (シリコン微粒子)

本発明における蛍光体シートは、蛍光体シート作製用樹脂組成物の流動性を向上させて塗布性を良好にするため、シリコン微粒子を含有していても良い。含有されるシリコン微粒子は、シリコン樹脂およびまたはシリコンゴムからなる微粒子が好ましい。特に、オルガノトリアルコキシシランやオルガノジアルコキシシラン、オルガノトリアセトキシシラン、オルガノジアセトキシシラン、オルガノトリオキシムシラン、オルガノジオキシムシランなどのオルガノシランを加水分解し、次いで縮合させる方法により得られるシリコン微粒子が好ましい。

[0039] オルガノトリアルコキシシランとしては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリーn-プロキシシラン、メチルトリーi-プロキシシラン、メチルトリーn-ブトキシシラン、メチルトリーi-ブトキシシラン、メチルトリーs-ブトキシシラン、メチルトリーt-ブトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、n-プロピルトリメトキシシラン、i-プロピルトリメトキシシラン、n-ブチルトリブトキシシラン、i-ブチルトリブトキシシラン、s-ブチルトリメトキシシラン、t-ブチルトリブトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランなどが例示される。

- [0040] オルガノジアルコキシシランとしては、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシラン、メチルエチルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノイソブチルメチルジメトキシシラン、N-エチルアミノイソブチルメチルジエトキシシラン、(フェニルアミノメチル)メチルジメトキシシラン、ビニルメチルジエトキシシランなどが例示される。
- [0041] オルガノトリアセトキシシランとしては、メチルトリアセトキシシラン、エチルトリアセトキシシラン、ビニルトリアセトキシシランなどが例示される。
- [0042] オルガノジアセトキシシランとしては、ジメチルジアセトキシシラン、メチルエチルジアセトキシシラン、ビニルメチルジアセトキシシラン、ビニルエチルジアセトキシシランなどが例示される。
- [0043] オルガノトリオキシムシランとしては、メチルトリスメチルエチルケトオキシムシラン、ビニルトリスメチルエチルケトオキシムシラン、オルガノジオキシムシランとしては、メチルエチルビスメチルエチルケトオキシムシランなどが例示される。
- [0044] このような粒子は、具体的には、特開昭63-77940号公報で報告されている方法、特開平6-248081号公報で報告されている方法、特開2003-342370号公報で報告されている方法、特開平4-88022号公報で報告されている方法などにより得ることができる。また、オルガノトリアルコキシシランやオルガノジアルコキシシラン、オルガノトリアセトキシシラン、オルガノジアセトキシシラン、オルガノトリオキシムシラン、オルガノジオキシムシランなどのオルガノシランおよび／またはその部分加水分解物をアルカリ水溶液に添加し、加水分解・縮合させ粒子を得る方法や、水あるいは酸性溶液にオルガノシランおよび／またはその部分加水分解物を添加し、該オルガノシランおよび／またはその部分加水分解物の加水分解部分縮合物を得た後、アルカリを添加

し縮合反応を進行させ粒子を得る方法、オルガノシランおよび／またはその加水分解物を上層にし、アルカリまたはアルカリと有機溶媒の混合液を下層にして、これらの界面で該オルガノシランおよび／またはその加水分解物を加水分解・重縮合させて粒子を得る方法なども知られており、これらいずれの方法においても、本発明で用いられる粒子を得ることができる。

[0045] これらの中で、オルガノシランおよび／またはその部分加水分解物を加水分解・縮合させ、球状シリコーン微粒子を製造するにあたり、反応溶液内に水溶性高分子や界面活性剤などの高分子分散剤を添加する方法によりシリコーン微粒子を得ることが好ましい。水溶性高分子は、溶媒中で保護コロイドとして作用するものであれば合成高分子、天然高分子のいずれでも使用できる。具体的にはポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドンなどの水溶性高分子が挙げられる。界面活性剤は分子中に親水性部位と疎水性部位を有することにより保護コロイドとして作用するものであればよい。具体的には、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、ドデシルベンゼンスルホン酸アンモニウム、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸アンモニウム、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸ナトリウムなどの陰イオン性界面活性剤、ラウリルトリメチルアンモニウムクロリド、ステアリルトリメチルアンモニウムクロリドなどの陽イオン活性剤、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンジスチレン化フェニルエーテル、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル、ソルビタンモノアルキレートなどのエーテル系またはエステル系の非イオン性界面活性剤、ポリエーテル変性ポリジメチルシロキサン、ポリエステル変性ポリジメチルシロキサン、アラルキル変性ポリアルキルシロキサンなどのシリコーン系界面活性剤、およびパーフルオロアルキル基含有オリゴマーなどのフッ素系界面活性剤、アクリル系界面活性剤が挙げられる。分散剤の添加方法としては、反応初液に予め添加する方法、オルガノトリアルコキシシランおよび／またはその部分加水分解物と同時に添加する方法、オルガノトリアルコキシシランおよび／またはその部分加水分解物を加水分解部分縮合させた後に添加する方法が例示でき、これらの何れ

の方法を選ぶこともできる。分散剤の添加量は、反応液量 1 重量部に対して $5 \times 10^{-7} \sim 0.1$ 重量部の範囲が好ましい。下限を超えると粒子どうしが凝集して塊状物になりやすい。また上限を超えると粒子中の分散剤残留物が多くなり、着色の原因となる。

[0046] これらのシリコン粒子は、マトリクス成分への分散性や濡れ性などを制御する目的で表面改質剤により粒子表面を修飾していてもよい。表面改質剤としては、物理的吸着により修飾するものでも、化学反応により修飾するものでもよく、具体的にはシランカップリング剤、チオールカップリング剤、チタネートカップリング剤、アルミネートカップリング剤、フッ素系コート剤などが挙げられるが、耐熱性に強く、硬化阻害がないことから、シランカップリング剤による修飾が特に好ましい。

[0047] シリコン微粒子に含まれる有機置換基としては、好ましくはメチル基、フェニル基であり、これら置換基の含有量によりシリコン微粒子の屈折率を調整することができる。LED 発光装置の輝度を低下させないためにバインダー樹脂であるシリコン樹脂を通る光を散乱させずに使用したい場合には、シリコン微粒子の屈折率 d_1 と、当該シリコン微粒子および蛍光体以外の成分による屈折率 d_2 の屈折率差が小さい方が好ましい。シリコン微粒子の屈折率 d_1 と、シリコン微粒子および蛍光体以外の成分による屈折率 d_2 の屈折率の差は、 0.10 未満であることが好ましく、 0.03 以下であることがさらに好ましい。このような範囲に屈折率を制御することにより、シリコン微粒子とシリコン組成物の界面での反射・散乱が低減され、高い透明性、光透過率が得られ、LED 発光装置の輝度を低下させることがない。

[0048] 屈折率の測定は、全反射法としては、Abbe 屈折計、Pulfrich 屈折計、液浸型屈折計、液浸法、最小偏角法などが用いられるが、シリコン組成物の屈折率測定には、Abbe 屈折計、シリコン微粒子の屈折率測定には、液浸法が有用である。

[0049] また、上記屈折率差を制御するための手段としては、シリコン微粒子を

構成する原料の量比を変えることにより調整可能である。すなわち、例えば、原料であるメチルトリアルコキシシランとフェニルトリアルコキシシランの混合比を調整し、メチル基の構成比を多くすることで、1.4に近い低屈折率化することが可能であり、逆に、フェニル基の構成比を多くすることで、比較的高屈折率化することが可能である。

[0050] 本発明において、シリコーン微粒子の平均粒子径は、メジアン径（D50）で表し、この平均粒子径は下限としては0.01 μm 以上であることが好ましく、0.05 μm 以上であることがさらに好ましい。また、上限としては2.0 μm 以下であることが好ましく、1.0 μm 以下であることがさらに好ましい。平均粒子径が0.01 μm 以上であれば粒子径を制御した粒子を製造することが容易であり、また2.0 μm 以下であることで蛍光体シートの光学特性が良好となる。また、平均粒子径が0.01 μm 以上2.0 μm 以下であることで、蛍光体シート製造用樹脂液の流動性向上効果が十分に得られる。また、単分散で真球状の粒子を用いることが好ましい。本発明において、蛍光体シートに含まれるシリコーン微粒子の平均粒子径すなわちメジアン径（D50）および粒度分布は、シート断面のSEM（走査型電子顕微鏡）観察によって測定することができる。SEMによる測定画像を画像処理して粒径分布を求め、そこから得られる粒度分布において、小粒径側からの通過分積算50%の粒子径をメジアン径D50として求める。この場合も蛍光体粒子の場合と同様に、蛍光体シートの断面SEM画像から求めたシリコーン微粒子の平均粒径は真の平均粒子径に比較して理論上は78.5%、実際にはおおよそ70%～85%の値となるが、本発明におけるシリコーン微粒子の平均粒子径は上記の測定方法で求められる値と定義される。

[0051] シリコーン微粒子の含有量としては、シリコーン樹脂100重量部に対して、下限としては1重量部以上であることが好ましく、2重量部以上であることがさらに好ましい。また、上限としては20重量部以下であることが好ましく、10重量部以下であることがさらに好ましい。シリコーン微粒子を1重量部以上含有することで、特に良好な蛍光体分散安定化効果が得られ、

一方、20重量部以下の含有により、シリコン組成物の粘度を過度に上昇させることがない。

[0052] (その他の成分)

本発明の蛍光体シートは、粘度調製、光拡散、塗布性向上などの効果を付与するために更に無機微粒子充填剤を含んでいてもよい。これらの向き充填剤としては、シリカ、アルミナ、チタニア、ジルコニア、チタン酸バリウム、酸化亜鉛等が挙げられる。

[0053] また本発明において、蛍光体シートの作製に際して用いられるシリコン樹脂組成物には、その他の成分として、常温での硬化を抑制してポットライフを長くするためにアセチレンアルコールなどのヒドロシリル化反応遅延剤が配合されることが好ましい。またその他の添加剤として塗布膜安定化のためのレベリング剤、シート表面の改質剤としてシランカップリング剤等の接着補助剤等を添加してもよい。

[0054] (膜厚)

本発明の蛍光体シートの膜厚は、蛍光体含有量と、所望の光学特性から決められる。蛍光体含有量は上述のように作業性の観点から限界があるので、膜厚は10 μ m以上あることが好ましい。一方、蛍光体シートの光学特性・放熱性を高める観点からは、蛍光体シートの膜厚は1000 μ m以下であることが好ましく、200 μ m以下であることがより好ましく、100 μ m以下であることがさらに好ましい。蛍光体シートを1000 μ m以下の膜厚にすることによって、バインダー樹脂や蛍光体による光吸収や光散乱を低減することができるので、光学的に優れた蛍光体シートとなる。

[0055] また、シート膜厚にバラツキがあると、LEDチップごとに蛍光体量に違いが生じ、結果として、発光スペクトル（色温度、輝度、色度）にバラツキが生じる。従って、シート膜厚のバラツキは、好ましくは $\pm 5\%$ 以内、さらに好ましくは $\pm 3\%$ 以内である。

[0056] 本発明における蛍光体シートの膜厚は、JIS K7130(1999)プラスチックフィルム及びシートー厚さ測定方法における機械的走査によ

る厚さの測定方法 A 法に基づいて測定される膜厚（平均膜厚）のことをいう。また蛍光体シートの膜厚バラツキは前記の平均膜厚を用いて、下記の数式に基づいて算出される。より具体的には、機械的走査による厚さの測定方法 A 法の測定条件を用いて、市販されている接触式の厚み計などのマイクロメーターを使用して膜厚を測定して、得られた膜厚の最大値あるいは最小値と平均膜厚との差を計算し、この値を平均膜厚で除して 100 分率であらわした値が膜厚バラツキ B（％）となる。

$$[0057] \quad \text{膜厚バラツキ B (\%)} = \{ (\text{最大膜厚ズレ値} - \text{平均膜厚}) / \text{平均膜厚} \} \times 100$$

ここで、最大膜厚ズレ値は膜厚の最大値または最小値のうち平均膜厚との差が大きい方を選択する。

[0058] <支持基材>

支持基材は形状が変形しやすい蛍光体シートを保護し、保管や運搬、加工を容易にするとともに、LEDチップへの貼り付け工程において操作を容易にし、加圧基材への付着や汚染を防止する。

[0059] （支持基材の物性）

支持基材は、23℃において、破断伸度が200%以上であり、かつヤング率が600MPa以下である。支持基材の破断伸度が200%未満である、またはヤング率が600MPaより大きいと、LED貼り付け工程において側面と蛍光体シートの間に隙間が生じ、追従性が悪化する。LEDチップへの追従性の観点から破断伸度は望ましくは300%以上であり、更に望ましくは500%以上である。またヤング率は望ましくは400MPa以下であり、より望ましくは100MPa以下であり、更に望ましくは10MPa以下である。破断伸度の上限については特に制限はないが、裁断が容易になる観点から1500%以下であることが好ましく、1000%以下であることがより好ましく、800%以下であることがさらに好ましく、750%以下であることが特に好ましい。またヤング率の下限については特に制限はないが、支持基材が変形せずに蛍光体シートを保護する観点から0.1MPa

以上であることが好ましく、1 MPa以上であることがより好ましく、さらに好ましくは1.6 MPa以上である。

[0060] 破断伸度およびヤング率の測定はASTM-D882-12に準じた方法により測定できる。具体的な測定法としては、一定温度に保たれた環境下において、引張試験機を用いて、試験片を速度300mm/分で引っ張る。試験前の試験片長さを L_0 、切断（破断）したときの試験片の長さを L としたとき、破断伸度は次の式によって算出される。

$$\text{破断伸度 (\%)} = 100 \times (L - L_0) / L_0。$$

[0061] またヤング率は試験片が変形する直前での最大弾性、すなわち試験片の伸びとそれにかかる荷重をプロットしたS-Sカーブの最大傾斜、から求めることができる。破断伸度およびヤング率の測定回数は、精度を上げるために測定回数を3回とし、その平均値を求める。

[0062] 蛍光体シートの貼り付け温度は前記の通り、60℃～150℃が好ましく、60℃～120℃がさらに好ましい。そのため、支持基材の熱特性としてはこの温度範囲で融解しないことが好ましい。この観点から支持基材の融点は120℃以上が好ましく、150℃以上がさらに好ましい。

[0063] また支持基材は蛍光体シートを保持するための接着性と、LEDチップに貼り付けたのちに支持基材を剥がすための剥離性を両立する観点から、支持基材の剥離力は0.5～2.5N/20mmの範囲であることが好ましい。ここでいう剥離力はJIS Z 0237（2009）に規定される粘着テープ・粘着シート方法の中の、90度引きはがしによる粘着性試験方法によって得られる値である。

[0064] 支持基材は、一般的には発光の均一性の観点から、表面平均粗さ R_a が1 μm 以下であることが好ましいが、光取り出し向上のためにエンボス加工などの表面加工がされていてもよい。

[0065] （支持基材の材質）

支持基材の材質としては、具体的には、ポリ塩化ビニル、ポリウレタン、シリコン、低密度ポリエチレン（LDPE）、ポリビニルアセタールなど

が挙げられる。ポリ塩化ビニルは可塑剤の添加量によって硬質と軟質があるが、軟質のものが好ましい。またシリコンにはレジンとゴムがあるが、伸縮性に優れるシリコンゴムが好ましい。中でも高伸度、低ヤング率、熱特性、接着性および剥離性の観点からポリ塩化ビニル、ポリウレタンまたはシリコンが好ましい。より好ましくは、ポリ塩化ビニルまたはポリウレタンであり、特に好ましくは軟質ポリ塩化ビニルまたはポリウレタンであり、最も好ましくはポリウレタン（ポリウレタンフィルム）である。

[0066] これらの材質のフィルムは、たとえば低密度化、無延伸化、柔軟成分のモノマー量の増量、可塑剤の増量などにより、破断伸度およびヤング率を上記の好ましい範囲に制御することができる。

[0067] （支持基材の膜厚）

支持基材の膜厚は $5\mu\text{m}\sim 500\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $20\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $40\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ であることがより好ましい。また支持基材の膜厚は蛍光体シート膜厚に対して、以下の数式を満たすことが好ましい。

[0068] $1/5 \leq (\text{支持基材の膜厚} / \text{蛍光体シートの膜厚}) \leq 3$

下限以上であれば支持基材は蛍光体シートの保護のために十分な機械的強度を得ることができる。また上限以下であれば蛍光体シートの貼り付けにおいて、LEDチップに対し十分な追従性を得ることができる。この観点から（支持基材の膜厚／蛍光体シートの膜厚）の下限は $1/2$ 以上であることがより好ましい。また上限は2以下であることがより好ましく、1以下であることが更に好ましい。

[0069] ＜積層体における他の構成＞

本発明の積層体は支持基材上に粘着剤を有していてもよい。図2は粘着剤を有する積層体の例である。この場合は粘着剤4を塗布した面が蛍光体シート3と接するようにして積層体1を形成し、粘着剤4により蛍光体シート3を支持基材2上に固定する。粘着剤の粘着力は蛍光体シートを支持基材に保持する観点から $0.1\text{N}/20\text{mm}$ 以上であることが好ましい。またLED

チップを蛍光体シートで被覆した後に支持基材を剥離する観点から1.0N/20mm以下が好ましい。

[0070] また本発明の積層体は蛍光体シートの表面を保護する目的で、蛍光体シート上に保護基材を設けてもよい。保護基材としては、公知の金属、フィルム、ガラス、セラミック、紙等を使用することができる。具体的には、アルミニウム（アルミニウム合金も含むなどの金属板や箔、セルロースアセテート、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、アラミド、フッ素樹脂などのフィルム、樹脂ラミネート紙、樹脂コーティング紙などの加工紙が挙げられる。これらの保護基材は蛍光体シートが保管中に付着することがないように、表面があらかじめ剥離処理されていることが望ましい。また保管中または運搬中に蛍光体シートが折れ曲がる、または表面に傷がつくことがないように強度が高い基材が好ましい。これらの要求特性を満たす点においてフィルムまたは紙が好ましく、その中でも経済性と取り扱い性の面から剥離処理PETフィルムまたは剥離紙がより好ましい。

[0071] <積層体の製造方法>

本発明の積層体の製造方法はこれを形成できるいかなる方法であってもよいが、直接塗布法、粘着剤による転写法および熱転写法が例示される。

[0072] 直接塗布法は支持基材上に蛍光体シート作製用組成物を塗布したのち、加熱硬化を行う方法である。なお、「蛍光体シート作製用組成物」の詳細は後述するが、「蛍光体シート作製用組成物」とは蛍光体シート形成用の塗布液として用いられるものであり、蛍光体を樹脂に分散した組成物である。

[0073] 粘着剤による転写法は、粘着剤を有する支持基材の粘着面を、第2の基材上に作製した蛍光体シートに貼り合わせ、第2の基材上から支持基材上に蛍光体シートを転写する方法である。

[0074] 熱転写法は第2の基材上に作製した蛍光体シートを支持基材と加熱圧着し第2の基材上から支持基材上に転写する方法である。

[0075] 積層体の製造方法としては、膜厚精度の高い蛍光体シートを作製する観点から粘着剤による転写法と熱転写法が好ましく、さらにLEDチップ貼り付け後の支持基材の剥離性の観点から熱転写法が好ましい。

[0076] ここで蛍光体シートの作製について説明する。なお、以下は一例であり蛍光体シートの作製方法はこれに限定されない。まず、蛍光体シート形成用の塗布液として蛍光体を樹脂に分散した組成物（以下「蛍光体シート作製用組成物」という）を作製する。蛍光体の沈降抑制を目的としてシリコン微粒子を添加してもよく、無機微粒子、レベリング剤および接着助剤などその他の添加物を添加してもよい。また樹脂として付加反応型シリコン樹脂を用いる場合は、ヒドロシリル化反応遅延剤を配合して、ポットライフを延長することも可能である。流動性を適切にするために必要であれば、溶媒を加えて溶液とすることもできる。溶媒は流動状態の樹脂の粘度を調整できるものであれば、特に限定されない。例えば、トルエン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ヘキサン、アセトン、テルピネオール等が挙げられる。

[0077] これらの成分を所定の組成になるよう調合した後、ホモジナイザー、自公転型攪拌機、3本ローラー、ボールミル、遊星式ボールミル、ビーズミル等の攪拌・混練機で均質に混合分散することで、蛍光体シート作製用組成物が得られる。混合分散後、もしくは混合分散の過程で、真空もしくは減圧条件下で脱泡することも好ましく行われる。

[0078] 次に、蛍光体シート作製用組成物を基材上に塗布し、乾燥させる。塗布は、リバーロールコーター、ブレードコーター、スリットダイコーター、ダイレクトグラビアコーター、オフセットグラビアコーター、リバーロールコーター、ブレードコーター、キスコーター、ナチュラルロールコーター、エアーナイフコーター、ロールブレードコーター、バリバーロールブレードコーター、トゥーストリームコーター、ロッドコーター、ワイヤーバーコーター、アプリケーター、ディップコーター、カーテンコーター、スピンコーター、ナイフコーター等により行うことができる。蛍光体シート膜厚の均一

性を得るためにはスリットダイコーターで塗布することが好ましい。また、本発明の蛍光体シートはスクリーン印刷やグラビア印刷、平版印刷などの印刷法を用いても作製することもできる。印刷法を用いる場合には、特にスクリーン印刷が好ましく用いられる。

[0079] 蛍光体シートの乾燥・硬化には、熱風乾燥機や赤外線乾燥機等の一般的な加熱装置が用いられる。加熱硬化条件は、通常、 80°C ～ 200°C で2分～3時間であるが、加熱により軟化し粘着性を発現できる、いわゆるBステージ状態とするために 80°C ～ 120°C で30分～2時間の加熱が好ましい。

[0080] 粘着剤による転写法と熱転写法に利用される第2の基材を用いる場合には、特に制限無く公知の金属、フィルム、ガラス、セラミック、紙等を使用することができる。膜厚精度の高い蛍光体シートを作製するためには 23°C において第2の基材の破断伸度が200%未満、またはヤング率が600MPaより大きいことが好ましく、特にヤング率が4000MPa以上であることがより好ましい。また樹脂の硬化反応が速やかに進む 150°C 以上の温度において変形が少ないものが好ましい。

[0081] 具体的には、アルミニウム（アルミニウム合金も含む）、亜鉛、銅、鉄などの金属板や箔、セルロースアセテート、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリビニルアセタール、アラミドなどのプラスチックのフィルム、前記プラスチックがラミネートされた紙、または前記プラスチックによりコーティングされた紙、前記金属がラミネートまたは蒸着された紙、前記金属がラミネートまたは蒸着されたプラスチックフィルムなどが挙げられる。

[0082] これらの中でも、前記の要求特性や経済性の面で樹脂フィルムが好ましく、特にPETフィルムまたはポリフェニレンスルフィドフィルムが好ましい。また、樹脂の硬化や蛍光体シートをLEDに貼り付ける際に 200°C 以上の高温を必要とする場合は、耐熱性の面でポリイミドフィルムが好ましい。

[0083] また蛍光体シートの転写を容易にするために、第2の基材はあらかじめ表

面が剥離処理されていることが好ましい。

[0084] 第2の基材の厚さは特に制限はないが、下限としては $30\mu\text{m}$ 以上が好ましく、 $50\mu\text{m}$ 以上がより好ましい。また、上限としては $5000\mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $3000\mu\text{m}$ 以下がより好ましい。

[0085] 第2の基材から支持基材上への粘着剤による転写は空気の噛み込みが起きないようにローラーのついたラミネーターで行うことが望ましい。

[0086] また、第2の基材から支持基材上への熱転写は、加熱機構と加圧機構を備える熱ラミネーターで行うことが望ましい。ここで蛍光体シートを軟化させる粘着性を発現させる観点から熱転写は 60°C 以上で行うことが好ましい。また蛍光体シートのBステージ状態（すなわち半硬化の状態）を保つ観点から 120°C 以下で行うことが好ましい。また膜厚均一性を維持する観点から、加圧圧力は 0.3MPa 以下であることが好ましく、加圧時間は30秒以下が好ましく10秒以下がより好ましい。

[0087] <発光装置の製造方法>

本発明の積層体を用いた発光装置の製造方法について説明する。

[0088] 本発明においては、基板上に接合した（実装した）LEDチップの発光面を、本発明の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する製造方法によって、発光装置が製造されることが好ましい。

[0089] また、LEDチップの発光面がLEDチップの上面および側面である場合などにおいては、基板上に接合した（実装した）LEDチップの上面および側面を本発明の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する製造方法によって、発光装置が製造されることが好ましい。

[0090] このように、本発明の積層体を用いた発光装置は、基板上にLEDチップを接合（実装）したのち、本発明の積層体を用いてLEDチップの上部発光面および側部発光面を蛍光体シートで被覆することにより製造されることが好ましい。

[0091] 基板とはLEDチップを固定しかつ配線と接続するものである。基板は、例えばベース基板でも、サブマウント基板でもよい。基板の材料としては、

特に限定されないが、ポリフタルアミド（P P A）、液晶ポリマー、シリコン等の樹脂、窒化アルミニウム（A l N）、アルミナ（A l₂O₃）、窒化ホウ素（B N）等のセラミック、アルミニウム等の金属を例示できる。

[0092] 基板上には例えば銀などにより電極パターンを形成されているものを使用する。また放熱機構を備えていてもよい。

[0093] L E Dチップは青色光または紫外光を発するものが好ましい。このようなL E Dチップとして窒化ガリウム系のL E Dチップが特に好ましい。

[0094] L E Dチップの型式は、ラテラル型、バーティカル型、フリップチップ型のいずれを用いてもよいが、高輝度、高放熱性の観点からフリップチップ型が特に好ましい。本発明において、L E Dチップが基板上に接合されている（実装されている）、とは、L E Dチップが基板に電氣的に接合されている状態が好ましい。フリップチップの接合（実装）についてはハンダ接合、共晶接合、導電性ペースト接合が挙げられる。

[0095] L E Dチップは基板上に単独で接合（実装）されていてもよいし、複数個が接合（実装）されていても良い。また個々のパッケージ毎に蛍光体シートで被覆してもよいし、複数のパッケージを並べたものを一括して蛍光体シートで被覆したのち、ダイシングなどにより個片化してもよい。

[0096] L E Dチップの膜厚は特に限定されないが、L E Dチップ上面や角部において蛍光体シートにかかる圧力を低くし、膜厚均一性を維持する観点から好ましくは500 μm以下であり、より好ましくは300 μm以下であり、さらに好ましくは200 μm以下である。

[0097] またL E Dチップおよび基板との接続部の合計膜厚と蛍光体シートの膜厚は以下の関係式を満たすことが好ましい。

[0098] $1 \leq (\text{L E Dチップおよび基板との接続部の合計膜厚} / \text{蛍光体シートの膜厚}) \leq 10$ 。

[0099] 下限以上であると発光色の方位ムラを抑制しやすい。また上限以下であると蛍光体シート膜厚均一性を維持しやすい。この観点から下限は2以上であることが好ましい。また上限は5以下が好ましく、4以下であることがより

好ましい。

[0100] 本発明の積層体のＬＥＤチップへの貼り付けは、蛍光体シートを軟化させ、粘着性を発現させることから加熱条件下で行われることが好ましい。加熱温度は蛍光体シートが十分に軟化し、かつ急激な硬化が進行しないことから、 $60^{\circ}\text{C}\sim 150^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、 $60^{\circ}\text{C}\sim 120^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましい。

[0101] また、積層体のＬＥＤチップへの貼り付けは、チップ側面への追従性を向上させる観点から加圧条件下で行われることが好ましい。圧力は蛍光体シートをＬＥＤチップ側面に押さえつけることができ、かつ膜厚の維持が可能なことから、 $0.1\text{MPa}\sim 0.3\text{MPa}$ であることが好ましい。

[0102] 加圧方法として具体的には可撓性シート膨らませて押圧する方法、空気等の気体を注入して非接触で押圧する方法、ＬＥＤチップの形状に沿った型をプレスして押圧する方法、またはロールで押圧する方法が例示される。またこれらの方法を複数組み合わせてもよい。

[0103] さらに、積層体のＬＥＤチップへの貼り付けは、蛍光体シートとＬＥＤチップおよび基板との間の空気の噛み込みを防ぐために、真空雰囲気条件下で行われることが好ましい。

[0104] 本発明の積層体を用いてＬＥＤチップへの貼り付けを行う装置としては、前記条件を満たすものであれば特に限定されないが、汎用性が高く生産性に優れる点から、プラテンに可撓性シートを付設した圧縮機構を設置した真空チャンバーを有する真空積層装置が好ましい。このような真空積層装置としては例えば特許３６４６０４２号公報に記載のものが例示される。

[0105] このような真空積層装置を用いた発光装置の製造方法の一例を図３で説明する。この真空積層装置は上部プラテン６、可撓性シート８およびこれらに囲まれた密閉空間９とエア注入・排出口１０を備えた圧縮機構１１と、ヒーターを有する下部プラテン７と、別のエア注入・排出口１２を備えた真空チャンバー５から構成される。この下部プラテン７上に、ＬＥＤチップ１４が接合（実装）された基板１３を設置し、さらに支持基材２と蛍光体シート３

を含んでなる積層体 1 を蛍光体シート 3 が LED チップ 表面に接する向きに順に重ね合わせる (図 3 a)。次に、エア注入・排出口 10 およびエア注入・排出口 12 から、図 3 b において点線で示される矢印の方向にエアを排出 (バキューム) することによって、真空チャンバー 5 および圧縮機構 11 の密閉空間 9 内を真空雰囲気にする (図 3 b)。次に、下部プラテン 7 を図示しないヒーターで加熱しながら、エア注入・排出口 10 から、図 3 c の矢印の方向にエアを注入することによって、圧縮機構 11 の密閉空間 9 にエアを注入し、可撓性シート 8 を膨張させて積層体 1 を LED チップ 14 に貼り付ける (図 3 c)。次に、エア注入・排出口 12 から、図 3 d の矢印の方向にエアを注入することによって、真空チャンバー 5 内にエアを注入し常圧に戻し (図 3 d)、発光装置 15 を取り出す (図 3 e)。最後に発光装置 15 に貼り付けた積層体 1 から支持基材 2 を除く (図 3 f)。このように、本発明にかかる発光装置は、最終的には、図 3 f に示されるような、支持基材を含まない構成であることが好ましい。発光装置は、発光装置の積層体から支持基材が取り除かれた構成で用いられ、流通することが多いためである。

[0106] このように本発明の積層体を用いることにより、一段階の押圧で、蛍光体シートを LED チップに被覆することが可能であり、生産性の高い発光装置の製造方法を提供できる。

[0107] また、例えば、特許文献 2 に記載されているような従来の二段階押圧法、すなわち可撓性シートによる接触押圧とエア注入による非接触押圧を続けて行う方法においても、本発明の積層体を好適に用いることができる。

[0108] 特に、基板上に $1000\mu\text{m}$ 以下の間隔で並べられた複数の LED チップを、蛍光体シートで被覆する場合、二段階押圧法を単に用いても、十分な貼り付け精度 (被覆精度) が得られない傾向にある。しかし、このような場合であっても、二段階押圧法を用い、加えて、ヤング率の小さい支持基材が用いられた本発明の積層体を用いることにより、高い精度で被覆を行うことができる。

[0109] <発光装置>

本発明の積層体を用いて得られる発光装置の説明をする。図4はバンプ18（例えば金製のバンプ）を介して基板13に接合したLEDチップ14を蛍光体シート3で被覆した発光装置（一例）の断面および上面の模式図である。

[0110] 図4の下部には発光装置の上面の模式図が示されている。ここで16はLEDチップ上面および側面における被覆部、17は基材における被覆部を示している。

[0111] 一方、図4の上部には発光装置の断面が示されている。図4の上部に示されている断面図は、例として上面図における破線IIの位置におけるものが示されている。このような蛍光体シートを被覆したチップの断面は、機械研磨法やイオン研磨法（クロスセクションポリッシング法を含む）などにより断面を作製し（断面を露出せしめ）、それをデジタルマイクロスコップやSEM（走査型電子顕微鏡）で観察する方法や、または研磨等の断面作製工程を経ずに、非破壊でX線CTスキャンニングにより観察する方法により確認することができる。

[0112] 発光装置は、少なくとも、基板と、基板上に接合（実装）されたLEDチップと、LEDチップの発光面を被覆する蛍光体シートとを備える。ここで発光面とはLEDの光が取り出される面を指す。発光面別の分類としては、フリップチップ型やラテラル型チップのように上面および側面から光が取り出されるタイプや、バーティカル型のように上面からのみ光が取り出されるタイプが例示される。さらにフリップチップの側面反射層を設け、上面からのみ光が取り出されるようにしたタイプも例として挙げることもできる。また蛍光体シートとLEDの発光面との間に接着性付与等の目的により透明樹脂が存在してもよい。ここで透明樹脂としてはアクリル、エポキシ、シリコンなどの熱硬化性樹脂が例示されるが、中でも耐熱性、耐光性の観点からシリコン樹脂が最も好ましい。

上記の中でも、発光角を広くすることができ、かつ方位ムラを少なくできる観点から蛍光体シートはLEDチップの上面および側面を被覆することが好

ましい。より好ましくは、蛍光体シートがＬＥＤチップの上面および側面を直接密着して被覆することである。本発明の積層体を用いることにより、積層体から貼り付けられる蛍光体シートがＬＥＤチップの上部発光面面積の８０％以上および側部発光面積の５０％以上と直接密着して被覆された発光装置を作製することが可能である。究極的には、積層体から貼り付けられる蛍光体シートがＬＥＤチップの上部発光面面積の１００％以上および側部発光面積の５０％以上と直接密着して被覆された発光装置を作製することも可能である。

[0113] ここで、「直接密着」とは蛍光体シートとＬＥＤチップの上部発光面または側部発光面との間に、空隙などが存在することなく接着している状態を指す。ＬＥＤチップ上部発光面への被覆において、直接密着部が少なければ、蛍光体シートが剥離しやすくなり、発光装置の不良の原因となることがある。本発明においては、直接密着部が実質的にＬＥＤチップ上部発光面面積の８０％以上であれば蛍光体シートの剥離が起こりにくくなり、発光装置の不良を抑制できる。この観点から、直接密着部が上部発光面面積の９０％以上であることがより好ましく、実質的に１００％であることが最も好ましい。直接密着部が実質的に１００％であるとは、蛍光体シートで被覆されたＬＥＤチップの断面を、顕微鏡を用いて５００倍の倍率で観察したとき、ＬＥＤチップの発光面の領域に対して、当該ＬＥＤチップ（発光面）に直接密着している蛍光体シートの領域が１００％である状態をさす。

[0114] また、ＬＥＤチップの発光面と蛍光体シートの間に屈折率の小さい空気層が存在すると光取り出し効率が低下する。そのため、ＬＥＤチップの側部発光面への被覆において、直接密着部が実質的にＬＥＤチップの側部発光面積の５０％未満であるとＬＥＤチップ側面からの発光効率が低くなり輝度が低下することがある。つまり、ＬＥＤチップの側部発光面への被覆において、直接密着部がＬＥＤチップの側部発光面積の５０％以上であると、ＬＥＤチップ側面からの光取り出し効率の低下を抑制することができる。この観点から直接密着部がＬＥＤチップ側部発光面積の７０％以上であることが好まし

く、90%以上であることがより好ましい。

[0115] 本発明の積層体を用いて得られる発光装置において、発光の方位ムラを抑制する観点からはLEDチップを被覆している蛍光体シートの膜厚がいずれの部位でも変化が小さいことが好ましく、さらにチップ上面からの発光に比べ側面からの発光強度が弱いため、LEDチップ側面部の膜厚はチップ上面部の膜厚に比べ薄いことが好ましい。ここで発光の方位ムラとは発光装置の光の見え方が角度によって異なることを示す。このような方位ムラは、発光装置のLEDチップ上面に対し垂直上に10cm離れた距離における色温度（以下、垂直色温度）と、斜め45°上方に10cm離れた距離における色温度（以下、45°色温度）の差の絶対値の大きさを判定することができる。本発明においては、当該差の絶対値が小さいほど、発光の方位ムラが小さいので、好ましい。

[0116] この観点から、本発明においては、LEDチップ14と蛍光体シート3がLEDチップ14の上面で接している部分（領域）においてLEDチップ14の上面から蛍光体シート3の外面までの距離を距離a [μm]、LEDチップ14と蛍光体シート3がLEDチップ14の側面で接している部分（領域）においてLEDチップ14の側面から蛍光体シート3の外面までの距離を距離b [μm] とすると、発光ムラを抑制する観点から、 $0.80 < a/b < 1.50$ の関係が満たされることが好ましく、 $1.00 < a/b < 1.20$ がより好ましく、 $1.00 < a/b < 1.05$ が更に好ましい。

[0117] つまり、本発明の発光装置は、 $[a/b]$ の関係が上記した範囲を満足することが好ましい。また、そのような発光装置の製造に際しては、得られる発光装置において、 $[a/b]$ の関係が上記した範囲を満足せしめる製造方法が採られることが好ましい。

[0118] したがって、本発明にかかる発光装置を得るための好ましい製造方法は、上記の関係を満たすように、本発明の積層体の蛍光体シートで、基板上に接合したLEDチップ（特に、LEDチップの発光面、または、上面および側面）を被覆する工程（被覆工程）を含むことである。

[0119] このように、本発明にかかる発光装置を得るための製造方法は、本発明の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）において、上記の関係が満たされる、発光装置の製造方法であることが好ましい。

実施例

[0120] 以下に本発明を実施例により具体的に説明する。

[0121] <蛍光体シート>

・シリコン樹脂 1 :

樹脂主成分 $(\text{MeViSiO}_{2/2})_{0.25}(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{0.3}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.45}(\text{HO}_{1/2})_{0.03}$ 75 重量部

硬度調整剤 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{MePhSiO})_{17.5}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 10 重量部

架橋剤 $(\text{HMe}_2\text{SiO})_2\text{SiPh}_2$ 25 重量部

※ただし Me : メチル基、Vi : ビニル基、Ph : フェニル基

反応抑制剤 1-エチニルヘキサノール 0.025 重量部

白金触媒 白金 (1, 3-ジビニル-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン) 錯体 1, 3-ジビニル-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン溶液 [白金含有量 5 重量%] 0.01 重量部

・シリコン樹脂 2 : KER 6075 (信越化学工業製)。

・蛍光体 1 : NYAG-02 (Intematix 社製 : Ce ドープの YAG 系蛍光体、比重 : 4.8 g/cm^3 、 $D50 : 7 \mu\text{m}$)。

[0122] (蛍光体シートの貯蔵弾性率測定方法)

測定装置 : 粘弾性測定装置 ARES-G2 (TA インストルメンツ製)

ジオメトリー : 平行円板型 (15 mm)

ひずみ : 1 %

角周波数 : 1 Hz

温度範囲 : $25^\circ\text{C} \sim 140^\circ\text{C}$

昇温速度 : $5^\circ\text{C}/\text{分}$

測定雰囲気 : 大気中。

膜厚 $50 \mu\text{m}$ の蛍光体シートを 16 枚積層し、 100°C のホットプレート上で加熱圧着して $800 \mu\text{m}$ の一体化した膜 (シート) を作製し、直径 15 mm

mに切り抜いて測定サンプルとした。このサンプルを上記条件を用いて測定し、25℃および100℃における貯蔵弾性率を測定した。

[0123] (蛍光体シートの製造方法)

[蛍光体シートの製造例1]

容積300mlのポリエチレン製容器を用いて、シリコーン樹脂1を30重量%、蛍光体1を70重量%の比率で混合した。その後、遊星式攪拌・脱泡装置“マゼルスターKK-400”（クラボウ製）を用い、1000rpmで20分間攪拌・脱泡してシート作成用蛍光体分散液を得た。スリットダイコーターを用いてシート作成用蛍光体分散液を、基材として“セラピール”WDS（東レフィルム加工株式会社製；膜厚50μm、破断伸度115%、ヤング率4500MPa）の剥離面上に塗布し、120℃で1時間加熱、乾燥して膜厚50μm、100mm角の蛍光体シート1を得た。この蛍光体シートの貯蔵弾性率は、25℃で1.0MPa、100℃で0.025MPaであった。

[0124] [蛍光体シートの製造例2]

シリコーン樹脂1の代わりにシリコーン樹脂2を用いた以外は製造例1と同様にして、膜厚50μm、100mm角の蛍光体シート2を得た。この蛍光体シートの貯蔵弾性率は25℃で1.1MPa、100℃で0.35MPaであった。

[0125] <積層体>

(支持基材)

支持基材の23℃における破断伸度、ヤング率はテンシロンRTF-1310（エー・アンド・デイ製）を用いてASTM-D882-12に準じた方法により3回測定し、その平均値を求めた。

試料サイズ：幅10mm、初期長さ30mm

測定条件： 温度 23℃、引っ張り速度 300mm/min。

・支持基材1：ポリウレタンフィルム MG90（武田産業製）

膜厚 50μm、破断伸度 500%、ヤング率 8MPa

・支持基材2：ポリウレタンフィルム MG90（武田産業製）

膜厚 100 μ m、破断伸度 750%、ヤング率 8 MPa

・支持基材3：ポリ塩化ビニルフィルム（軟質） タイプC+（アキレス製）

膜厚 50 μ m、破断伸度 350%、ヤング率 250 MPa

・支持基材4：粘着剤付ポリ塩化ビニルフィルム T-80MW（電気化学工業製）

膜厚 50 μ m、破断伸度 300%、ヤング率 300 MPa

・支持基材5：シリコンフィルム 珪樹（三菱樹脂製）

膜厚 50 μ m、破断伸度 450%、ヤング率 1.6 MPa

・支持基材6：エチレン-テトラフルオロエチレン共重合体（ETFE）フィルム ネオフロン EF-0050（ダイキン製）

膜厚 50 μ m、破断伸度 450%、ヤング率 640 MPa。

[0126] [製造例1]

“セラピール” WDS上に形成した蛍光体シート1上に、支持基材1を載せ、ロール型熱ラミネーターを用いて温度80℃、加圧圧力0.3 MPa、送り速度0.5 m/minで押圧した。放冷して室温にしたのち、“セラピール” WDSを剥がし積層体1を得た。

[0127] [製造例2]

蛍光体シート1の代わり蛍光体シート2を用いた以外は製造例1と同様にして積層体2を得た。

[0128] [製造例3]

支持基材1の代わりに支持基材2を用いた以外は製造例1と同様にして積層体3を得た。

[0129] [製造例4]

支持基材1の代わりに支持基材3を用いた以外は製造例1と同様にして積層体4を得た。

[0130] [製造例5]

“セラピール” WDS上に形成した蛍光体シート1上に、粘着剤層が蛍光体層と接するように支持基材4を載せ、ロール型ラミネーターを用いて温度25℃、加圧圧力0.3MPa、送り速度1.0m/minで押圧した。放冷して室温にしたのち、“セラピール” WDSを剥がし積層体5を得た。

[0131] [製造例6]

“セラピール” WDS上に形成した蛍光体シート1上に、支持基材5を載せ、ロール型熱ラミネーターを用いて温度80℃、加圧圧力0.3MPa、送り速度0.5m/minで押圧した。放冷して室温にしたのち、“セラピール” WDSを剥がし積層体6を得た。

[0132] [製造例7]

支持基材1の代わりに、支持基材6を用いた以外は製造例1と同様にして積層体67を得た。

[0133] なお、蛍光体シートの製造例1で作製した“セラピール” WDSと蛍光体シート1との積層体を積層体8とした。

[0134] <発光素子>

(貼り付け装置)

真空チャンバーと、ヒーターに接続した下部プラテンと、上部プラテンと可撓性のフッ素シリコンゴムシートとからなる圧縮機構を有する、図3に記載したような、真空ラミネーターV130（ニチゴー・モートン製）を用いて行った。

[0135] (発光装置の光の見え方評価)

発光装置のLEDチップ上面に対し垂直上に10cm離れた距離における色温度（以下、垂直色温度）と、斜め45°上方に10cm離れた距離における色温度（以下、45°色温度）の差の絶対値をもとめ、下記のように判定した。

[0136] A : $|(\text{垂直色温度}) - (45^\circ \text{色温度})| < 500 \text{ K}$

B : $500 \text{ K} \leq |(\text{垂直色温度}) - (45^\circ \text{色温度})| < 1000 \text{ K}$

C : $1000 \text{ K} \leq |(\text{垂直色温度}) - (45^\circ \text{色温度})|$ 。

[0137] (追従性評価方法)

LEDチップが基板に接合され、かつ蛍光体シートによって被覆された発光装置について、図4に示すI、II、IIIの位置でそれぞれ基板に垂直になるように断面を切断したのち、SEMにより断面図を撮影した。次にそれぞれの断面図よりLEDチップの上部発光面に対し蛍光体シートが接触している部分の割合を計算した。なお、図4において、 $A/D = 1/10$ 、 $B/D = 5/10$ 、 $C/D = 9/10$ である。

[0138] また同様にLEDチップの側部発光面に対し蛍光体シートが接触している部分の割合を計算した。それぞれについて3箇所における測定結果の平均値を、上部発光面に対する追従性および側部発光面に対する追従性とし、以下の基準により追従性を評価した。

[0139] A : LED上部発光面の追従性が100%でありかつ側部発光面の追従性が90%以上

B : LED上部発光面の追従性が100%でありかつ側部発光面の追従性が70%以上90%未満

C : LED上部発光面の追従性が100%でありかつ側部発光面の追従性が50%以上70%未満

D : LED上部発光面の追従性が90%以上100%未満、または側部発光面の追従性が40%以上50%未満

E : LED上部発光面の追従性が90%未満、または側部発光面の追従性が40%未満。

[0140] (膜厚均一性評価)

前述の追従性評価方法で得られたSEMによる断面図より、LEDチップ14と蛍光体シート3がLEDチップ14の上面で接している部分における、LEDチップ14の上面から蛍光体シート3の外面までの距離aを計測した(図4を参照)。また、同様に、LEDチップ14と蛍光体シート3がLEDチップ14の側面で接している部分におけるLEDチップ14の側面から蛍光体シート3の外面までの距離bを計測した(図4を参照)。距離aお

よび距離 b の計測に際しては、有効数字 3 桁として計測した。 a/b の値を、小数点第三位を四捨五入して求め、以下の基準により膜厚均一性を評価した。

[0141] A : $1.00 < a/b < 1.05$

B : $1.05 \leq a/b < 1.20$

C : $0.80 < a/b \leq 1.00$ または $1.20 \leq a/b < 1.50$

D : $a/b \leq 0.80$ または $1.50 \leq a/b$ 、または評価不能な場合。

[0142] [実施例 1]

電極が設けられたアルミナ製セラミック基板に厚み $10\ \mu\text{m}$ の金バンプを介してサイズ 1mm 角、厚み $150\ \mu\text{m}$ の LED チップを接合した。続いて積層体 1 を 3mm 角に切断し、これの蛍光体シート面が接合した LED チップの上面に接するように重ね合わせた。これを真空ラミネーターの真空チャンバー内にある下部プラテン上に設置した。続いて下部プラテンを 80°C に熱したのち、真空チャンバーを密閉した。真空ポンプにより真空チャンバー内を 0.001MPa まで減圧した後、 30 秒間維持した。その後、圧縮機構に 0.1MPa の空気を送り込んでフッ素シリコンゴムシートを膨張させ積層体 1 を LED チップの形状に沿うように 10 秒間押圧した。続いて真空チャンバーをブレイクし（すなわち、真空チャンバーエアーを注入して大気圧（ 0.1MPa ）にし）、蛍光体シートが被覆された発光装置を取り出した。ただし、この段階においては、被覆された蛍光体シートは未だ B ステージ（半硬化の状態）である。

[0143] この発光装置から支持基材を取り除いたのち、 150°C に加熱した恒温オーブン内で 2 時間加熱して蛍光体シートを十分に硬化せしめ、最終的な発光装置を得た。得られた発光装置に 30mA の電流を通電することにより、発光装置を発光させ、LED チップ発光面から垂直方向（垂線方向）に 10cm 離れた位置の垂直色温度と、LED チップ発光面から当該垂線とのなす角が 45° である方向（斜め 45° 方向）に 10cm 離れた位置の 45° 色温度を測定することにより、光の見え方評価を行った。続いて光の見え方評価

を行った発光素子を、基板に垂直になるように断面を切断したのち、SEMにより断面図を撮影した。この断面図より追従性と膜厚均一性の評価を行った。

[0144] [実施例 2 ～ 6]

表 1 に記載の積層体を用いた以外は実施例 1 と同様にして発光装置を得た。得られた発光装置は実施例 1 と同様にして光の見え方、追従性および膜厚均一性の評価を行った。

[0145] [比較例 1 ～ 2]

表 1 に記載の積層体を用いた以外は実施例 1 と同様にして発光装置を得た。得られた発光装置は実施例 1 と同様にして光の見え方、追従性および膜厚均一性の評価を行った。

[0146]

[表1]

【表1】

	積層体	支持基材	蛍光体シート	光の見え方	追従性			膜厚均一性		
					上面 (%)	側面 (%)	評価	距離a (μm)	距離b (μm)	評価
実施例1	積層体1	支持基材1	蛍光体シート1	A	100	98	A	49.8	49.0	A
実施例2	積層体2	支持基材1	蛍光体シート2	B	100	60	C	49.7	48.6	A
実施例3	積層体3	支持基材2	蛍光体シート1	B	100	80	B	48.3	45.2	B
実施例4	積層体4	支持基材3	蛍光体シート1	B	100	60	C	44.9	40.0	B
実施例5	積層体5	支持基材4	蛍光体シート1	B	100	55	C	45.2	40.5	B
実施例6	積層体6	支持基材5	蛍光体シート1	A	100	98	A	49.7	49.1	A
比較例1	積層体7	支持基材6	蛍光体シート1	C	100	40	D	40.0	27.2	C
比較例2	積層体8	セパレーターWDS	蛍光体シート1	C	90	<1	E	24.4	評価不能	D

[0147] 実施例の結果から、23℃において、破断伸度200%以上、ヤング率600MPa以下の支持基材と蛍光体シートを有する積層体を用いることにより、LEDチップ上に追従性と膜厚均一性を保ちながら蛍光体シートにより被覆することができることが分かった。

[0148] またこれらの発光装置を発光させたところ、実施例の発光素子はいずれの方向からも均一に光が発していたが、比較例の発光素子は斜め方向から観察するとやや暗くみえた。これにより方位ムラが発生していることが分かった。

[0149] このように、本発明の積層体を用いて追従性と膜厚均一性に優れた貼付ができた発光素子では、LEDチップの垂直上の色温度と斜め45°方向での色温度の差が小さく、よって方位ムラを抑制できることが分かった。

符号の説明

- [0150] 1 積層体
2 支持基材
3 蛍光体シート
4 粘着材（粘着剤層）
5 真空チャンバー
6 上部プラテン
7 下部プラテン
8 可撓性シート
9 密閉空間（圧縮機構用）
10 エア注入・排出口（圧縮機構用）
11 圧縮機構
12 エア注入・排出口（真空チャンバー用）
13 基板
14 LEDチップ
15 発光装置
16 LEDチップ上面および側面における被覆部

1 7 基材における被覆部

1 8 バンプ（例えば、金製のバンプ）

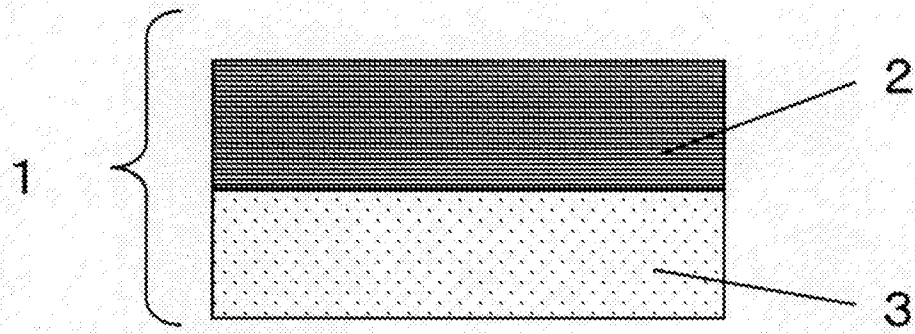
請求の範囲

- [請求項1] 支持基材と、蛍光体および樹脂を含有する蛍光体シートを含む積層体であって、引っ張り試験により求められる前記支持基材の23℃における破断伸度が200%以上であり、かつ前記支持基材の23℃におけるヤング率が600MPa以下である、積層体。
- [請求項2] 前記支持基材の23℃におけるヤング率が400MPa以下である請求項1に記載の積層体。
- [請求項3] 前記支持基材の23℃におけるヤング率が100MPa以下である請求項1に記載の積層体。
- [請求項4] 前記支持基材がポリ塩化ビニルまたはポリウレタンである請求項1から3のいずれかに記載の積層体。
- [請求項5] 基板上に接合したLEDチップの発光面を請求項1から4のいずれかに記載の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する発光装置の製造方法。
- [請求項6] 基板上に接合したLEDチップの上面および側面を請求項1から4のいずれかに記載の積層体の蛍光体シートで被覆する工程（被覆工程）を有する発光装置の製造方法。
- [請求項7] 請求項5または6に記載の発光装置の製造方法であって、
前記LEDチップと前記蛍光体シートがLEDチップの上面で接している部分におけるLEDチップ上面から蛍光体シート外面までの距離 a [μm] と、前記LEDチップと前記蛍光体シートがLEDチップの側面で接している部分におけるLEDチップ側面から蛍光体シート外面までの距離 b [μm] が、
$$1.00 < a/b < 1.20$$

の関係を満たす、発光装置の製造方法。

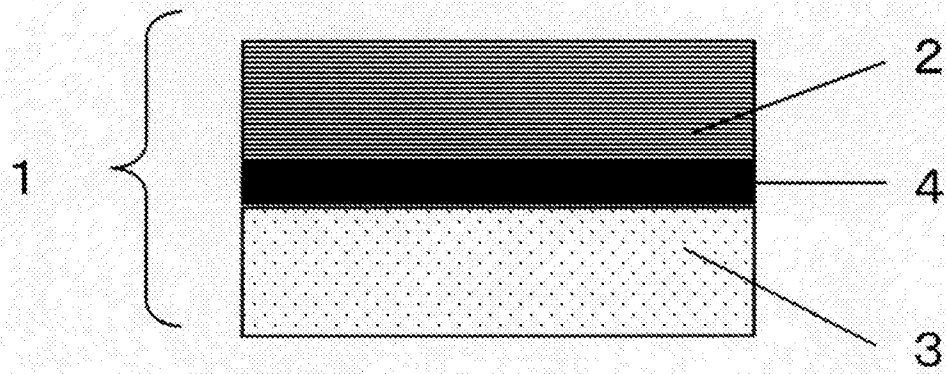
[図1]

【図1】



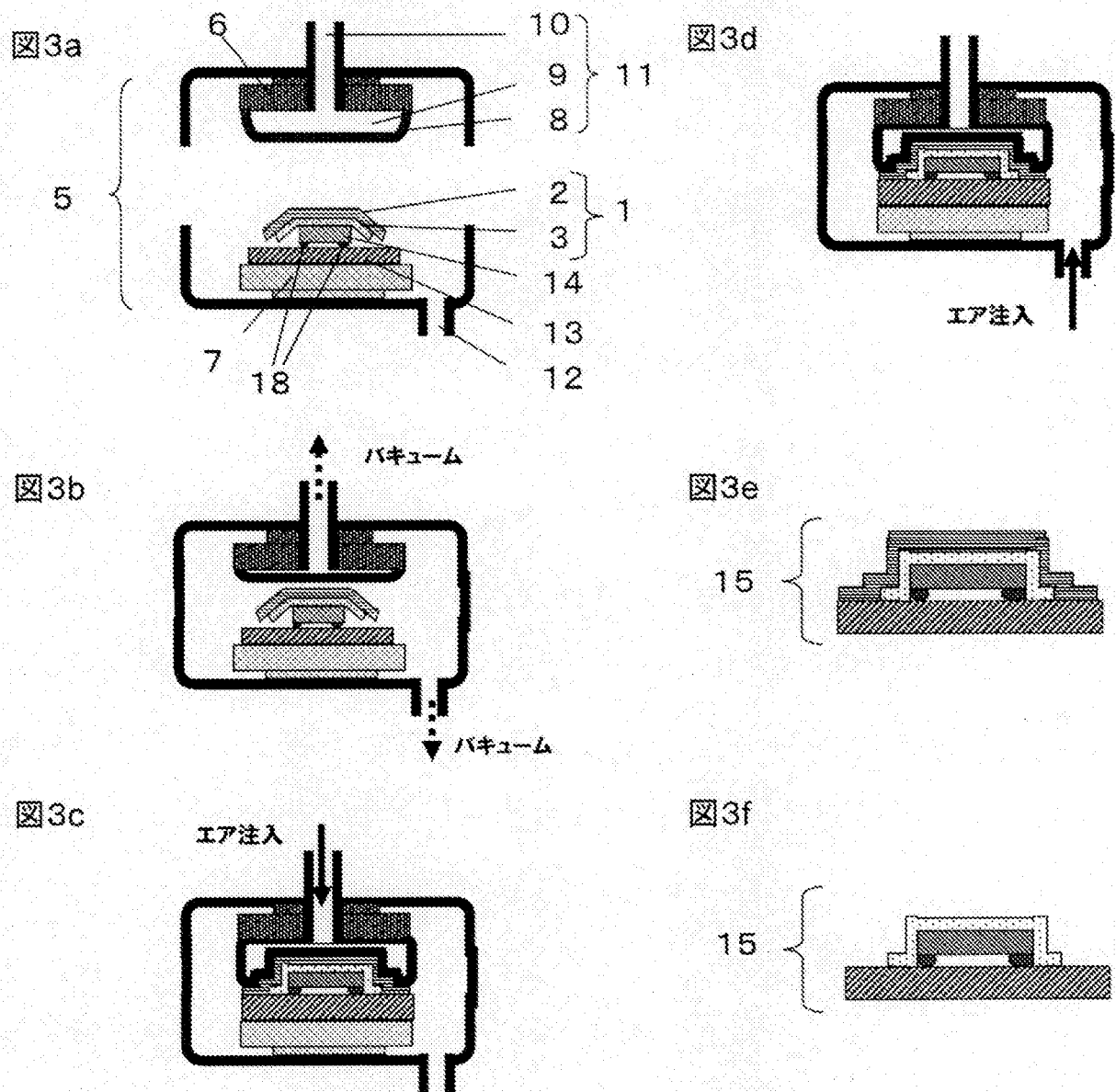
[図2]

【図2】



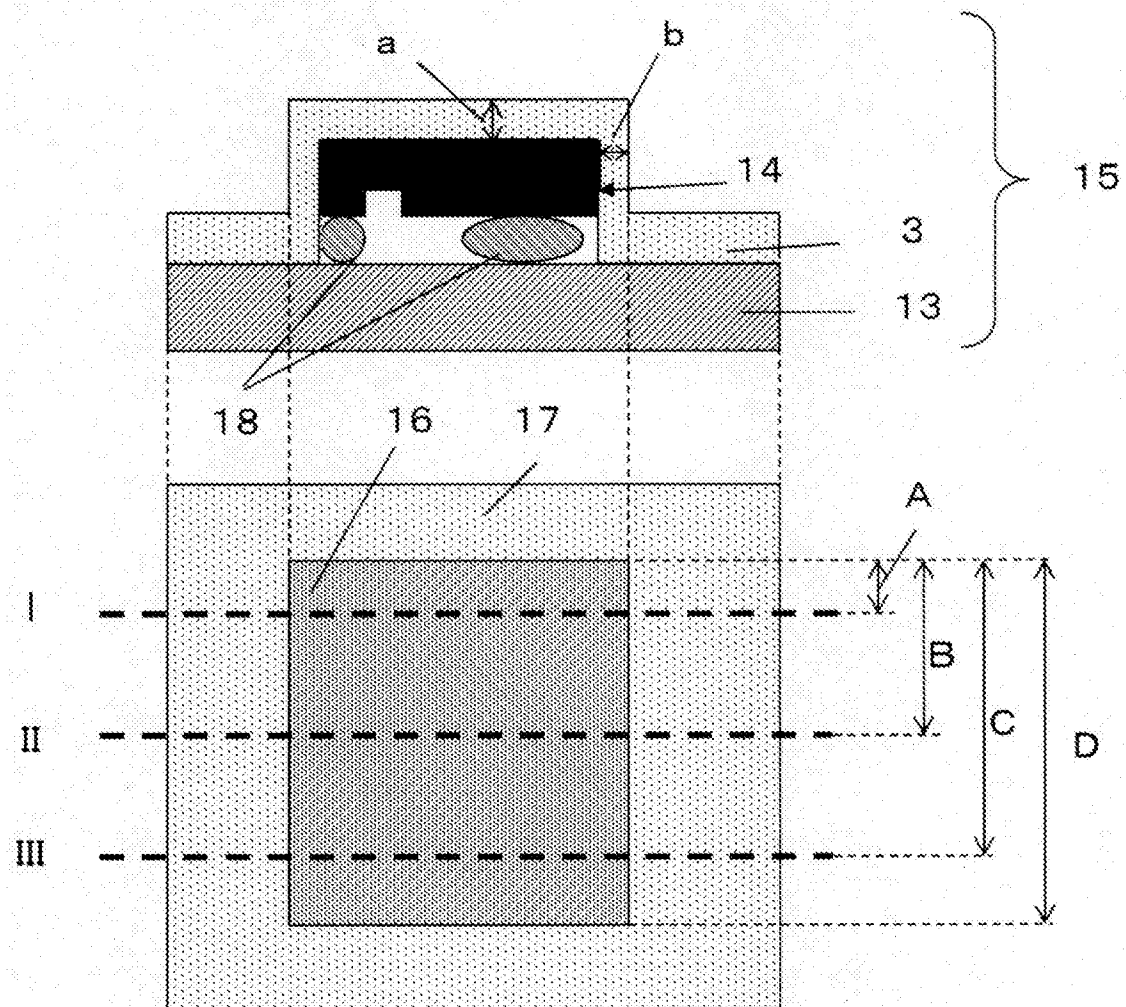
[図3]

【図3】



[図4]

【図4】



$$A/D=1/10, B/D=5/10, C/D=9/10$$

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/079062

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L33/50(2010.01)i, B32B27/18(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, B32B27/40(2006.01)i, H01L33/52(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L33/00-33/64

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012-119673 A (Samsung LED Co., Ltd.), 21 June 2012 (21.06.2012), paragraphs [0069] to [0072]; fig. 18 & US 2012/0142124 A1 & EP 2469615 A2 & KR 10-2012-0061376 A	1-7
A	JP 2011-181550 A (Konica Minolta Opto, Inc.), 15 September 2011 (15.09.2011), entire text; all drawings (Family: none)	7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
28 January 2015 (28.01.15)

Date of mailing of the international search report
10 February 2015 (10.02.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L33/50(2010.01)i, B32B27/18(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, B32B27/40(2006.01)i, H01L33/52(2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L33/00-33/64

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2012-119673 A（サムソン エルイーディー カンパニーリミテッド）2012.06.21, [0069]-[0072]図 18 & US 2012/0142124 A1 & EP 2469615 A2 & KR 10-2012-0061376 A	1-7
A	JP 2011-181550 A（コニカミノルタオプト株式会社）2011.09.15, 全文全図（ファミリーなし）	7

☐ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 8 . 0 1 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

1 0 . 0 2 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

村井 友和

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 5 5

2 K

3 2 0 7