



發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 96105604

※ 申請日期： 96. 2. 15

※IPC 分類：C08L 83/4 (2006.01)

H01L 23/28 (2006.01)

H01L 33/40 (2010.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

以聚矽氧封裝之發光裝置及用以製備該等聚矽氧之可固化聚矽氧組合物
LIGHT EMITTING DEVICE ENCAPSULATED WITH SILICONES AND
CURABLE SILICONE COMPOSITIONS FOR PREPARING THE
SILICONES

二、申請人：(共 2 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

1. 美商道康寧公司
DOW CORNING CORPORATION
2. 日本商道康寧東麗股份有限公司
DOW CORNING TORAY CO., LTD.

代表人：(中文/英文)

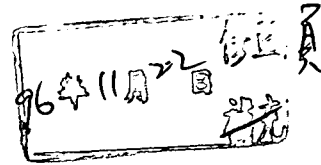
1. 羅傑 E 高伯傑
GOBROGGE, ROGER E.
2. 小林 愈
KOBAYASHI, MASARU

住居所或營業所地址：(中文/英文)

1. 美國密西根州密蘭市西薩爾茲堡路2200號
2200 W. SALZBURG ROAD, MIDLAND, MICHIGAN 48686-0994,
U.S.A.
2. 日本國東京都千代田區丸之內一丁目1番3號
1-3, MARUNOUCHI 1-CHOME, CHIYODA-KU, TOKYO, 100-0005,
JAPAN

國 籍：(中文/英文)

1. 美國 U.S.A.
2. 日本 JAPAN



三、發明人：(共 11 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 江南 博司
ENAMI, HIROJI
2. 森田 好次
MORITA, YOSHITSUGU
3. 吉武 誠
YOSHITAKE, MAKOTO
4. 布萊恩 哈尼斯
HARKNESS, BRIAN
5. 泰咪 鄭
CHENG, TAMMY
6. 村上 正志
MURAKAMI, MASASHI
7. 加藤 智子
KATO, TOMOKO
8. 寺田 勝義
TERADA, MASAYOSHI
9. 蜜雪兒 康明斯
CUMMINGS, MICHELLE
10. 安 諾瑞斯
NORRIS, ANN
11. 馬林達 何威爾
HOWELL, MALINDA

國 籍：(中文/英文)

1. 日本 JAPAN
2. 日本 JAPAN
3. 日本 JAPAN
4. 加拿大 CANADA
5. 美國 U.S.A.
6. 日本 JAPAN
7. 日本 JAPAN
8. 日本 JAPAN
9. 美國 U.S.A.
10. 美國 U.S.A.
11. 美國 U.S.A.

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家(地區)申請專利：

【格式請依：受理國家(地區)、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 美國；2006年02月24日；60/776,575

2.

☒ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 美國；2006年01月17日；60/759,501

2.

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

五、中文發明摘要：

本發明提供一種組合物，其包括：(I)烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷、Si-H官能性含苯基聚有機矽氧烷或其組合；(II)具有特定分子量之經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷、具有特定分子量之烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷或其組合；及(III)氫化矽烷化催化劑。藉由將該組合物施用至一光源上隨後固化而製成一發光裝置。該組合物提供一種具有適於用作一發光裝置之封裝劑之機械特性的固化材料。

六、英文發明摘要：

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

- | | |
|---|-------|
| 1 | 罩殼 |
| 2 | LED晶片 |
| 3 | 內部引線 |
| 4 | 導線 |
| 5 | 固化聚矽氧 |

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於可固化聚矽氧組合物及以藉由固化此等組合物製備之聚矽氧產物封裝之發光裝置。更特定言之，本發明係關於可氫化矽烷化固化之組合物，其固化後形成具有光學透明度、高折射率、耐高溫性及高機械強度之聚矽氧產物。本發明進一步係關於以聚矽氧產物封裝之可靠發光裝置。

【先前技術】

產生光學透明聚矽氧產物之可固化聚矽氧組合物由於諸如其耐熱性及耐光性之特性而常用於發光裝置中。該等可固化聚矽氧組合物可具有優於諸如環氧樹脂材料之習知材料之高可靠性的優點，該等習知材料可具有受到光源產生之熱及光的作用而變色之缺點。

然而，光學透明聚矽氧產物之機械及黏著特性可能劣於環氧樹脂及填充聚矽氧。此等因素可引起聚矽氧產物破裂或分層，從而導致光輸出下降。一種解決此問題之建議方法為使用與聚矽氧產物相容之聚矽氧樹脂作為韌化劑。另一方法為將有機聚合物組份或官能基併入聚矽氧聚合物結構中，然而該等聚矽氧改質可能不適用於耐熱性及耐光性。

【發明內容】

本發明係關於一種藉由混合如下組份而製備之組合物，該等組份包含：

(I) 烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷、Si-H官能性含苯基

聚有機矽氧烷或其組合；

(II) 具有特定分子量之經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷、具有特定分子量之烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷或其組合；及

(III) 氫化矽烷化催化劑。

組份(I)及(II)中之至少一者含有烯基。組份(I)及(II)中之至少一者含有矽鍵合氫原子。

本發明進一步係關於一種以藉由固化可固化聚矽氧烷組合物製備之聚矽氧烷產物封裝或塗佈之發光裝置。

【實施方式】

所有量、比率及百分數均以重量計，除非另有指示。以下為如本文所使用之定義之清單：

術語之定義及用法

"發光裝置"意謂一種用於照明之裝置。發光裝置包括發光二極體(LED)，在該發光二極體中作為發光元件安裝於基板上之半導體晶片經光學透射聚矽氧烷產物封裝。該封裝有助於防禦機械衝擊及灰塵或水分侵入。同時該封裝亦充當介質，其改良沿光路之折射率匹配且支持光信號經由其主體傳播而無顯著信號反射或衰減。該介質可為透明的或含有磷光體或改變透明度之其他添加劑。發光裝置亦包括使用諸如螢光燈之其他發光源的裝置或系統結構。

"分層"意謂聚矽氧烷產物自發光元件或發光裝置中之其他材料剝離之趨勢。

"破裂"意謂封裝劑在發光裝置中顯示變形或斷裂或其兩

者之趨勢。

縮寫 "Me" 意謂 甲基。

縮寫 "Ph" 意謂 苯基。

縮寫 "Vi" 意謂 乙烯基。

縮寫 "Hex" 意謂 己烯基。

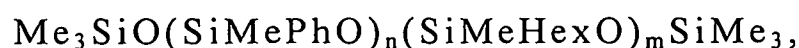
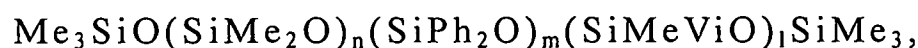
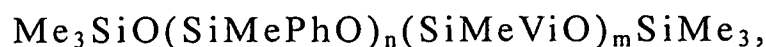
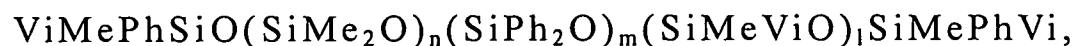
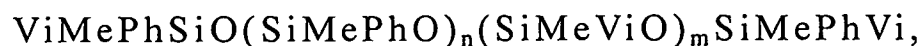
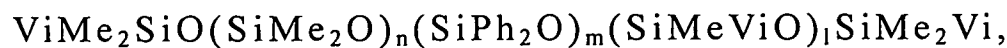
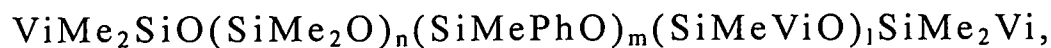
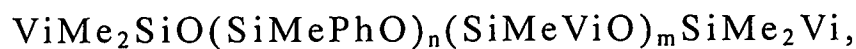
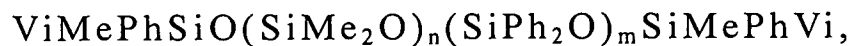
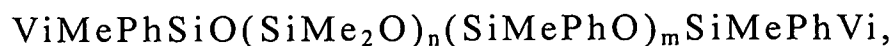
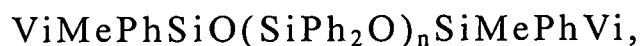
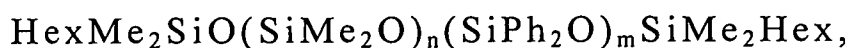
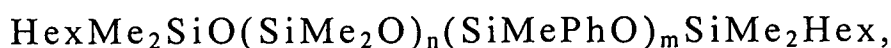
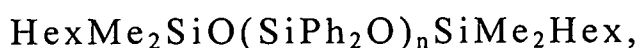
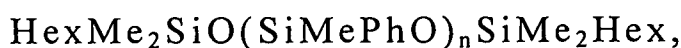
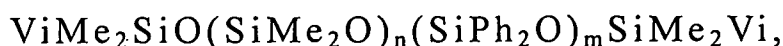
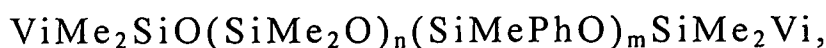
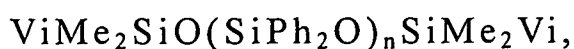
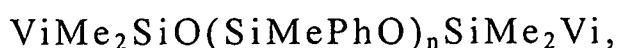
"Pa·s" 意謂 帕斯卡秒。

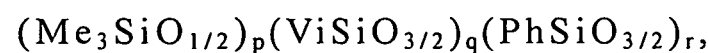
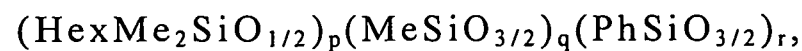
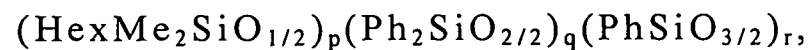
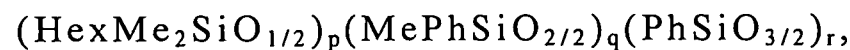
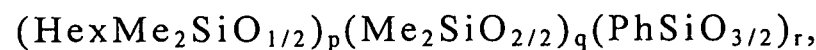
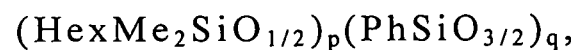
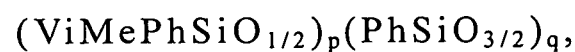
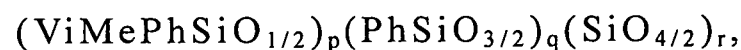
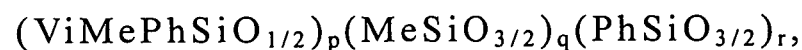
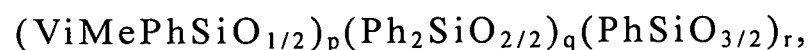
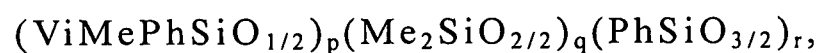
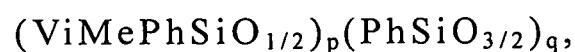
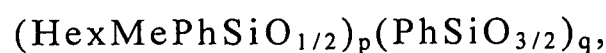
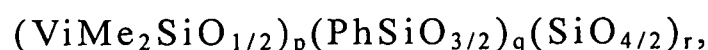
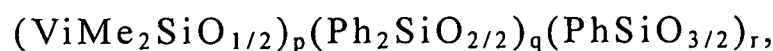
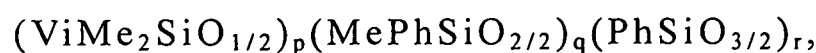
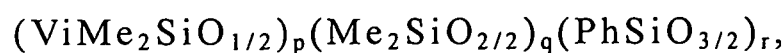
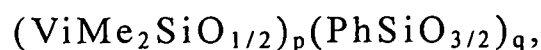
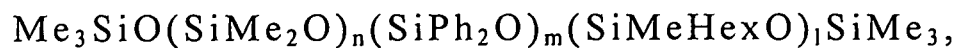
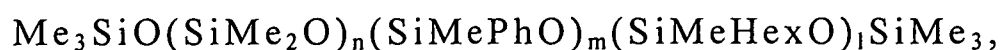
縮寫 "ppm" 意謂 百萬分率。

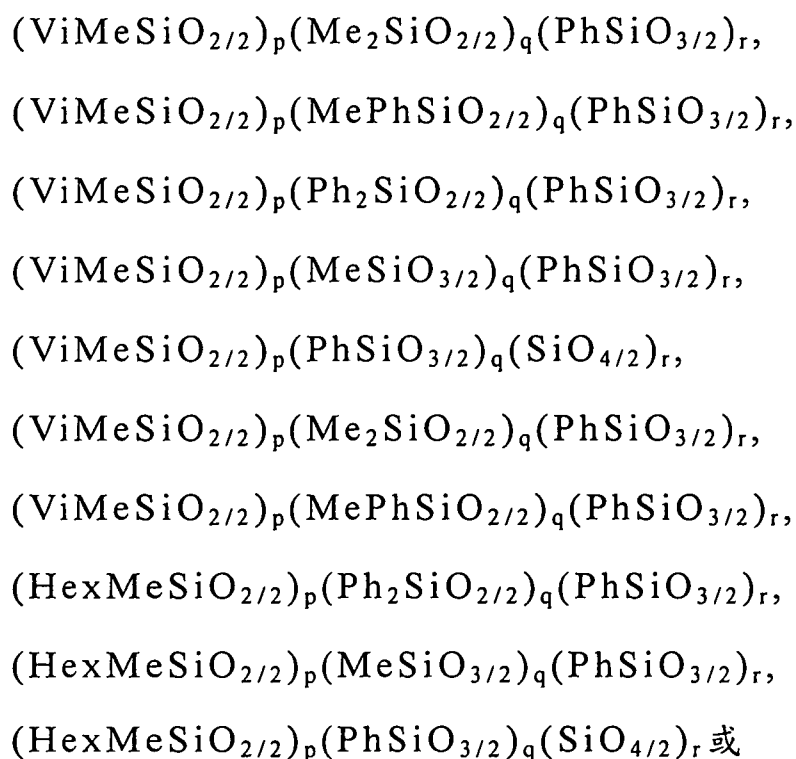
組份 (I)

組份 (I) 可包含具有以 $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式的烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷。烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷可具有直鏈、支鏈、環狀或樹脂矽氧烷結構。烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷可為單一組份或為包含一種以上烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷之組合。組份 (I) 可包含支鏈烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷及直鏈烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷。支鏈烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷之相對量可在基於組合物之重量 $(0.01\% \text{ 至 } 35\%)$ 之範圍內且或者 $(1\% \text{ 至 } 15\%)$ 之範圍內。各 R^1 獨立地為具有 2 至 12 個碳原子之烯基。烯基之實例為 (但不限於) 乙烯基、烯丙基、丁烯基及己烯基。烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷中之烯基可位於單價、二價及三價矽氧烷單元上。各 R^2 獨立地為甲基或苯基。至少 30 mol% 至 90 mol% 之 R^2 可為苯基。不希望受限於理論，據認為可選擇苯基之量以改良組份 (I) 與 (II) 之相容性。組份 (I) 中之甲基及苯基可位於單價、二價及三價矽氧烷單元上。在上式中，a 及 b 為滿足以下等式

之正數： $a+b=1$ 至 2.2 且 $a/(a+b)=0.001$ 至 0.05 。組份(I)可包含諸如以下之聚有機矽氧烷：



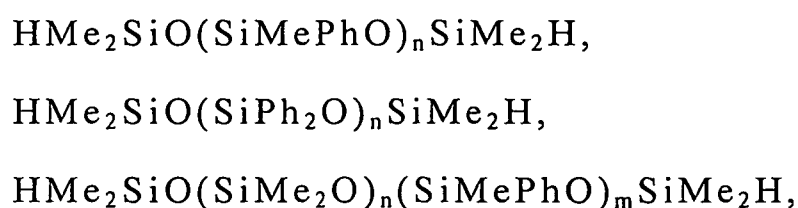




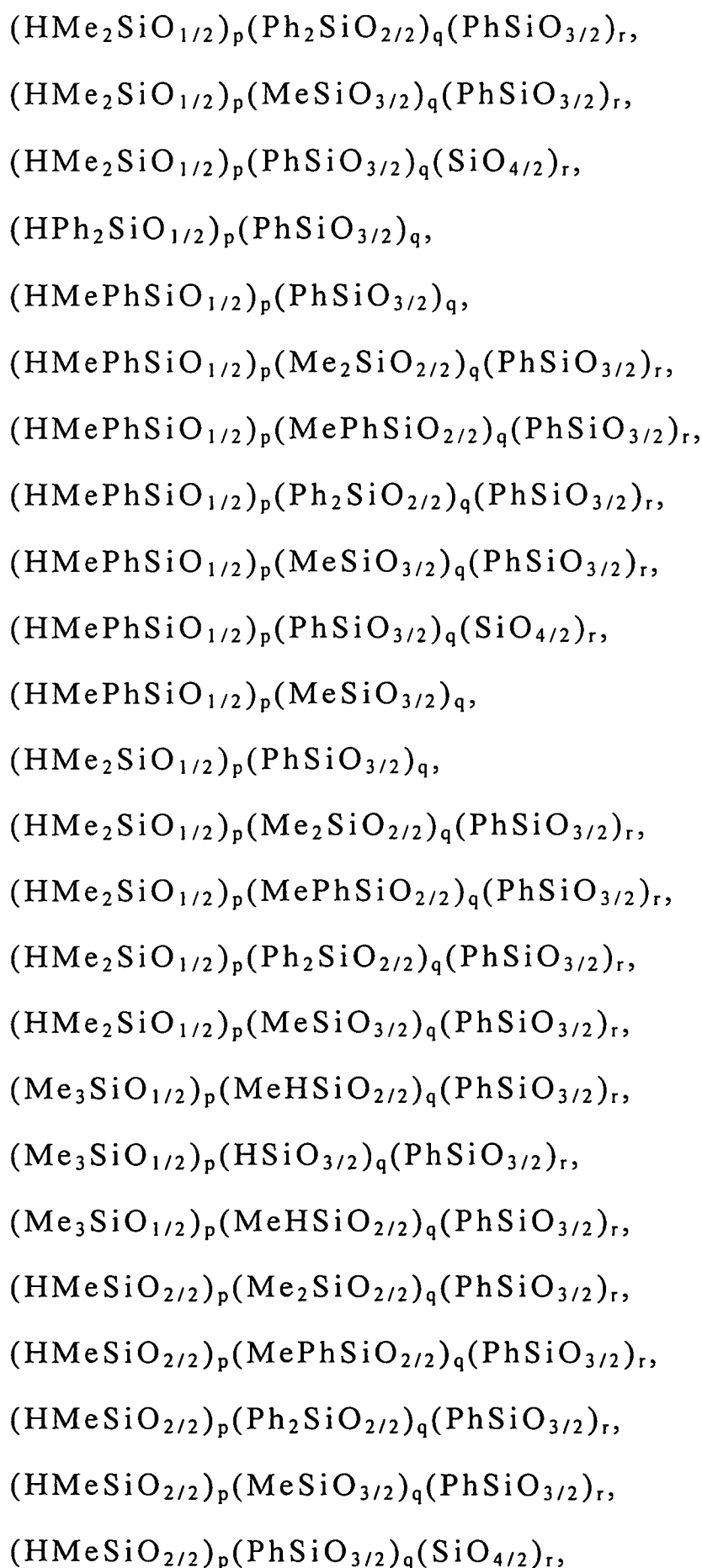
其組合。

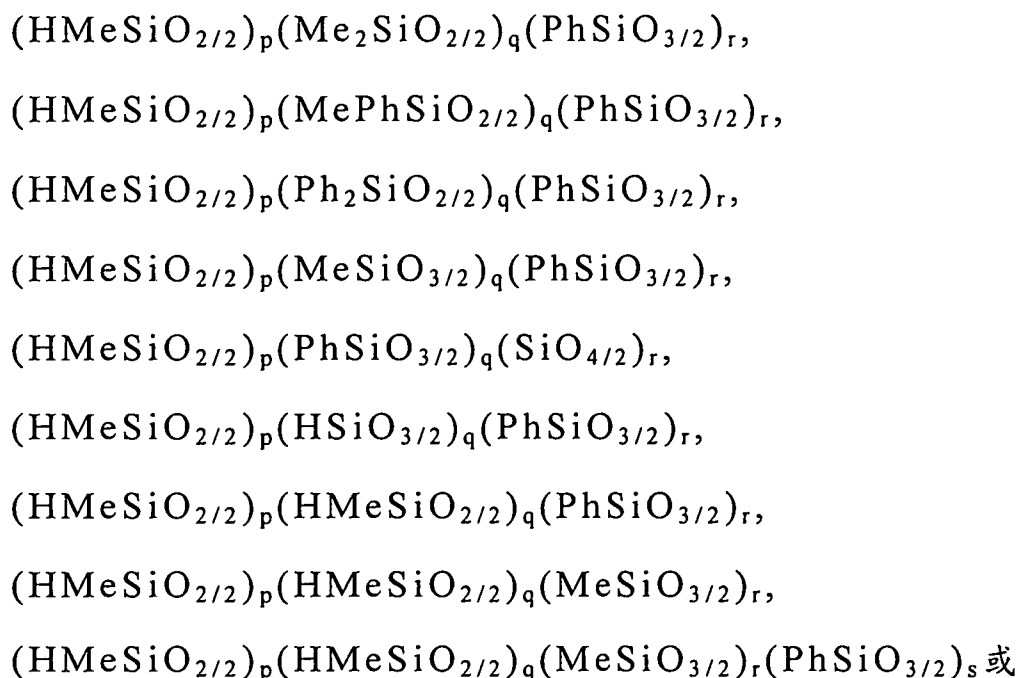
在上述式中， n 、 m 、 l 為小於200之正數，其意謂聚合物中各單體單元之平均數，且 p 、 q 、 r 及 s 意謂總平均組成中各單體單元之平均莫耳百分數。

或者，組份(I)可包含具有以 $\text{H}_a\text{R}^2_b\text{SiO}_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式的Si-H官能性含苯基聚有機矽氧烷，其中 R^2 、 a 及 b 如上所述。Si-H官能性含苯基聚有機矽氧烷可具有直鏈、支鏈或環狀矽氧烷結構。Si-H官能性含苯基聚有機矽氧烷可為單一組份或為包含一種以上SiH官能性含苯基聚有機矽氧烷之組合。組份(I)可包含諸如以下之聚有機矽氧烷：



$\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_n\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMePhO})_n\text{SiMePhH},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_n\text{SiMePhH},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMePhH},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMePhH},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_2\text{H},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMePhH},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMePhH},$
 $\text{HMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMePhH},$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHO})_m\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHO})_l\text{SiMe}_3,$
 $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q,$
 $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$





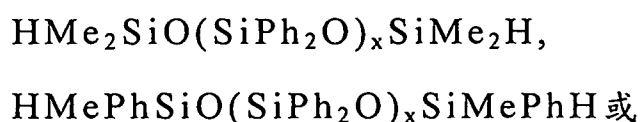
其組合。

在上述式中， n 、 m 、 l 、 p 、 q 、 r 及 s 如上所述。

製備適於用作組份(I)之直鏈、支鏈及環狀聚有機矽氧烷之方法為此項技術中熟知的，諸如在有機鹵矽烷或有機烷氧基矽烷水解後縮合或平衡。

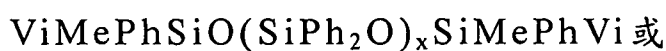
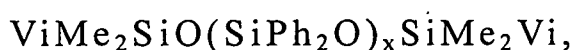
組份(II)經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷

組份(II)可包含具有以 $\text{HR}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{H}$ 表示之分子式的經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷。組份(II)可為單一組份或為包含一種以上經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷之組合。各 R^3 獨立地為甲基或苯基。式中各 x 為2至8之整數，且 x 平均為2至4。組份(II)可包含諸如以下之寡聚二苯基矽氧烷：



其組合，其中 x 如上所述。

或者，組份(II)可包含具有以 $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$ 表示之分子式的烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其中 R^1 、 R^3 及 x 如上所述。烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷可為單一組份或為包含一種以上烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷之組合。烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷之實例為



其組合，其中 x 如上所述。

製備適於用作組份(II)之寡聚二苯基矽氧烷之方法為此項技術中熟知的，諸如在二苯基二氯矽烷或二苯基烷氧基矽烷水解並縮合後封端。

組份(III)氫化矽烷化催化劑

組份(III)為氫化矽烷化催化劑。將組份(III)以基於組合物重量 0.1 至 1000 ppm(或者 1 至 500 ppm，或者 2 至 200 ppm、或者 5 至 150 ppm)鉑族金屬之量添加至組合物中。合適之氫化矽烷化催化劑為此項技術中已知的且可購得。組份(III)可包含選自鉑、銨、鈦、鈹、鐵或銨金屬之鉑族金屬或其有機金屬化合物或其組合。組份(III)之實例為諸如氯鉑酸、六水合氯鉑酸、二氯化鉑之化合物及該等化合物與低分子量有機聚矽氧烷之錯合物或微封裝於基板或核殼類型結構中之鉑化合物。鉑與低分子量有機聚矽氧烷之錯合物包括含鉑 1,3-二乙基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合

物。此等錯合物可微封裝於樹脂基板中。

適用於組合物(III)之氫化矽烷化催化劑描述於(例如)美國專利 3,159,601、3,220,972、3,296,291、3,419,593、3,516,946、3,814,730、3,989,668、4,784,879、5,036,117 及 5,175,325 以及 EP 0 347 895 B 中。

可選組份

除組份(I)-(III)以外，亦可將可選組份添加至組合物中。合適之可選組份包括(IV)共交聯劑、(V)黏著促進劑、(VI)填充劑、(VII)處理劑、(VIII)光學活性劑、(IX)固化改質劑、(X)流變改質劑及其組合。

組份(IV)共交聯劑

組份(IV)為共交聯劑。可將組份(IV)以基於組合物重量 0.01 至 50 重量份(或者 0.01 至 25 重量份且或者 1 至 5 重量份)之量添加至組合物中。組份(IV)可包含具有不同於組份(II)以 $H_cR^dSiO_{(4-c-d)/2}$ 表示之平均成份式的氫矽烷基官能性聚有機矽氧烷。各 R^4 獨立地為甲基或苯基。至少 30 mol% 之 R^4 為苯基。在上式中，a 及 b 為滿足以下等式之正數： $c+d=1$ 至 2.2 且 $c/(c+d)=0.001$ 至 0.05。

組份(V)黏著促進劑

組份(V)為黏著促進劑。可將組份(V)以基於組合物重量 0.01 至 50 重量份(或者 0.01 至 10 重量份且或者 0.01 至 5 重量份)之量添加至組合物中。組份(V)可包含(i)烷氧基矽烷，(ii)烷氧基矽烷與羥基官能性聚有機矽氧烷之組合，或(iii)其組合，或組份(V)(i)、(ii)或(iii)與過渡金屬螯合劑之組

合。

或者，組份(V)可包含不飽和或環氧基官能性化合物。合適之環氧基官能性化合物為此項技術中已知的且可購得，例如參見美國專利第4,087,585號、第5,194,649號、第5,248,715號及第5,744,507號第4-5行。組份(V)可包含不飽和或環氧基官能性烷氧基矽烷。舉例而言，不飽和或環氧基官能性烷氧基矽烷可具有式 $R^5_eSi(OR^6)_{(4-e)}$ ，其中e為1、2或3，或者e為1。各 R^5 獨立地為單價有機基團，其限制條件為至少一個 R^5 為不飽和有機基團或環氧基官能性有機基團。 R^5 之環氧基官能性有機基團之實例為3-縮水甘油氧基丙基及(環氧基環己基)乙基。 R^5 之不飽和有機基團之實例為3-甲基丙烯醯氧基丙基、3-丙烯醯氧基丙基及諸如乙烯基、烯丙基、己烯基、十一碳烯基之不飽和單價烴基。各 R^6 獨立地為具有1至4個碳原子或者1至2個碳原子之未經取代飽和烴基。 R^6 之實例為甲基、乙基、丙基及丁基。

合適之環氧基官能性烷氧基矽烷之實例包括3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷、(環氧基環己基)乙基二甲氧基矽烷、(環氧基環己基)乙基二乙氧基矽烷及其組合。合適之不飽和烷氧基矽烷之實例包括乙烯基三甲氧基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、己烯基三甲氧基矽烷、十一碳烯三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷及其組合。

組份(V)可包含環氧基官能性矽氧烷，諸如經羥基封端之聚有機矽氧烷與環氧基官能性烷氧基矽氧烷之反應產物(如上所述)，或經羥基封端之聚有機矽氧烷與環氧基官能性烷氧基矽氧烷之物理摻合物。組份(V)可包含環氧基官能性烷氧基矽氧烷與環氧基官能性矽氧烷之組合。舉例而言，組份(V)之實例為3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽氧烷與經羥基封端之甲基乙烯基矽氧烷與3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽氧烷之反應產物的混合物，或3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽氧烷與經羥基封端之甲基乙烯基矽氧烷的混合物，或3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽氧烷與經羥基封端之甲基乙烯基/二甲基矽氧烷共聚物的混合物，或3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽氧烷與經羥基封端之甲基乙烯基/甲基苯基矽氧烷共聚物的混合物。當以物理摻合物而非反應產物之形式使用時，此等組份可分開儲存於多份套組中。

合適之過渡金屬螯合劑包括鈦酸鹽、諸如乙醯基丙酮酸鈹之鈹酸鹽、諸如乙醯基丙酮酸鋁之鋁螯合劑及其組合。過渡金屬螯合劑及其製備方法為此項技術中已知的，例如參見美國專利第5,248,715號、EP 0 493 791 A1及EP 0 497 349 B1。

組份(VI)填充劑

組份(VI)為填充劑。添加至組合物中之組份(VI)的量取決於選定之填充劑之類型及所得之光學透明度。可將組份(VI)以基於組合物重量0.1%至50%(或者0.1%至25%)之量添加至組合物中。合適之填充劑包括諸如二氧化矽之補強填

充劑。合適之補強填充劑為此項技術中已知的且可購得，諸如 Massachusetts 之 Cabot Corporation 之名為 CAB-O-SIL 的煙霧狀二氧化矽固體。

亦可使用傳導性填充劑(亦即導熱、導電或既導熱亦導電之填充劑)作為組份(VI)。合適之傳導性填充劑包括金屬顆粒、金屬氧化物顆粒及其組合。合適之導熱性填充劑之實例為氮化鋁，氧化鋁，鈦酸鋁，氧化鈹，氮化硼，金剛石，石墨，氧化鎂，諸如銅、金、鎳或銀之金屬顆粒，碳化矽，碳化鎢，氧化鋅及其組合。

傳導性填充劑為此項技術中已知的且可購得，例如參見美國專利第 6,169,142 號(第 4 行第 7-33 列)。舉例而言，CB-A20S 及 Al-43-Me 為可自 Showa-Denko 購得之具有不同粒度的氧化鋁填充劑，且 AA-04、AA-2 及 AA18 為可自 Sumitomo Chemical Company 購得之氧化鋁填充劑。銀填充劑可自 Attleboro, Mass., U.S.A 之 Metalor Technologies U.S.A. Corp. 購得。氮化硼填充劑可自 Advanced Ceramics Corporation, Cleveland, Ohio, U.S.A. 購得。

對於填充劑顆粒之形狀無特別限制，然而圓形或球形顆粒可防止黏度在組合物中具有高填充劑負載後增加至不良水平。

可使用具有不同粒度及不同粒度分佈之填充劑之組合。舉例而言，可需要將具有較大平均粒度之第一填充劑與具有較小平均粒度之第二填充劑以符合最密裝填理論分佈曲線之比例組合。此可改良裝填效率且可降低黏度並增強熱

傳遞。

所有或一部分填充劑可包含間隔劑。間隔劑可包含諸如聚苯乙烯之有機顆粒，諸如玻璃之無機顆粒或其組合。間隔劑可導熱、導電或既可導熱亦可導電。間隔劑可具有25微米至250微米之粒度。間隔劑可包含單分散珠粒。間隔劑之量取決於多種因素，包括顆粒分佈，佈置組合物期間施加之壓力及佈置溫度。

組份(VII)處理劑

可視情況使用組份(VII)處理劑對填充劑進行表面處理。處理劑及處理方法為此項技術中已知的，例如參見美國專利第6,169,142號(第4行第42列至第5行第2列)。可在將組份(VI)與組合物之其他組份組合之前用處理劑處理組份(VI)，或可原位處理組份(VI)。

處理劑可為具有結構式 $R^7_fSi(OR^8)_{(4-f)}$ 之烷氧基矽烷，其中 f 為1、2或3，或者 f 為3。各 R^7 獨立地為經取代或未經取代的具有1至50個碳原子之單價烴基。 R^7 之實例為烷基，諸如己基、辛基、十二烷基、十四烷基、十六烷基及十八烷基；及芳基，諸如苯甲基、苯基及苯乙基。 R^7 可為飽和或不飽和、支鏈或未分支及未經取代的。 R^7 可為飽和、未分支及未經取代的。

各 R^8 獨立地為未經取代飽和的具有1至4個碳原子或者1至2個碳原子之烴基。處理劑之實例為己基三甲氧基矽烷、辛基三乙氧基矽烷、癸基三甲氧基矽烷、十二烷基三甲氧基矽烷、十四烷基三甲氧基矽烷、苯基三甲氧基矽

烷、苯乙基三甲氧基矽烷、十八烷基三甲氧基矽烷、十八烷基三乙氧基矽烷及其組合。

亦可使用烷氧基官能性寡聚矽氧烷作為處理劑。烷氧基官能性寡聚矽氧烷及其製備方法為此項技術中已知的，例如參見EP 1 101 167 A2。舉例而言，合適之烷氧基官能性寡聚矽氧烷包括結構式為 $(R^9O)_gSi(OSiR^{10}_2R^{11})_{4-g}$ 之烷氧基官能性寡聚矽氧烷。在此式中， g 為1、2或3，或者 g 為3。各 R^9 可獨立地為烷基。各 R^{10} 可獨立地選自飽和及不飽和的具有1至10個碳原子之單價烴基。各 R^{11} 可為飽和或不飽和的具有至少11個碳原子之單價烴基。

可使用如下物質處理金屬填充劑，諸如十八烷基硫醇及其他之烷基硫醇，及諸如油酸、硬脂酸之脂肪酸，鈦酸鹽，鈦酸鹽偶合劑，鋇酸鹽偶合劑及其組合。

用於氧化鋁或鈍化氮化鋁之處理劑可包括烷氧基矽烷基官能性烷基甲基聚矽氧烷(例如， $R^{12}_hR^{13}_iSi(OR^{14})_{(4-h-i)}$ 之部分水解縮合物或共水解縮合物或混合物)、類似材料(其中可水解基團為矽氮烷、醯氧基或肟基)。在所有此等處理劑中，與Si連接之基團(諸如上式中之 R^{12})為長鏈不飽和單價烴或單價芳族官能性烴。各 R^{13} 獨立地為單價烴基，且各 R^{14} 獨立地為具有1至4個碳原子之單價烴基。在上式中， h 為1、2或3且 i 為0、1或2，其限制條件為 $h+i$ 為1、2或3。熟習此項技術者可使特定處理最優化以輔助填充劑分散而無需不當實驗。

組份(VIII)光學活性劑

組份(VIII)為光學活性劑。組份(VIII)之實例包括光學擴散劑、磷光粉、光子晶體、量子點、諸如二氧化鈦奈米顆粒或奈米碳管之奈米顆粒、諸如螢光染料或吸收染料之染料及其組合。組份(VIII)之量取決於多種因素，包括選定之光學活性劑及最終應用。然而，組份(VIII)之量可在基於組合物重量0.01%至50%(或者1%至10%)之範圍內。

組份(IX)固化改質劑

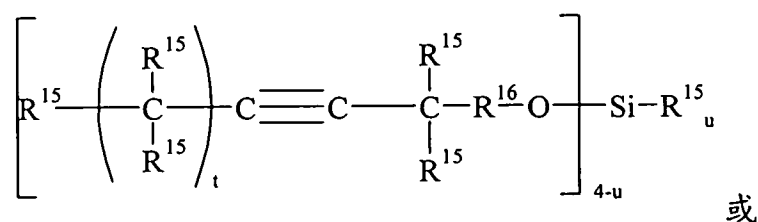
組份(IX)為固化改質劑。可添加組份(IX)以延長本發明之組合物之存放期或工作時間或兩者。可添加組份(IX)以提高組合物之固化溫度。合適之固化改質劑為此項技術中已知的且可購得。組份(IX)之實例為炔醇、環烯基矽氧烷、烯炔化合物、三唑、膈、硫醇、胼、胺、反丁烯二酸酯、順丁烯二酸酯及其組合。

舉例而言，炔醇之實例揭示於EP 0 764 703 A2及美國專利5,449,802中且包括甲基丁炔醇、乙炔基環己醇、二甲基己炔醇、1-丁炔-3-醇、1-丙炔-3-醇、2-甲基-3-丁炔-2-醇、3-甲基-1-丁炔-3-醇、3-甲基-1-戊炔-3-醇、3-苯基-1-丁炔-3-醇、4-乙基-1-辛炔-3-醇、3,5-二甲基-1-己炔-3-醇及1-乙炔基-1-環己醇及其組合。

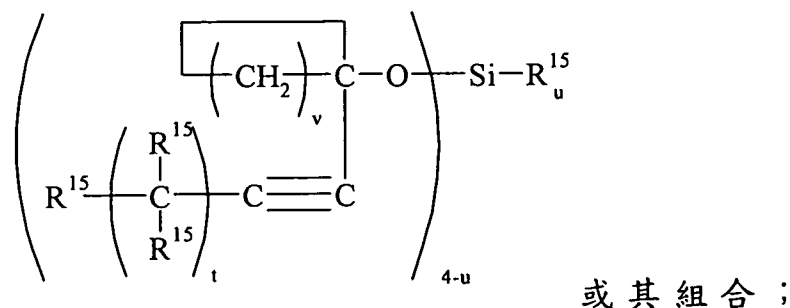
環烯基矽氧烷之實例包括甲基乙烯基環矽氧烷，其實例為1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四乙烯基環四矽氧烷、1,3,5,7-四甲基-1,3,5,7-四己烯基環四矽氧烷及其組合。烯炔化合物之實例包括3-甲基-3-戊烯-1-炔、3,5-二甲基-3-己烯-1-炔及其組合。三唑之實例包括苯并三唑。膈之實例包括三苯

麟。胺之實例包括四甲基乙二胺。反丁烯二酸酯之實例包括反丁烯二酸二烷酯、反丁烯二酸二烯酯、反丁烯二酸二烷氧基烷酯及其組合。合適之固化改質劑(例如)揭示於美國專利第3,445,420號、第3,989,667號、第4,584,361號及第5,036,117號中。

或者，組份(IX)可包含矽烷化炔系抑制劑。不希望受限於理論，據認為與由不含有抑制劑或含有炔醇之氫化矽烷化可固化組合物製備之固化聚矽氧產物相比較，添加矽烷化炔系抑制劑減少由本發明之組合物製備之固化聚矽氧產物之發黃。合適之矽烷化炔系抑制劑可具有如下通式(IX)(i)：



通式(IX)(ii)：



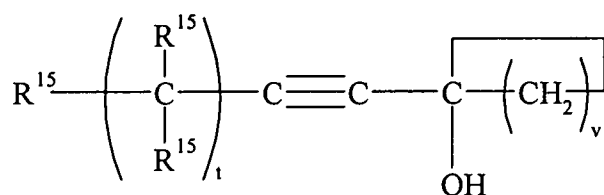
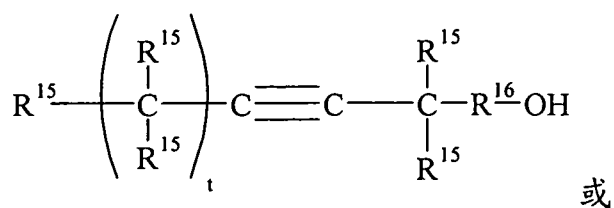
其中各 R^{15} 獨立地為氫原子或單價有機基團， R^{16} 為共價鍵或二價烴基， u 為0、1、2或3， t 為0至10且 v 為4至12。或

者 u 為 1 或 3。或者，在通式 (IX)(i) 中 u 為 3。或者，在通式 (IX)(ii) 中 u 為 1。或者 t 為 0。或者 v 為 5、6 或 7，且或者 v 為 6。 R^{15} 之單價有機基團之實例包括脂肪族不飽和有機基團、芳基或不含芳族及脂肪族不飽和性之單價經取代或未經取代之烴基(如上所述)。

矽烷化炔系抑制劑之實例為(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)三甲基矽烷、((1,1-二甲基-2-丙炔基)氧基)三甲基矽烷、雙(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)二甲基矽烷、雙(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)矽烷甲基乙烯基矽烷、雙((1,1-二甲基-2-丙炔基)氧基)二甲基矽烷、甲基(參(1,1-二甲基-2-丙炔氧基))矽烷、甲基(參(3-甲基-1-丁炔-3-氧基))矽烷、(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)二甲基苯基矽烷、(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)二甲基己烯基矽烷、(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)三乙基矽烷、雙(3-甲基-1-丁炔-3-氧基)甲基三氟丙基矽烷、(3,5-二甲基-1-己炔-3-氧基)三甲基矽烷、(3-苯基-1-丁炔-3-氧基)二苯基甲基矽烷、(3-苯基-1-丁炔-3-氧基)二甲基苯基矽烷、(3-苯基-1-丁炔-3-氧基)二甲基乙烯基矽烷、(3-苯基-1-丁炔-3-氧基)二甲基己烯基矽烷、(環己基-1-乙炔-1-氧基)二甲基己烯基矽烷、(環己基-1-乙炔-1-氧基)二甲基乙烯基矽烷、(環己基-1-乙炔-1-氧基)二苯基甲基矽烷、(環己基-1-乙炔-1-氧基)三甲基矽烷及其組合。或者，矽烷化炔系抑制劑可包含甲基(參(1,1-二甲基-2-丙炔氧基))矽烷、((1,1-二甲基-2-丙炔)氧基)三甲基矽烷或其組合。

可藉由此項技術中用於醇矽烷化之已知方法製備矽烷化

炔系抑制劑，諸如使結構式為 $R^{15}_uSiCl_{4-u}$ 之氯矽烷與結構式如下之炔醇在有酸受體存在之下反應。



在此等式中， u 、 t 、 v 、 R^{15}

及 R^{16} 如上所述。矽烷化炔系抑制劑及其製備方法之實例揭示於(例如) EP 0 764 703 A2 及美國專利 5,449,802 中。

添加至組合物中之組份(IX)之量將取決於所使用之特定固化改質劑、組份(III)之性質及量及組份(II)之組成。然而，組份(IX)之量可在基於組合物重量 0.001% 至 10% (或者 0.001% 至 5%) 之範圍內。

組份(X)流變改質劑

組份(X)為流變改質劑。可添加流變改質劑以改變組合物之搖變減黏特性。組份(X)之實例為流動控制添加劑，反應性稀釋劑，防沉劑， α -烯烴，經羥基封端之聚矽氧有機共聚物，包括(但不限於)經羥基封端之聚環氧丙烷-二甲基矽氧烷共聚物，及其組合。

其他可選組份

可另外再添加其他可選組份或用其代替所有或一部分上述組份，只要可選組份不阻礙組合物固化形成聚矽氧產物

即可。其他可選組份之實例包括(但不限於)酸受體；抗氧化劑；穩定劑，諸如氧化鎂、氫氧化鈣、金屬鹽添加劑(諸如揭示於EP 0 950 685 A1中之彼等物)、熱穩定劑及紫外線(UV)穩定劑；阻燃劑；矽烷化試劑，諸如4-(三甲基矽烷氧基)-3-戊烯-2-酮及N-(第三丁基二甲基矽烷基)-N-甲基三氟乙醯胺；乾燥劑，諸如沸石、無水硫酸鋁、分子篩(較佳具有10埃或更小孔徑)、矽藻土、矽膠及活性碳；光學擴散劑；膠態二氧化矽；及起泡劑，諸如水、甲醇、乙醇、異丙醇、苄醇、1,4丁二醇、1,5戊二醇、1,7庚二醇及矽烷醇。

總SiH:Vi比

可對組合物中之組份進行選擇以使得組合物中矽鍵合氫原子與脂肪族不飽和基團之總量的莫耳比率($\text{SiH}_{\text{tot}}/\text{Vi}_{\text{tot}}$)大於0.5且或者至少為0.8。 $\text{SiH}_{\text{tot}}/\text{Vi}_{\text{tot}}$ 可達到10.0，或者達到5.0，且或者達到3.0。不希望受限於理論，據認為若 $\text{SiH}_{\text{tot}}/\text{Vi}_{\text{tot}}$ 過低，則組合物可能無法固化或無法黏著於某些基板上，且可增加自組合物中至其他表面之滲移。不希望受限於理論，據認為若 $\text{SiH}_{\text{tot}}/\text{Vi}_{\text{tot}}$ 過高，則可阻礙諸如黏著性之表面特性且可增加自組合物中至其他表面之滲移。

套組

組合物可為單份組合物或多份組合物(諸如兩份組合物)。在多款組合物中，組份(II)及可選組份(IV)(若存在)與組份(III)分開儲存於單獨部分中。組份(I)及組份(V)-

(VIII)中之任一者可添加至任一份或兩份中。熟習此項技術者應瞭解如何選擇各份之組份而無需不當實驗。

當製成多份組合物時，其可以套組形式銷售。套組可進一步包含資訊或說明或其兩者，如如何使用套組，如何組合部分或如何固化所得組合或其組合。舉例而言，可如下製備包含部分A及部分B之套組。

部分A包含：

(I)烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷，

(III)氫化矽烷化催化劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

可選擇之(IX)流變改質劑。

部分B包含：

可選擇之(I)烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷，

(II)經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，

可選擇之(IV)共交聯劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

可選擇之(IX)流變改質劑。

或者，可如下製備具有部分A及部分B之多份組合物。

部分A包含：

(II)烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$ 表示之分子式，其中Ph表示苯基，各 R^1 獨立地為具有2至12個碳原子之烯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x為2至8之整數，且x具有2至4之平均值，

(III)氫化矽烷化催化劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

(IX)流變改質劑。

部分B包含：

(I)Si-H官能性含苯基聚有機矽氧烷，其具有以 $H_aR^2_bSiO_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式，其中各 R^2 獨立地為甲基或苯基，至少30 mol%之 R^2 為苯基，a及b為具有使得 $a+b=1$ 至2.2且 $a/(a+b)=0.001$ 至0.05之值的正數，

可選擇之(II)烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$ 表示之分子式，其中Ph表示苯基，各 R^1 獨立地為具有2至12個碳原子之烯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x為2至8之整數，且x具有2至4之平均值，

可選擇之(IV)共交聯劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

可選擇之(IX)流變改質劑。

該套組可進一步包含用於將部分A與部分B以一定重量比混合在一起之說明。可將部分A與部分B以部分A：部分B (A:B)為0.05:1至20:1(或者0.1:1至10:1，或者1:1至5:1)之比率混合在一起。

製造組合物之方法

可以任何適宜方法藉由混合組份來製備上述組合物。舉例而言，可藉由在環境溫度下混合所有組份來製備組合物。對所使用之混合器無特別限制且其將由組份及組合物之黏度確定。合適之混合器包括(但不限於)捏合機類型 σ 刮刀混合器、雙行星混合器、非侵入性混合器(諸如依靠離心運動之非侵入性混合器)及兩輥及三輥橡膠研磨機。可視情況在混合後過濾組合物。熟習此項技術者能夠藉由上文所揭示之方法及下文所述實例中之方法製備組合物而無需不當實驗。

發光裝置

本發明之組合物適用於需要光學透射特性或黏著特性或機械特性或其兩者之一系列應用。舉例而言，上述組合物固化後形成具有高黏著強度及機械特性之光學透明材料。

取決於多種因素，包括組份(I)及組份(II)及添加至組合物中之任何可選組份之類型及濃度，使用本發明之組合物

製備之固化聚矽氧產物之特性可自硬質樹脂至彈性體至凝膠體變化。固化聚矽氧產物較佳為軟彈性體或凝膠體。使用該等組合物製備之固化產物適用於如封裝劑或塗料之最終應用。

用於本發明之發光裝置之封裝或塗佈技術為此項技術中熟知的且可用於本發明中。該等技術包含澆鑄、分散、成形及類似技術。舉例而言，在將發光裝置封裝於未經固化之組合物中後，通常在模具中進行組合物之固化。可將此等組合物藉由加熱在一或多個階段中固化。舉例而言，在一實施例中，固化可在室溫至200℃範圍內之溫度下進行。

發光裝置可承受來自焊接條件之熱衝擊及在發光條件下之熱及光曝露。舉例而言，在260℃焊接5分鐘後(測試-1)，固化材料在400奈米(nm)處之透射率損失小於10%。在焊接製程期間，固化組合物未顯示分層或破裂。自以下具有照明之可靠性測試條件亦可觀察到類似穩定性：-40℃與120℃之間的500個熱循環(測試-2)，在85℃/85%相對濕度下曝露1000小時(測試-3)及150℃下曝露1000小時(測試-4)。

實例

此等實例向一般技術者說明本發明且不意欲限制申請專利範圍中所述之本發明之範疇。

參考實例 1-HMe₂SiO(Ph₂SiO)₂SiMe₂H之製備

在配有溫度計、機械攪拌器、氮氣入口管及冷凝器的四

頭1L燒瓶中，將735.6公克(g)二苯基二甲氧基矽烷、45.2 g乙酸及670毫克(mg)三氟甲烷磺酸置於氮氣下。接著經40分鐘(min)將反應混合物加熱至55°C。加熱後80 min，添加4.5 g碳酸鈣中止反應。蒸發反應物得到60 g透明油狀物。將其藉由自正己烷再結晶而純化得到純 $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_2\text{Me}$ 。

在配有溫度計、機械攪拌器、壓力均衡滴液漏斗及冷凝器的4頸0.5-L燒瓶中，將128 g $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_2\text{Me}$ 、73.8 g 1,1,3,3-六甲基二矽氧烷及34.7 g乙酸置於氮氣下。為使烷氧基矽烷溶解，將100 ml甲苯添加至燒瓶中且接著將267 mg三氟甲烷磺酸添加至反應混合物中。在50°C下加熱反應混合物。在50°C下老化45分鐘後，將28.1 g乙酸酐經30 min時段緩慢添加至反應混合物中。在添加後，將反應混合物在40-50°C下保持靜置2小時(h)。在冷卻至25°C後，將反應混合物轉移至具有170 ml甲苯之1-1分離漏斗中。每次用50毫升(ml)水將有機層洗滌6次。蒸發殘餘有機層以得到153 g無色液體。

參考實例2- $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ 之製備

在配有溫度計、機械攪拌器、壓力均衡滴液漏斗及冷凝器的4頸2-L燒瓶中，將977.6 g二苯基二甲氧基矽烷、1.497 g三氟甲烷磺酸及144 g乙酸按此順序置於氮氣下。在將反應混合物加熱至42°C後，在無任何加熱之情況下在15 min期間反應溫度逐漸升至64°C。在反應溫度降至62°C後(20 min之後)，將反應混合物回流15 min。蒸發混合物得到粗中間物 $\text{MeO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{OMe}$ ，其為仍含有三氟甲烷

磺酸之混合物。

在上述殘餘物中添加258 g 1,1,3,3-四甲基二矽氧烷。在50℃下加熱混合物後，在混合物中緩慢添加192 g乙酸，同時將坩堝溫度維持在49-51℃。在添加後，反應溫度維持在50℃歷經5 min。在反應混合物中緩慢添加163 g乙酸酐以藉助於水浴將溫度維持在48-52℃。在完成添加後，將反應混合物在50℃至51℃下保持靜置45 min。在冷卻至室溫後，將反應混合物轉移到具有200 ml庚烷之2-1分離漏斗中。每次用50 ml水將有機層洗滌6次。蒸發殘餘有機層以得到1005 g無色液體。

使用二苯基二甲氧基矽烷、三氟甲烷磺酸、乙酸及乙酸酐製備 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ 。

參考實例3-組合物及固化組合物之表徵

組合物由其在25℃下之黏度及25℃下587 nm光之折射率來表徵。藉由在150℃烘箱中將組合物加熱1 min而製備之固化聚矽氧產物由其在10 mm光路長度下在400 nm處的透射率及硬度計A或D硬度來表徵。

參考實例4-發光裝置之製備

如下製備圖1中所示之發光二極體裝置。將GaN化合物半導體(LED)晶片2置於聚鄰苯二甲醯胺(PPA)罩殼1中且晶粒接合至具有導電膏之引線框架之內部引線3部分，且接著使半導體晶片與金導線4導線接合。將如本文所述之聚矽氧組合物塗佈於半導體晶片上，隨後在150℃烘箱中固化1小時而形成固化聚矽氧5。

參考實例 5-發光裝置之可靠性測試

根據參考實例 3 製備用於透射 % 測試之樣品，且將樣品單獨曝露於以下條件：(1) 在 260°C 熱板上加熱 5 min，(2) 在 150°C 烘箱中加熱 100 h，(3) 在 85% 相對濕度下在 85°C 下加熱 100 h 及 (4) 施用 -40°C 與 100°C 之間的 500 個熱循環測試及 (5) 在 150°C 下加熱 1000 h。亦根據參考實例 4 製備樣品並將其曝露於相同條件下。在曝露後，用顯微鏡觀察封裝劑外觀在分層、破裂或其他變形方面的情況。量測曝露前後之透射 %，且以初始輸出值為 100 得相對輸出值。

實例 1-本發明之可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{20}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (44.11%)、 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_4\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (8.22%)、 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.15}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.45}$ (28.78%) 與 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ (21.89%) 之混合物。在 100 份上述混合物中添加 0.38 份催化劑 (其為 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與 10% 含鉑 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有 4.0% 鉑含量)、1.0 份作為黏著促進劑之含 (縮水甘油氧基丙基) 三甲氧基矽烷之經羥基封端之聚 (二甲基矽氧烷/甲基乙烯基矽氧烷) 及 0.05 份作為固化改質劑之乙基環己醇而得到透明組合物。

實例 2-本發明之可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備 40.0:31.1:27.9:1.0 之比率的 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{44}(\text{SiMeViO})_{1.2}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}$

$(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ 、 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ 與 $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ 之混合物。在 100 份上述混合物中添加 0.005 份催化劑(其為 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與 10% 含鉑 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有 5.0% 鉑含量)、0.1 份作為黏著促進劑之含(縮水甘油氧基丙基)三甲氧基矽烷之經羥基封端之聚(甲基苯基矽氧烷/甲基乙烯基矽氧烷)及 0.01-1 份作為固化改質劑之乙炔基環己-1-醇而得到透明組合物。

實例 3-本發明之可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備 51.5:2.5:2.5:43.5 之比率的 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ 、 $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_2$ 、 $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_3$ 與 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_2\text{SiMe}_2\text{H}$ 之混合物。在 100 份上述混合物中添加 0.01 份催化劑(其為 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與 10% 含鉑 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有 5.0% 鉑含量)及 0.05 份作為固化改質劑之乙炔基環己-1-醇而得到透明組合物。

比較實例 1-可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{20}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (37.54%)、 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_4\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (6.11%)、 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.15}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{0.40}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.45}$ (43.65%) 與 $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{H})_2$ (12.7%) 之混合物。在 100 份上述混合物中添加 0.38 份催化劑(其為 90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與 10% 含鉑 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合

物，該混合物具有4.0%鉑含量)及0.05份作為固化改質劑之乙炔基環己醇而得到透明組合物。

比較實例2-可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備44.4:36.3:19.4之比率的 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{50}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ 與 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_4\text{SiMe}_2\text{H}$ 之混合物。在100份上述混合物中添加0.005份催化劑(其為90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與10%含鉑1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有5.0%鉑含量)、0.1份作為黏著促進劑之含(縮水甘油氧基丙基)三甲氧基矽烷之經羥基封端之聚(甲基苯基矽氧烷/甲基乙烯基矽氧烷)及0.01-1份作為固化改質劑之乙炔基環己-1-醇而得到透明組合物。

比較實例3-可固化聚矽氧組合物

藉由混合組份製備69.5:2.8:27.7之比率的 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ 、 $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{Vi})_2$ 與 $\text{Ph}_2\text{Si}(\text{OSiMe}_2\text{H})_2$ 之混合物。在100份上述混合物中添加0.01份催化劑(其為90% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與10%含鉑1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有5.0%鉑含量)及0.05份作為固化改質劑之乙炔基環己-1-醇而得到透明組合物。

根據參考實例3-5評估實例1-3及比較實例1-3中之組合物。結果示於表1中。

實例4

藉由混合組份製備 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (54.84%)、 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{MePhSiO}_{2/2})_{75}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ (20.72%)、 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_{0.25}(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.75}$ (7.28%)、 $(\text{PhSiO}_{3/2})_{0.4}(\text{Me}_2\text{HSiO}_{1/2})_{0.6}$ (0.51%)與 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_{2.5}\text{SiMe}_2\text{H}$ (15.48%)之混合物。在100份上述混合物中添加0.77份催化劑(99% $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、0.38% 1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷與0.62%含鉑1,3-二乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷錯合物的混合物，該混合物具有25.0%鉑含量)及0.39份抑制劑(其為99% $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_{19}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 與1%作為固化改質劑之1-乙炔基-1-環己醇的混合物)而得到透明組合物。根據參考實例5之測試(5)評估組合物。結果示於表2中。

表 1

	實例1	實例2	實例3	比較實例1	比較實例2	比較實例3
黏度(mPa·s)	2,000	2,000	3,300	1,600	1,700	1,150
折射率	1.5495	1.546	1.545	1.53	1.540	1.531
硬度計OO硬度	45	-	-	40	-	-
硬度計A硬度	-	50	-	-	50	-
硬度計D硬度	-	-	45	-	-	55
抗拉強度(MPa)	-	1.11	-	-	0.57	-
斷裂伸長率(%)	-	81	-	-	56	-
測試1 外觀/透射%	無變化/100%	無變化/100%	無變化/99%	無變化/96%	無變化/98%	分層/75%
測試2 外觀/透射%	無變化/99%	無變化/99%	無變化/97%	破裂/56%	分層/60%	分層/55%
測試3 外觀/透射%	無變化/100%	無變化/99%	無變化/98%	破裂/60%	分層/65%	分層/65%
測試4 外觀/透射%	無變化/95%	無變化/93%	無變化/92%	破裂/30%	分層/45%	分層/30%

表 2

	實例4
黏度(mPa·s)	4,505
633 nm處之折射率	1.5494
硬度計OO硬度	45
硬度計A硬度	-
硬度計D硬度	-
抗拉強度(MPa)	-
斷裂伸長率(%)	-
測試5外觀	無變化
測試5裝置缺陷	0%

【圖式簡單說明】

圖 1 為發光裝置的橫截面影像。

【主要元件符號說明】

- 1 罩殼
- 2 LED 晶片
- 3 內部引線
- 4 導線
- 5 固化聚矽氧



十、申請專利範圍：

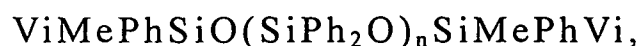
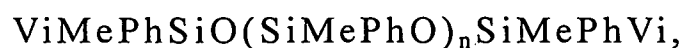
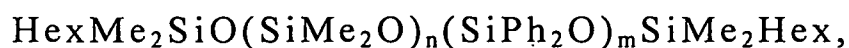
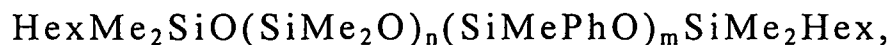
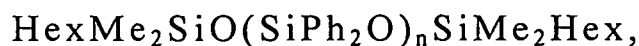
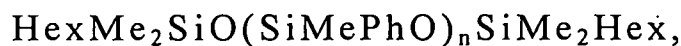
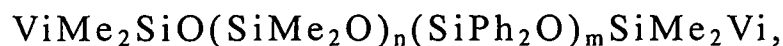
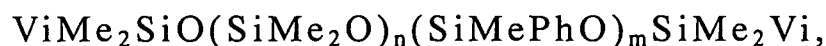
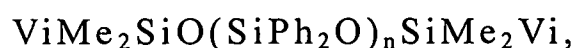
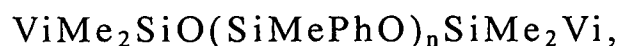
1. 一種組合物，其係藉由混合如下組份而製備，該等組份包含：

(I) 烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷，其具有以 $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式，其中 R^1 為具有 2 至 12 個碳原子之烯基，各 R^2 獨立地為甲基或苯基，至少 30 mol% 之 R^2 為苯基， a 及 b 為具有使得 $a+b=1$ 至 2.2 且 $a/(a+b)=0.001$ 至 0.05 之值的正數；

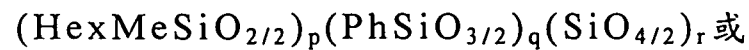
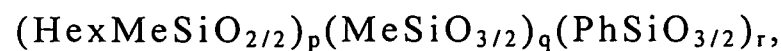
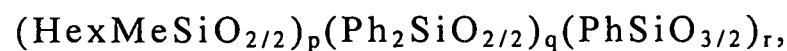
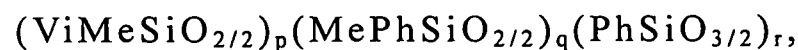
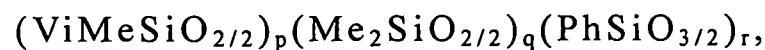
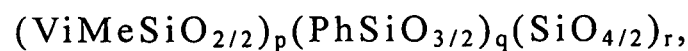
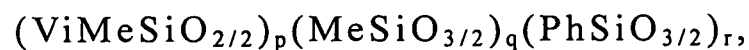
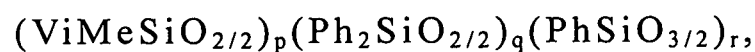
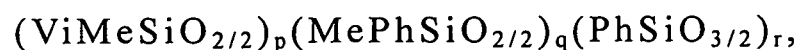
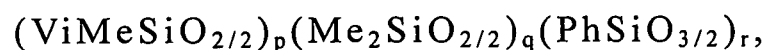
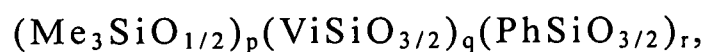
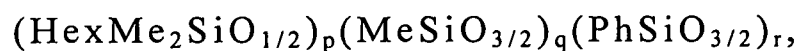
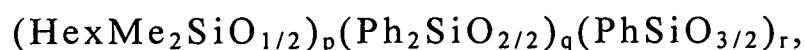
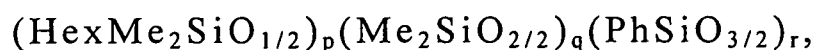
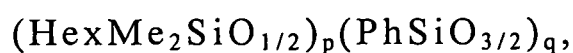
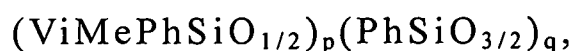
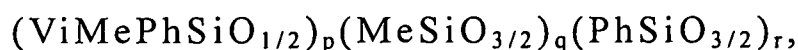
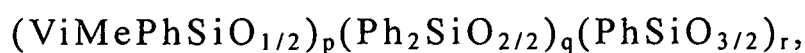
(II) 經氫二有機矽氧烷基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $HR^3_2 SiO(SiPh_2O)_x SiR^3_2 H$ 表示之分子式，其中 Ph 表示苯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基， x 為 2 至 8 之整數，且 x 具有 2 至 4 之平均值；及

(III) 氫化矽氧烷化催化劑。

2. 如請求項 1 之組合物，其中組份 (I) 係選自：



$\text{ViMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m\text{SiMePhVi},$
 $\text{ViMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m\text{SiMePhVi},$
 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeViO})_m\text{SiMe}_2\text{Vi},$
 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMe}_2\text{Vi},$
 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMe}_2\text{Vi},$
 $\text{ViMePhSiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeViO})_m\text{SiMePhVi},$
 $\text{ViMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMePhVi},$
 $\text{ViMePhSiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMePhVi},$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeViO})_m\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeViO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMePhO})_n(\text{SiMeHexO})_m\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiMePhO})_m(\text{SiMeHexO})_l\text{SiMe}_3,$
 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{SiMe}_2\text{O})_n(\text{SiPh}_2\text{O})_m(\text{SiMeHexO})_l\text{SiMe}_3,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{Ph}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{MeSiO}_{3/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q(\text{SiO}_{4/2})_r,$
 $(\text{HexMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q,$
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{PhSiO}_{3/2})_q,$
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{Me}_2\text{SiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$
 $(\text{ViMePhSiO}_{1/2})_p(\text{MePhSiO}_{2/2})_q(\text{PhSiO}_{3/2})_r,$



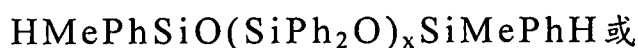
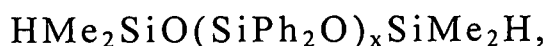
其組合，

其中 n 、 m 、 l 為小於 200 之正數，其意謂各單體單元之平

均數；且 p、q、r 及 s 意謂各單體單元之平均莫耳百分數。

3. 如請求項 1 之組合物，其中該組合物含有基於該組合物之重量 0.1% 至 35% 之支鏈烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷。

4. 如請求項 1 之組合物，其中組份 (II) 係選自：



其組合。

5. 一種組合物，其係藉由混合如下組份而製備，該等組份包含：

(I) Si-H 官能性含苯基聚有機矽氧烷，其具有以 $\text{H}_a\text{R}^2_b\text{SiO}_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式，其中各 R^2 獨立地為甲基或苯基，至少 30 mol% 之 R^2 為苯基，a 及 b 為具有使得 $a+b=1$ 至 2.2 且 $a/(a+b)=0.001$ 至 0.05 之值的正數；

(II) 烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $\text{R}^1\text{R}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{R}^1$ 表示之分子式，其中 Ph 表示苯基，各 R^1 獨立地為具有 2 至 12 個碳原子之烯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x 為 2 至 8 之整數，且 x 具有 2 至 4 之平均值；及

(III) 氫化矽烷化催化劑。

6. 如請求項 1 至 5 中任一項之組合物，其進一步包含選自以下之組份：(IV) 共交聯劑、(V) 黏著促進劑、(VI) 填充劑、(VII) 處理劑、(VIII) 光學活性劑、(IX) 固化改質劑、

(X)流變改質劑或其組合。

7. 一種聚矽氧產物，其係藉由固化如請求項1至5中任一項之組合物而製得。

8. 一種裝置，其包含：

i)一半導體晶片，

ii)一引線框架，

iii)一將該半導體晶片接合至該引線框架之金屬導線，及

iv)塗佈於該半導體晶片上之如請求項7之聚矽氧產物。

9. 如請求項8之裝置，其中該半導體晶片發光。

10. 一種多份組合物，其具有部分A及部分B，其中部分A包含：

(I)烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷，其具有以 $R^1_a R^2_b SiO_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式，其中 R^1 為具有2至12個碳原子之烯基，各 R^2 獨立地為甲基或苯基，至少30 mol%之 R^2 為苯基，a及b為具有使得 $a+b=1$ 至2.2且 $a/(a+b)=0.001$ 至0.05之值的正數，

(III)氫化矽烷化催化劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

(IX)流變改質劑；

部分B包含：

可選擇之(I)烯基官能性含苯基聚有機矽氧烷，

(II)經氫二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $\text{HR}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{H}$ 表示之分子式，其中 Ph 表示苯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x 為 2 至 8 之整數，且 x 具有 2 至 4 之平均值，

可選擇之(IV)共交聯劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

可選擇之(IX)流變改質劑。

11. 一種多份組合物，其具有部分A及部分B，其中

部分A包含：

(II)烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $\text{R}^1\text{R}^3_2\text{SiO}(\text{SiPh}_2\text{O})_x\text{SiR}^3_2\text{R}^1$ 表示之分子式，其中 Ph 表示苯基，各 R^1 獨立地為具有 2 至 12 個碳原子之烯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x 為 2 至 8 之整數，且 x 具有 2 至 4 之平均值，

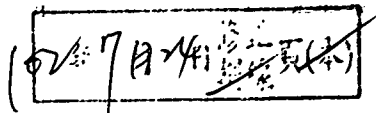
(III)氫化矽烷化催化劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及



(IX)流變改質劑；

部分 B 包含：

(I)Si-H 官能性含苯基聚有機矽氧烷，其具有以 $H_aR^2_bSiO_{(4-a-b)/2}$ 表示之平均成份式，其中各 R^2 獨立地為甲基或苯基，至少 30 mol% 之 R^2 為苯基，a 及 b 為具有使得 $a+b=1$ 至 2.2 且 $a/(a+b)=0.001$ 至 0.05 之值的正數，

可選擇之(II)烯基官能性經二有機矽烷氧基封端之寡聚二苯基矽氧烷，其具有以 $R^1R^3_2SiO(SiPh_2O)_xSiR^3_2R^1$ 表示之分子式，其中 Ph 表示苯基，各 R^1 獨立地為具有 2 至 12 個碳原子之烯基，各 R^3 獨立地為甲基或苯基，x 為 2 至 8 之整數，且 x 具有 2 至 4 之平均值，

可選擇之(IV)共交聯劑，

可選擇之(V)黏著促進劑，

可選擇之(VI)填充劑，

可選擇之(VII)處理劑，

可選擇之(VIII)固化改質劑，及

可選擇之(IX)流變改質劑。

12. 一種套組，其包含如請求項 10 或請求項 11 之多份組合物及用於將部分 A 與部分 B 以部分 A：部分 B 為 0.05:1 至 20:1 之重量比混合在一起之說明。

1998, 1999, 2000, 2001, 2002, 2003, 2004, 2005, 2006, 2007, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013, 2014, 2015, 2016, 2017, 2018, 2019, 2020, 2021, 2022, 2023, 2024, 2025, 2026, 2027, 2028, 2029, 2030, 2031, 2032, 2033, 2034, 2035, 2036, 2037, 2038, 2039, 2040, 2041, 2042, 2043, 2044, 2045, 2046, 2047, 2048, 2049, 2050, 2051, 2052, 2053, 2054, 2055, 2056, 2057, 2058, 2059, 2060, 2061, 2062, 2063, 2064, 2065, 2066, 2067, 2068, 2069, 2070, 2071, 2072, 2073, 2074, 2075, 2076, 2077, 2078, 2079, 2080, 2081, 2082, 2083, 2084, 2085, 2086, 2087, 2088, 2089, 2090, 2091, 2092, 2093, 2094, 2095, 2096, 2097, 2098, 2099, 2100, 2101, 2102, 2103, 2104, 2105, 2106, 2107, 2108, 2109, 2110, 2111, 2112, 2113, 2114, 2115, 2116, 2117, 2118, 2119, 2120, 2121, 2122, 2123, 2124, 2125, 2126, 2127, 2128, 2129, 2130, 2131, 2132, 2133, 2134, 2135, 2136, 2137, 2138, 2139, 2140, 2141, 2142, 2143, 2144, 2145, 2146, 2147, 2148, 2149, 2150, 2151, 2152, 2153, 2154, 2155, 2156, 2157, 2158, 2159, 2160, 2161, 2162, 2163, 2164, 2165, 2166, 2167, 2168, 2169, 2170, 2171, 2172, 2173, 2174, 2175, 2176, 2177, 2178, 2179, 2180, 2181, 2182, 2183, 2184, 2185, 2186, 2187, 2188, 2189, 2190, 2191, 2192, 2193, 2194, 2195, 2196, 2197, 2198, 2199, 2200, 2201, 2202, 2203, 2204, 2205, 2206, 2207, 2208, 2209, 2210, 2211, 2212, 2213, 2214, 2215, 2216, 2217, 2218, 2219, 2220, 2221, 2222, 2223, 2224, 2225, 2226, 2227, 2228, 2229, 2230, 2231, 2232, 2233, 2234, 2235, 2236, 2237, 2238, 2239, 2240, 2241, 2242, 2243, 2244, 2245, 2246, 2247, 2248, 2249, 2250, 2251, 2252, 2253, 2254, 2255, 2256, 2257, 2258, 2259, 2260, 2261, 2262, 2263, 2264, 2265, 2266, 2267, 2268, 2269, 2270, 2271, 2272, 2273, 2274, 2275, 2276, 2277, 2278, 2279, 2280, 2281, 2282, 2283, 2284, 2285, 2286, 2287, 2288, 2289, 2290, 2291, 2292, 2293, 2294, 2295, 2296, 2297, 2298, 2299, 2300, 2301, 2302, 2303, 2304, 2305, 2306, 2307, 2308, 2309, 2310, 2311, 2312, 2313, 2314, 2315, 2316, 2317, 2318, 2319, 2320, 2321, 2322, 2323, 2324, 2325, 2326, 2327, 2328, 2329, 2330, 2331, 2332, 2333, 2334, 2335, 2336, 2337, 2338, 2339, 2340, 2341, 2342, 2343, 2344, 2345, 2346, 2347, 2348, 2349, 2350, 2351, 2352, 2353, 2354, 2355, 2356, 2357, 2358, 2359, 2360, 2361, 2362, 2363, 2364, 2365, 2366, 2367, 2368, 2369, 2370, 2371, 2372, 2373, 2374, 2375, 2376, 2377, 2378, 2379, 2380, 2381, 2382, 2383, 2384, 2385, 2386, 2387, 2388, 2389, 2390, 2391, 2392, 2393, 2394, 2395, 2396, 2397, 2398, 2399, 2400, 2401, 2402, 2403, 2404, 2405, 2406, 2407, 2408, 2409, 2410, 2411, 2412, 2413, 2414, 2415, 2416, 2417, 2418, 2419, 2420, 2421, 2422, 2423, 2424, 2425, 2426, 2427, 2428, 2429, 2430, 2431, 2432, 2433, 2434, 2435, 2436, 2437, 2438, 2439, 2440, 2441, 2442, 2443, 2444, 2445, 2446, 2447, 2448, 2449, 2450, 2451, 2452, 2453, 2454, 2455, 2456, 2457, 2458, 2459, 2460, 2461, 2462, 2463, 2464, 2465, 2466, 2467, 2468, 2469, 2470, 2471, 2472, 2473, 2474, 2475, 2476, 2477, 2478, 2479, 2480, 2481, 2482, 2483, 2484, 2485, 2486, 2487, 2488, 2489, 2490, 2491, 2492, 2493, 2494, 2495, 2496, 2497, 2498, 2499, 2500, 2501, 2502, 2503, 2504, 2505, 2506, 2507, 2508, 2509, 2510, 2511, 2512, 2513, 2514, 2515, 2516, 2517, 2518, 2519, 2520, 2521, 2522, 2523, 2524, 2525, 2526, 2527, 2528, 2529, 2530, 2531, 2532, 2533, 2534, 2535, 2536, 2537, 2538, 2539, 2540, 2541, 2542, 2543, 2544, 2545, 2546, 2547, 2548, 2549, 2550, 2551, 2552, 2553, 2554, 2555, 2556, 2557, 2558, 2559, 2560, 2561, 2562, 2563, 2564, 2565, 2566, 2567, 2568, 2569, 2570, 2571, 2572, 2573, 2574, 2575, 2576, 2577, 2578, 2579, 2580, 2581, 2582, 2583, 2584, 2585, 2586, 2587, 2588, 2589, 2590, 2591, 2592, 2593, 2594, 2595, 2596, 2597, 2598, 2599, 2600, 2601, 2602, 2603, 2604, 2605, 2606, 2607, 2608, 2609, 2610, 2611, 2612, 2613, 2614, 2615, 2616, 2617, 2618, 2619, 2620, 2621, 2622, 2623, 2624, 2625, 2626, 2627, 2628, 2629, 2630, 2631, 2632, 2633, 2634, 2635, 2636, 2637, 2638, 2639, 2640, 2641, 2642, 2643, 2644, 2645, 2646, 2647, 2648, 2649, 2650, 2651, 2652, 2653, 2654, 2655, 2656, 2657, 2658, 2659, 2660, 2661, 2662, 2663, 2664, 2665, 2666, 2667, 2668, 2669, 2670, 2671, 2672, 2673, 2674, 2675, 2676, 2677, 2678, 2679, 26

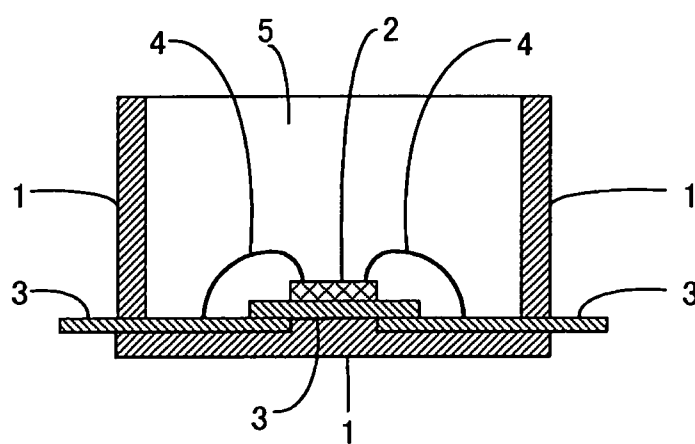


圖 1