

(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  
2011 年 9 月 29 日(29.09.2011)

(10) 国際公開番号  
**WO 2011/118108 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*H01L 33/60* (2010.01) *C08L 83/04* (2006.01)  
*B29C 45/14* (2006.01) *F21V 7/22* (2006.01)  
*B29C 47/02* (2006.01) *H01L 31/04* (2006.01)  
*C08K 3/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/073445
- (22) 国際出願日: 2010 年 12 月 24 日(24.12.2010)
- (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 2010-065888 2010 年 3 月 23 日(23.03.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社朝日ラバー(ASAHI RUBBER INC.) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さいたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 Saitama (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 田崎 益次 (TASAKI, Masutsugu) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さ

いたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 株式会社朝日ラバー内 Saitama (JP). 五十嵐 直人 (IGARASHI, Naoto) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さいたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 株式会社朝日ラバー内 Saitama (JP). 市川 明 (ICHIKAWA, Akira) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さいたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 株式会社朝日ラバー内 Saitama (JP). 小田 喜 勉 (ODAKI, Tsutomu) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さいたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 株式会社ファイナラ研究所内 Saitama (JP). 吉田 舞美 (YOSHIDA, Maimi) [JP/JP]; 〒3300801 埼玉県さいたま市大宮区土手町 2 丁目 7 番 2 株式会社ファイナラ研究所内 Saitama (JP).

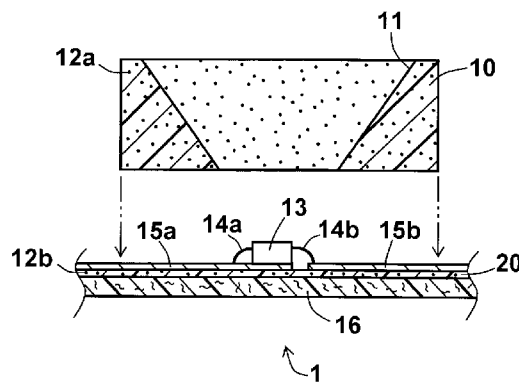
- (74) 代理人: 小宮 良雄, 外 (KOMIYA, Yoshio et al.); 〒1020082 東京都千代田区一番町 2 2 番地 1 一番町セントラルビルディング 3 F Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,

[続葉有]

(54) Title: SILICONE RESIN REFLECTIVE SUBSTRATE, MANUFACTURING METHOD FOR SAME, AND BASE MATERIAL COMPOSITION USED IN REFLECTIVE SUBSTRATE

(54) 発明の名称: シリコーン樹脂製反射基材、その製造方法、及びその反射基材に用いる原材料組成物

[図1]



(57) Abstract: Disclosed is a versatile silicone resin reflective substrate which exhibits high reflectance of high luminance light from an LED light source over a wide wavelength from short wavelengths of approximately 340-500nm, which include wavelengths from 380-400nm near the lower limit of the visible region, to longer wavelengths in the infra-red region. The silicone resin reflective substrate also exhibits superior thermal conductivity, light fastness, heat resistance, weather resistance, and flame resistance without deterioration such as yellowing caused over time by the irradiation of the high luminance light. The silicone resin reflective substrate further exhibits mechanical and chemical stability, the ability to maintain a white colour over a long period of time, and superior adhesion to metals and resins. The silicone resin reflective substrate can be easily formed as a wiring substrate, a packaging case or the like, and can be manufactured at low cost and a high rate of production. The silicone resin reflective substrate (10, 20) has a reflective layer which contains a white inorganic filler powder (12a, 12b) dispersed in a three-dimensional cross-linked silicone resin, said inorganic filler powder having a higher refractive index than the silicone resin. The reflective layer is formed on a support body as a film, a solid, or a sheet.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2011/118108 A1



GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア

(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

可視領域下限近傍の波長 380 ~ 400 nm 程度を含む、LED 光源の発光波長 340 ~ 500 nm 程度の短波長から赤外線領域の長波長に至る幅広い波長の高輝度光の反射率が高く、熱伝導性に優れ、その高輝度光が照射されても経時的に黄変したり劣化したりせず、耐光性、耐熱性、耐候性、難燃性に優れ、機械的にも化学的にも安定で、白色のまま長期間維持できるうえ、金属や樹脂への接着性に優れ、配線基板やパッケージケースなどとして、簡便に成形できて、生産効率が高く、安価に製造できる汎用性のシリコン樹脂製反射基材を提供する。シリコン樹脂製反射基材 10・20 は、三次元架橋したシリコン樹脂に、それよりも高屈折率の白色無機フィラー粉末 12 a・12 b が分散されつつ含有された反射層が、支持体上で膜状、立体状又は板状に形成されている。

## 明 細 書

### 発明の名称：

シリコーン樹脂製反射基材、その製造方法、及びその反射基材に用いる原材料組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、照明器具等の発光装置に組み込まれそれらの光源からの光を照射すべき側へ反射させたり、太陽電池アセンブリに組み込まれそれへ入射した光を反射して光電変換素子へ集光させたりするシリコーン樹脂製反射基材、その製造方法、及びその反射基材の形成に用いる原材料組成物に関するものである。

### 背景技術

[0002] 照明器具、信号機、液晶ディスプレイのバックライトなど様々な発光装置の光源として、発光ダイオード（LED）のように所望の波長光を出射する発光素子が用いられている。このような発光ダイオード、特に高輝度発光ダイオードは、白熱電球、ハロゲンランプ、水銀灯、蛍光灯などの白色系照明器具よりも、明るくて消費電力が少なく、しかも寿命が長いため、屋内外の発光装置に、組み込まれている。また、太陽光を入射して光電変換するP型シリコンとN型シリコンとからなるような光電変換素子が、太陽電池アセンブリに、組み込まれている。

[0003] このような発光素子や光電変換素子のように光が入出射する素子を実装する配線基板や、これら素子を取り巻いて収容するパッケージケースは、発光素子からの光を照射すべき側へ反射させたり、太陽電池アセンブリへ入射した光を光電変換素子へ反射させて効率よく集光させてエネルギー変換させたりするために、これらの光を反射可能なセラミック製や樹脂製の反射基材で形成されている。

[0004] 配線基板やパッケージケースの反射基材がセラミックス製であると、出射光が漏洩することにより、十分な反射効率が得られない。

- [0005] 一方、樹脂製の反射基材として、例えば、特許文献 1 に、脂環式エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂、グリシジル（メタ）アクリレート系ポリマー、白色顔料、及び硬化剤を必須成分とする樹脂組成物を、シート状ガラス繊維のような支持体である基板に含浸、乾燥させた白色プリプレグが開示されている。
- [0006] このような樹脂や、液晶ポリマー、ポリアミド、ビスマレイミド・トリアジン（BT）樹脂のような樹脂の組成物は粘性が低すぎて一度に高々数  $\mu\text{m}$  しか塗布できず、支持体の下地が透けて見えるうえ十分な反射効率が得られない。無理やり、多量に塗ったとしても、液垂れが生じたり表面ばかり優先的に溶媒揮発や硬化を引き起こして皺を生じたり、またそのせいで塗工面の中央部と端部とで塗膜厚が不均一になったりしてしまう。そのため支持体へのこのような組成物の塗工・乾燥を繰り返して二次元的な樹脂を何層にも形成して、ようやく、所望の反射率を示す数  $10\ \mu\text{m}$  程度の厚さにして、十分に白色化した反射層を形成していた。
- [0007] 又は、反射剤成分を含有する粘度の高い非シリコン系のワニス硬化させて、反射基材を形成していた。
- [0008] また、これら樹脂製やワニス製の反射基材は、一般的に黄変等耐熱性や耐光性に欠けるうえ、波長  $400\ \text{nm}$  以下の波長域の光を吸収するため反射し難い。しかもこれら樹脂製やワニス製の反射基材は、安価で成形し易いという特長を有するものの、近年の鉛フロー半田化のためにリフロー工程で  $300^\circ\text{C}$  前後に加熱されるので熱での黄変により初期劣化したり、また近年の発光波長の短波長化や高出力化等の性能向上に伴い一層高輝度の白色出射光やそれに伴う高熱に耐え切れず黄変して経時劣化したりして、表面が次第にくすんでしまい、反射効率の低下を招いてしまう。その結果、初期設計の照明特性が次第に変化し、不十分となって暗くなってしまうという問題がある。
- [0009] LED 光源の発光波長である  $340\sim500\ \text{nm}$  の短波長域から長波長の赤外線領域の波長の光を、十分に反射でき、発光装置のみならず太陽電池アセンブリ等の配線基板やパッケージケースに用いることができ、耐熱性・耐

光性に優れ、長期間の使用によって反射率が低下せず、熱伝導性に優れた、汎用性の簡易な反射基材が求められている。

- [0010] さらに、様々な形状の支持体上に反射層が設けられた反射基材の簡便な製造方法が求められている。また、反射層原材料組成物の一度の厚塗りにより簡便に反射層を、十分な反射率を示す程度の厚さの膜状、立体状又は板状に成形できる簡便な反射基材の製造方法が求められている。さらに、これら反射基材及びその製造に有用で、単回の塗布で十分な反射効率を有する反射層を形成できる簡易な組成の原材料組成物が求められている。

## 先行技術文献

## 特許文献

- [0011] 特許文献1：特開2006-316173号公報

## 発明の概要

## 発明が解決しようとする課題

- [0012] 本発明は前記の課題を解決するためになされたもので、可視領域下限近傍の波長380～400nm程度を含む、LED光源の発光波長340～500nm程度の短波長から近赤外線領域の長波長に至る幅広い波長で反射率が高く、熱伝導性に優れ、その光が照射されても経時的に黄変したり劣化したりせず、耐光性、耐熱性、耐候性、難燃性に優れ、機械的にも化学的にも安定で、白色のまま長期間、高い反射率が維持できるうえ、金属や樹脂への接着性に優れ、配線基板やパッケージケースなどとして、簡便に成形できて、生産効率が高く、安価に製造できるシリコン樹脂製反射基材を提供することを目的とする。

- [0013] また、本発明は、様々な形状の支持体上へ一度の厚塗りにより反射層を形成できる反射層原材料組成物、及びその原材料組成物を用いて、十分な反射率となる厚さの膜状、立体状又は板状に成形できる簡便なシリコン樹脂製反射基材の製造方法を提供すること別の目的とする。

## 課題を解決するための手段

- [0014] 前記の目的を達成するためになされた請求の範囲の請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、三次元架橋したシリコン樹脂に、それよりも高屈折率の白色無機フィラー粉末が分散されつつ含有された反射層が、支持体上で膜状、立体状又は板状に形成されていることを特徴とする。
- [0015] 請求項 2 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記シリコン樹脂が、非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含んでいることを特徴とする。
- [0016] 請求項 3 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記シリコン樹脂中に含まれる、シロキシ基繰返単位を 4 ～ 10 とする低分子量ポリシロキサンが、最大でも 300 ppm であることを特徴とする。
- [0017] 請求項 4 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記反射層が、1 ～ 2000  $\mu\text{m}$  の厚さで形成されていることを特徴とする。
- [0018] 請求項 5 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記シリコン樹脂が、屈折率を 1.35 以上、1.65 未満とすることを特徴とする。
- [0019] 請求項 6 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記白色無機フィラー粉末が、酸化チタン、アルミナ、硫酸バリウム、マグネシア、チッ化アルミニウム、チッ化ホウ素、チタン酸バリウム、カオリン、タルク、炭酸カルシウム、酸化亜鉛、シリカ、マイカ粉、粉末ガラス、粉末ニッケル及び粉末アルミニウムから選ばれる少なくとも 1 種の光反射剤であることを特徴とする。
- [0020] 請求項 7 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記白色無機フィラー粉末が、シランカップリング処理されてシリコン樹脂中に分散されたものであることを特徴とする。
- [0021] 請求項 8 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 6 に記載されたもので、前記白色無機フィラー粉末が、アナターゼ型若しくはルチル型の前記

酸化チタン、前記アルミナ、又は前記硫酸バリウムであることを特徴とする。

- [0022] 請求項 9 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 8 に記載されたもので、前記酸化チタンが、 $Al$ 、 $Al_2O_3$ 、 $ZnO$ 、 $ZrO_2$ 、及び／又は  $SiO_2$  で表面処理されて被覆されていることを特徴とする。
- [0023] 請求項 10 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記白色無機フィラー粉末が、平均粒径  $0.05 \sim 50 \mu m$  であって、前記シリコン樹脂中に、 $2 \sim 80$  質量%含有されていることを特徴とする。
- [0024] 請求項 11 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記反射層に、前記白色無機フィラー粉末と蛍光体とが分散されつつ含有されていることを特徴とする。
- [0025] 請求項 12 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 11 に記載されたもので、前記反射層の表面に、前記白色無機フィラー粉末と前記蛍光体との少なくとも何れかが露出していることを特徴とする。
- [0026] 請求項 13 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記反射層の表面が連続して、ナノメートル乃至マイクロメートルオーダーの凹凸形状、プリズム形状、及び／又は梨地面形状の何れかの非鏡面となっていることを特徴とする。
- [0027] 請求項 14 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、前記シリコン樹脂の少なくとも一部の表面の研磨、粗面化、ざらついた金型による金型成形若しくはスタンプ成形、及び／又はケミカルエッチングによって、前記白色無機フィラー粉末の一部が、前記表面から露出していることを特徴とする。
- [0028] 請求項 15 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 1 に記載されたもので、導電パターンの付された前記支持体を覆う前記反射層が研磨され、前記導電パターンが露出していることを特徴とする。
- [0029] 請求項 16 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 15 に記載され

たもので、前記表面の上に、金属膜が付されていることを特徴とする。

[0030] 請求項 17 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 16 に記載されたもので、前記金属膜が、銅、銀、金、ニッケル、及びパラジウムから選ばれる少なくとも何れかの金属で形成されていることを特徴とする。

[0031] 請求項 18 に記載のシリコン樹脂製反射基材は、請求項 16 に記載されたもので、前記金属膜が、めっき被膜、金属蒸着被膜、金属溶射膜、又は接着された金属箔膜であることを特徴とする。

[0032] 請求項 19 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、請求項 1 に記載されたもので、発光素子、発光装置及び光電変換素子の何れかの背面、外周及び／又は導光材反射面に、配置されていることを特徴とする。

[0033] 前記の目的を達成するためになされた本発明の請求項 20 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、三次元架橋したシリコン樹脂へと重合させる重合性シリコン樹脂原材料に、前記シリコン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を分散させて原材料組成物とした後、前記原材料組成物を膜状に支持体上に付し、三次元架橋させて前記シリコン樹脂へ重合させることにより、反射層を前記支持体上で膜状、立体状又は板状に形成することを特徴とする。

[0034] 請求項 21 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、請求項 20 に記載されたもので、前記重合が、加湿、加圧及び紫外線照射の少なくとも何れかにより、なされることを特徴とする。

[0035] 請求項 22 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、請求項 20 に記載されたもので、前記重合が、金型内での射出成形、又は金型での押圧成形の際加熱及び／又は加圧により、なされることを特徴とする。

[0036] 請求項 23 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、請求項 22 に記載されたもので、前記金型の表面が、フッ素樹脂でコーティングされていることを特徴とする。

[0037] 請求項 24 に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、請求項 20 に記載されたもので、前記重合性シリコン樹脂原材料に、前記シリコン

樹脂への三次元架橋の架橋剤と、加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤とが、分散して含有されており、前記シリコーン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を分散させて、前記原材料組成物となした後、前記加熱によって前記重合がなされることを特徴とする。

[0038] 前記の目的を達成するためになされた本発明の請求項 25 に記載の原材料組成物は、重合性シリコーン樹脂の原材料と、前記シリコーン樹脂の原材料を三次元架橋させる架橋剤と、前記シリコーン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末とが含まれた液状又はグリース状若しくは塑性の原材料組成物であって、請求項 1 に記載のシリコーン樹脂製反射基材を形成するために用いられるものである。

[0039] 請求項 26 に記載の原材料組成物は、請求項 25 に記載されたもので、加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤が含まれていることを特徴とする。

[0040] 請求項 27 に記載の原材料組成物は、請求項 25 に記載されたもので、粘度調整のための有機溶剤及び／又は反応性希釈剤が含まれていることを特徴とする。

## 発明の効果

[0041] 本発明のシリコーン樹脂製反射基材は、シリコーン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末が分散されつつ含有されているので、LED 光源の発光波長 340 ～ 500 nm 程度から、近赤外線領域、例えば 1000 nm の長波長までの幅広い波長での高輝度光の反射効率が高く、特に従来反射し難かった青色光や近紫外線のような短波長領域でも反射効率が高く、しかも熱伝導性に優れ放熱し易いものである。またこのシリコーン樹脂製反射基材は、隠蔽性に優れ、光漏れを引き起こさない。

[0042] このシリコーン樹脂製反射基材中の反射層は、光や熱による分解や変質を引き起こし難い安定な三次元架橋シリコーン樹脂で形成され、好ましくは、非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主鎖中に主成分として含むシリコーン樹脂で形成されている。そのため、熱や光で黄変し易いエポキシ樹脂などよりも遥かに、光や熱に安定で、反射効率のみならず経時的な耐光性とリわけ

対紫外線耐光性又は対高輝度光耐光性や、耐熱性や、耐候性のような耐久性、さらに難燃性、加工性に優れ、長期間に亘って黄変を引き起こさず、劣化し難いものである。このシリコン樹脂製反射基材は、長期間経過しても、反射層が白色のままであるので、高反射性が維持できる。

[0043] このシリコン樹脂製反射基材は、熱や光に安定なシロキシ繰返単位に起因して、白色無機フィラー粉末、特に分解触媒活性が極めて高い酸化チタンを含有していてさえ、高輝度発光ダイオードや直射日光や高温に長期間曝されても、黄変も劣化もしない。

[0044] このシリコン樹脂製反射基材は、反射層に白色無機フィラー粉末や蛍光体が分散され表面からそれらの粒子が露出していると、反射率が向上するので、発光装置に実装したときの照射効率を向上させることができる。

[0045] 特にフッ素変性シリコンゴム、ジメチルシリコンゴムなどの屈折率が比較的小さいシリコンゴム原材料を用いると、白色無機フィラー粉末や蛍光体の表面に接する低屈折率のシリコンゴム原材料との間の屈折率の差が大きくなり、反射が効率よく行われ、露出された白色無機フィラー粉末や蛍光体の表面からより効率的に光が反射、発光されるので望ましい。

[0046] このシリコン樹脂製反射基材の反射層の表面が、鏡面となって反射するものであってもよいが、 $100\text{ nm} \sim 10\text{ }\mu\text{ m}$ 程度のナノメートル乃至マイクロメートルオーダーの凹凸形状、プリズム形状、サンドブラスト処理などによる梨地面形状となって非鏡面であると、拡散し易くなって拡散反射率が向上し、光の反射ムラを低減することができる。

[0047] また、このシリコン樹脂製反射基材は、シリコン樹脂が酸素原子及び／又は架橋性官能基を介して三次元架橋しているので、そのシリコン樹脂を有する反射層が支持体上で膜状、立体状又は板状に形成できる。また、白色無機フィラー粉末及び重合性シリコン樹脂原材料を含む液状組成物又はグリース状若しくは塑性の原材料組成物は、最大で $2000\text{ }\mu\text{ m}$ もの厚さに塗工した後に、三次元架橋させて硬化させ、反射層を形成することができる。そのため、シリコン樹脂製反射基材は、反射層を光学素子の配線基板や

アセンブリやパッケージケースに応じた自在な形状にすることが可能であるので、汎用性が高い。また、原材料組成物は、パッケージケースなどの部品を支持体に接着する接着剤を兼ねた反射材を形成するのにも用いることができる。

[0048] シリコーン樹脂中の Si 原子の 1 ～ 4 個の三次元架橋した各モル数量、酸素原子を介したエーテル結合や架橋性官能基を介した縮合型又は付加型結合のような結合様式を適宜調整することにより、重合性シリコーン樹脂原材料組成物を高粘度にして厚塗り可能に、形成される。また、シリコーン樹脂中に、表面張力が低くて熔融金属などをはじき易い揮発性の残留低分子シロキサン含有量が少ないと、導電パターンのような金属と、発光ダイオードのような素子の導線との半田付けなどの配線加工を施し易い。

[0049] しかもこのシリコーン樹脂製反射基材は、物理的な研磨・粗面化やざらついた金型による金型成形や化学的なケミカルエッチングのような表面処理によって、その表面自体がナノメートル乃至マイクロメートルオーダーで粗面化又は凹凸化することによって乱反射し易くなると共に、反射性の白色無機フィラー粉末が露出して反射効率が 90%程度から 97～98%程度にまで約数%も一層向上したものとなる。またこのような表面処理されたシリコーン樹脂製反射基材は、露出した白色無機フィラー粉末の表面がシランカップリング処理されていると金属との接着が容易になり、表面粗さによるアンカー効果、シランカップリングによる化学的結合の向上により難接着性のシリコーン樹脂の表面においても、金属めっき等の金属膜が施され易くなっている。また、反射層自体の強度も向上する。さらに粗面化することにより、ゴミ、異物の付着防止又はゴミ、異物の除去が一層容易になる。

[0050] とりわけこのシリコーン樹脂製反射基材は、導電パターンの付された配線（回路）基板を覆う反射層が研磨され、導電パターンが露出していると、配線基板上の導電パターン部位以外が全て反射層となるので、反射効率が極めて高いものとなっている。研磨は、鏡面研磨であっても粗面研磨であってもよく切削研磨であってもよい。

- [0051] このシリコン樹脂製反射基材は、簡便な工程で簡易に、均質で高品質のものを精密に、確実かつ大量に、安価で製造できるものであるため、生産性が高いものである。
- [0052] また、このシリコン樹脂製反射基材は、発光ダイオードのような発光素子のみならず太陽電池素子のような光電変換素子等の各種光学素子のための配線基板やパッケージケース、バックシートその他照明器具部材等の電気部材など様々な分野の機器の反射基材として、汎用的に用いることができる。
- [0053] また、本発明のシリコン樹脂製反射基材の製造方法によれば、支持体の材質・形状・表面の凹凸性や平滑性の大小又は広狭・硬軟・厚さに関わらず、高粘度の重合性シリコン樹脂原材料組成物を用いて、液垂れすることなく、 $2000\mu\text{m}$ もの厚塗りができる。そのため、射出成形（LIMS）や、押圧用金型・ローラーなどを用いたスタンプ成形、噴霧や塗布のような塗工によって、三次元架橋したシリコン樹脂へと重合させて、 $1\sim10\mu\text{m}$ の薄膜から $2000\mu\text{m}$ の厚膜乃至板、又は立体形状に、反射層を形成することができる。また、この原材料組成物を用いて、反射層を形成するには、シリコン樹脂原材料組成物を、直接、又は適当な粘度に調整した後、スクリーン印刷、バーコーター、ロールコーター、リバースコーター、グラビアコーター、エアナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーターにより、さらに薄膜の塗工には、高精度のオフセットコーター、多段ロールコーターなどの公知の塗布方法により、塗布してもよい。この厚塗りは、一度でも所期の形状を形成できるため、塗工・乾燥を繰り返す必要がない。
- [0054] これら金型は、フッ素樹脂例えばポリテトラフルオロエチレン等の離型剤でコーティングされていることが好ましい。
- [0055] しかも重合性シリコン樹脂原材料組成物は、適宜溶媒で希釈して用いても、エポキシ樹脂等の原材料組成物のような加熱による硬化時の粘度低下を惹き起さないで、加熱時に変形を起こさずにそのまま硬化し所望の形状・厚さの反射層を形成することができる。
- [0056] このような重合は、加熱、加湿、紫外線照射や必要により加圧下で簡便に

完了し、支持体への接着性に優れた反射層を形成する。そのためこの製造方法は、加工特性に優れ、生産効率が高く、如何なる形状の反射基材でも製造できるので、汎用性に優れ、大量の工業生産に適している。

[0057] このシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、フッ素樹脂で蒸着されたり噴霧塗装されたりして0.1 mm程度にコーティングされた金型を用い離型し易くして、所望の任意の形状、任意の表面粗さの反射層を、正確かつ再現性良く、形成することができ、歩留り・生産効率を一層向上させることができる。

[0058] このシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、重合性シリコン樹脂原料に、三次元架橋の架橋剤と、加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤、及び白色無機フィラーが含有されているシリコン樹脂原材料組成物を用いることにより、長期間、室温下で安定に保管でき、加熱開始までは重合されないが加熱によって確実に重合が開始し短時間で重合が完了して反射層を形成するので、生産効率の向上に資する。

### 図面の簡単な説明

[0059] [図1]本発明を適用するシリコン樹脂製反射基材10・20を用いた発光装置1を示す模式断面図である。

[図2]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材21を用いた発光装置を示す模式断面図である。

[図3]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材10の金型成形による製造過程、及びそれを用いた発光装置1の製造過程を示す模式断面図である。

[図4]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の金型成形による製造過程を示す模式断面図である。

[図5]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の塗工による製造過程を示す模式断面図である。

[図6]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の研削による製造過程を示す模式断面図である。

[図7]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の研削による製造過程を示す模式断面図である。

[図8]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の盛上による製造過程を示す模式断面図である。

[図9]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材20の噴霧塗装による製造過程を示す模式断面図である。

[図10]本発明を適用する別なシリコン樹脂製反射基材10を用いた太陽電池を示す模式断面図である。

[図11]本発明を適用するシリコン樹脂製反射基材における照射波長と反射率との相関関係を示す図である。

[図12]本発明を適用する、シリコン樹脂の種類を変えた、シリコン樹脂製反射基材の加熱の有無における照射波長と反射率との相関関係を示す図である。

[図13]本発明を適用するシリコン樹脂製反射基材の研磨前後における照射波長と反射率との相関関係を示す図である。

[図14]本発明を適用するシリコン樹脂製反射基材と本発明を適用外のエポキシ樹脂製反射基材との照射波長と反射率との相関関係を示す図である。

## 符号の説明

[0060] 1は発光装置、2は太陽電池アセンブリ、10はシリコン樹脂製反射基材のパッケージケース、11は内壁、12a・12bは白色無機フィラー粉末、13は発光ダイオード、14a・14bはリード線、15a・15bは銅膜、16は支持体、17は太陽電池素子、17aはp型シリコン半導体、17bはn型シリコン半導体、18a・18bは銅膜、20・21はシリコン樹脂製反射基材の基板、22はガラスクロス、31は金型、32は穴、33はダイシングソー、34は塗工ノズル、35はローラー、36はグラインダーである。

## 発明を実施するための形態

[0061] 以下、本発明を実施するための形態について、図1～10を参照しながら

詳細に説明するが、本発明の範囲はこれらの形態に限定されるものではない。

[0062]  まず、本発明のシリコン樹脂製反射基材の好ましい形態について、図 1 を参照しながら、詳細に説明する。

[0063]  本発明のシリコン樹脂製反射基材は、図 1 の通り、発光装置の一種である照明器具 1 に組み込まれるもので、発光素子である発光ダイオード 13 を装着する配線パターンである銅箔 15 a・15 b を有するシリコン樹脂製反射基材 20 が付された配線基板と、その発光素子 13 を取り巻くパッケージケース 10 とに、用いられている。

[0064]  このようなパッケージケースや配線基板であるシリコン樹脂製反射基材 10・20 は、シリコン樹脂に、それよりも高屈折率の白色無機フィラー粉末が分散されつつ含有された反射層が、支持体上で膜状、立体状又は板状に形成されている。

[0065]  シリコン樹脂製反射基材 10・20 は、シリコン樹脂がむき出しになっており、そこで白色無機フィラー粉末 12 a・12 b である例えばアナターゼ型酸化チタン粒子の一部が露出している。シリコン樹脂製反射基材 10・20 は、白色を呈し、しかも優れた隠蔽性を有するから光を漏洩しないようになっている。さらにその部位で、380～420 nm の短波長域から長波長の近赤外線までに渡る光の反射率が、極めて高くなっている。このようにシリコン樹脂製反射基材 10・20 は、高反射率であり、高輝度光に長期間曝されても黄変せず白色を維持でき、しかも高い機械的強度を有し、優れた耐光性、耐熱性、耐候性を示すので、耐久性に優れている。

[0066]  このシリコン樹脂製反射基材 10・20 の反射層は、主鎖中に非環状のジメチルシロキシ繰返単位  $[-Si(-CH_3)_2-O-]$  を主成分として含むシリコン樹脂、例えば屈折率が 1.41 であるポリジメチルシロキサンを含んでなるシリコン樹脂や、主鎖にポリジメチルシロキサンとし主鎖同士が三次元架橋したシリコン樹脂に、それよりも高屈折率の酸化チタンからなる白色無機フィラー粉末 12 a・12 b が、含有されたものである。

- [0067] 主鎖中に非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含むシリコーン樹脂は、特に限定されず、硬質シリコーン樹脂、軟質シリコーン樹脂、シリコーンゴムを、包含するものである。シリコーン樹脂は、用途に応じて使い分けるとよい。例えばケーシングなどの立体状に用いる場合は、形状安定の意味から硬質又は軟質のシリコーン樹脂であることが好ましい。支持体が可撓性の材料である場合はシリコーンゴムであることが好ましい。後述する図6、7のように研削により製造される場合は、硬質シリコーン樹脂、軟質シリコーン樹脂であると、所望の厚さに精度良く調整できるので好ましい。
- [0068] このようなシリコーン樹脂に白色無機フィラー粉末を含有した反射層の硬度について、ゴムとしては、一般的には、J I S A型硬度計による測定でのショアA硬度で90以下、J I S D型硬度計による測定でのショアD硬度で30以下であると、触ったときの感触でゴムであるという感覚であるが、本願発明においては、ショアD硬度で50以下をゴムの領域として捉えることができ、また、ショアD硬度で40～60までは軟質の樹脂反射層、60を超えるとゴム性はなくなり、樹脂性の高い硬質の反射層といえることができる。
- [0069] このようなシリコーン樹脂は、酸素原子及び／又は架橋性官能基を介して、同一主鎖の次の繰返単位又は別な主鎖の繰返単位のSi原子に結合して三次元架橋しているもので、ポリ（ジメチルシロキサン）構造を主鎖とし、その他のポリ（ジアルキルシロキサン）構造やポリ（ジフェニルシロキサン）のようなポリ（ジアリールシロキサン）構造やポリ（架橋性官能基由来架橋基含有シロキサン）を部分的に有していてもよい。
- [0070] シリコーン樹脂は、より具体的には以下のような物質が挙げられ、三次元的な架橋構造を有することにより、硬質性若しくは軟質性で非弾性、又はゴム弾性を発現している。
- [0071] 本発明のシリコーン樹脂製反射基材を形成するために用いられるシリコーン樹脂原材料組成物は、付加反応硬化型、有機過氧化物硬化型、縮合硬化型のような種々の硬化型のものが挙げられるが、硬化時間を短縮して製造効率

を向上させる観点から、付加反応硬化型のものが好ましい。更に付加反応硬化型のものは、硬化時に硬化収縮が小さくフィルムに塗工し、硬化させた際フィルムの皺の発生を防止することができる。

[0072] 例えば、このような主鎖中に非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含むシリコーン樹脂は、より具体的には重合度5000～10000程度で平均分子量約40万～80万の高分子体である。このシリコーン樹脂は、ジメチルシロキシ繰返単位  $[-Si(CH_3)_2-O-]$  のみからなるポリジメチルシロキサン、所謂ジメチル系シリコーンであってもよく、 $[-Si(CH_3)_2-O-]$  と  $[-Si(CH_3)(CH=CH_2)-O-]$  又は更に  $[-Si(CH_3)(C_6H_5)-O-]$  とを含むような所謂メチルビニル系シリコーン又はメチルフェニルビニル系シリコーンであってもよい。

[0073] そのようなシリコーン樹脂原材料組成物中のシリコーン樹脂原材料は、主要成分として、分子中に単一又は複数のアルケニル基を有するオルガノポリシロキサン、分子中に単一又は複数のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン、白金族金属系触媒含有ポリシロキサンが挙げられる。また、金属粉含有のせいによる体積抵抗率の低減を防止しつつ非導電性を確実に発現するため、オルガノポリシロキサンに対し質量比で0.2%以上の微粉末シリカを含有していてもよい。更に、このシリコーン樹脂原材料組成物は、支持体との密着性・接着性を向上させるために、エポキシ基、アルコキシシリル基、カルボニル基、フェニル基のような反応性の官能基を有する接着性付与成分を含有していてもよい。

[0074] また本発明の反射基材を形成するのに用いられるシリコーン樹脂は、別な架橋性官能基で三次元架橋していてもよい。このような三次元架橋したシリコーン樹脂は、その途中のSi基が、アルキルオキシシリル基やジアルキルオキシシリル基、ビニルシリル基やジビニルシリル基、ヒドロシリル基やジヒドロシリル基であったり、それらの基が複数存在したりすることにより、それら官能基を介して、非環状のジメチルシロキシ繰返単位の主鎖同士が、網目状に三次元的に架橋したものである。シリコーン樹脂は、これら架橋性

官能基によって直接的に、及び／又はシランカップリング剤を介して間接的に、主鎖同士が三次元的に架橋していてもよい。その主鎖同士は、夫々の架橋性官能基の間や、架橋性官能基とシランカップリング剤との間で、夫々のアルキルオキシシリル基又はジアルキルオキシシリル基同士が脱アルコール化反応により縮合して架橋したり、ビニルシリル基やジビニルシリル基とヒドロシリル基やジヒドロシリル基とが白金錯体等の白金触媒存在下で、無溶媒中、加熱や光照射によって付加して架橋したりしたものである。シリコーン樹脂はその中でも、付加して架橋したものであることが好ましい。シリコーン樹脂は、主鎖をなすジメチルシロキシ基 ( $-\text{Si}(\text{CH}_3)_2-\text{O}-$ ) の繰返単位とジフェニルシロキシ基 ( $-\text{Si}(\text{C}_6\text{H}_5)_2-\text{O}-$ ) のような繰返単位とを有するものであってもよい。シリコーン樹脂は、主鎖のジメチルシロキシ基の繰返単位を有し、アルキルオキシシリル基、ジアルキルオキシシリル基、ビニルシリル基、ジビニルシリル基、ヒドロシリル基、ジヒドロシリル基で架橋したものであると、一層好ましい。

[0075] 三次元架橋したシリコーン樹脂は、例えば重合性シリコーン樹脂原材料が三次元架橋して硬化することによって得られる。より具体的には、付加反応硬化型のシリコーン樹脂の原材料を例に説明すると、熱硬化によりシリコーン樹脂を形成するもので、例えば、オルガノポリシロキサンをベースポリマーとし、オルガノハイドロジェンポリシロキサン及び白金系触媒等の重金属系触媒を含むものが挙げられる。

[0076] 上記オルガノポリシロキサンとしては、下記平均単位式



(式中、 $\text{R}^1$ は非置換又は置換一価炭化水素基で、好ましくは炭素数1～10、特に1～8のものである。 $a$ は0.8～2、特に1～1.8の正数である。)

で示されるものが挙げられる。ここで、 $\text{R}$ としてはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、ベンジル基等のアラ

ルキル基や、これらの炭素原子に結合した水素原子の一部又は全部がハロゲン原子で置換されたクロロメチル基、クロロプロピル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等のハロゲン置換炭化水素基、或いはシアノ基で置換された2-シアノエチル基等のシアノ基置換炭化水素基などが挙げられ、R<sup>1</sup>は同一であっても異なってもよいが、R<sup>1</sup>としてメチル基、特にジメチルシロキシ基を主成分となるようなメチル基であるものが、反射性発現、耐熱性・耐久性等の観点から好ましい。

[0077] また、R<sup>1</sup>としてビニル基等の炭素数2～8のアルケニル基を含むもの、特に全Rのうちの1～20モル%がアルケニル基であるものが好ましく、中でもアルケニル基を1分子中に2個以上有するものが好ましく用いられる。このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、末端に、及び／又は主鎖の途中にビニル基等のアルケニル基を有するジメチルポリシロキサンやジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体等、末端に、及び／又は主鎖の途中にアルケニル基含有ジオルガノポリシロキサンが挙げられ、特に、常温で液状のものが好ましく用いられる。

[0078] より具体的には、このようなアルケニル基含有オルガノポリシロキサンは、



(R<sup>2</sup>は同一又は異なり前記R<sup>1</sup>で例示されたメチル基等の飽和炭化水素基若しくはフェニル基等の芳香族炭化水素基又は前記R<sup>1</sup>で例示されたアルケニル基、R<sup>3</sup>は同一又は異なり前記R<sup>1</sup>で例示された飽和炭化水素基若しくは芳香族炭化水素基、R<sup>4</sup>は前記R<sup>1</sup>で例示されたアルケニル基、b、cは正数)で模式的に示されるもので、ブロック共重合であってもランダム共重合であってもよいものである。

[0079] このようなアルケニル基含有オルガノポリシロキサンは、直鎖状であっても、分子構造の一部に分枝状の構造を含んでいてもよく、環状体であってもよい。三次元架橋したシリコーン樹脂を含んでいる反射基材の機械的強度、弾性、耐繰り返し屈曲性などの物性の点から直鎖状のジオルガノポリシロキ

サンが好ましい。アルケニル基含有オルガノポリシロキサンは、その繰り返し単位の繰り返し数が、10～10000であることが好ましい。このようなアルケニル基含有ジオルガノポリシロキサンは、25℃における粘度が10～1,000,000 cSt程度のものが好ましい。

[0080] 一方、オルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、直鎖状、分岐状、環状、或いは三次元網状であって、単数又は複数、好ましくは3官能以上（即ち、1分子中にケイ素原子に結合する水素原子（Si-H基）を3個以上有するもの）が好ましく、末端に、及び／又は主鎖の途中にSi-H基を有するものであれば、特に限定されないが、例えば、メチルハイドロジェンポリシロキサン、メチルフェニルハイドロジェンポリシロキサン等が挙げられ、特に、常温で液状のものが好ましい。また、触媒としては、白金、白金化合物、ジブチル錫ジアセテートやジブチル錫ジラウレート等の有機金属化合物、又はオクテン酸錫のような金属脂肪酸塩などが挙げられる。これらオルガノハイドロジェンポリシロキサンや触媒の種類や量は、架橋度や硬化速度を考慮して適宜決定すればよい。

[0081] 前記オルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、下記平均単位式



（式中、 $\text{R}^e$ は $\text{R}^1$ で例示された基、特に飽和炭化水素基、 $d$ 及び $e$ は、 $0 < d < 2$ 、 $0.8 \leq e \leq 2$ となる数）で表されるものである。

具体的には、このようなオルガノハイドロジェンポリシロキサンの例としては、1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラメチルテトラシクロシロキサン、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチルペンタシクロシロキサン等の末端にSi-H基を有するシロキサンオリゴマー；トリメチルシロキシ末端基含有メチルハイドロジェンポリシロキサン、トリメチルシロキシ末端基含有ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、シラノール末端基含有メチルハイドロジェンポリシロキサン、シラノール末端基含有ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、ジメチルハイドロジェンシロキシ末端基含有ジメチルポリ

シロキサン、ジメチルハイドロジェンシロキシ末端基含有メチルハイドロジェンポリシロキサン、ジメチルハイドロジェンシロキシ末端基含有ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体のような主鎖の途中にSi-H基を有するホモポリマー又はコポリマーのハイドロジェンポリシロキサンが挙げられる。このようなオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、 $R^5_2(H)SiO_{1/2}$ 単位と $SiO_{4/2}$ 単位とを含み、 $R^5_3SiO_{1/2}$ 単位、 $R^5_2SiO_{2/2}$ 単位、 $R^5(H)SiO_{2/2}$ 単位、 $(H)SiO_{3/2}$ 単位又は $R^5SiO_{3/2}$ 単位を含んでいてもよいものである。

[0082] より具体的には、環状の $-[SiH(CH_3)]_4-$ 、 $H-[Si(CH_3)_2O]-[Si(CH_3)_2O]_f-H$ （但し、 $f$ は0～200の数）、 $(CH_3)_3SiO-[Si(CH_3)_2O]_g-OSi(CH_3)_3$ （但し、 $g$ は0～200の数）、 $(CH_3)_3SiO-[Si(CH_3)_2O]_h-[Si(CH_3)_2O]_i-OSi(CH_3)_3$ （但し、 $h$ は0～200、 $i$ は1～100の数）が挙げられる。

[0083] このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、例えば、 $R^5SiHCl_2$ や $R^5_2SiHCl$ （但し、 $R^5$ は前記と同じ）のようなクロロシラン化合物を共加水分解し、又はこれらクロロシラン化合物と $R^5_3SiCl$ や $R^5_2SiCl_2$ （但し、 $R^5$ は前記と同じ）のような別なクロロシラン化合物とを共加水分解して調製してもよく、さらにそれを平衡化して調製してもよい。

[0084] このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンと共に、用いられる。アルケニル基含有オルガノポリシロキサンのアルケニル基の1モル当量に対し、オルガノハイドロジェンポリシロキサンのSi-H基が0.5～4モル当量となるように、両者が配合されていることが好ましい。

[0085] 白金族金属系触媒含有ポリシロキサンに用いられる白金族金属系触媒は、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンのアルケニル基と、オルガノハイドロジェンポリシロキサンのSi-H基との付加反応を促進するためのヒドロシリル化反応触媒である。この触媒は、各種金属触媒が挙げられ、具体的には、白金、白金ブラック、ロジウム、パラジウムのような白金族金属単体；

$\text{H}_2\text{PtCl}_4 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{NaHPtCl}_6 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{KHPtCl}_6 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{PtCl}_6 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{PtCl}_4 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{PtCl}_4 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{PtCl}_2$ 、 $\text{Na}_2\text{HPtCl}_4 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ （但し、 $m$ は0～6の数）のような塩化白金錯体、塩化白金酸錯体及び塩化白金酸錯塩；アルコール変性塩化白金酸；塩化白金酸－オレフィン錯体；白金、パラジウム等の白金族金属をアルミナ、シリカ、カーボン等の担体に担持させた担体金属；ロジウム－オレフィン錯体；クロロトリス（トリフェニルフォスフィン）ロジウムのようなウィルキンソン触媒；塩化白金、塩化白金酸又は塩化白金酸塩とビニル基含有の鎖状又は環状シロキサンとの錯体などが挙げられる。白金族金属系触媒は、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンやオルガノハイドロジェンポリシロキサンと共存させて、それらに対して0.1～500ppm程度の触媒量、用いられてもよく、予め担持させていてもよい。

[0086] シリコーン樹脂は、例えば、トリオルガノシロキシ単位（ $\text{R}_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位：M単位、）、ジオルガノシロキシ単位（ $\text{R}_2\text{SiO}$ 単位：D単位）、モノオルガノシロキシ単位（ $\text{RSiO}_{3/2}$ 単位：T単位）、シロキシ単位（ $\text{SiO}_2$ 単位：Q単位）を任意に組み合わせた樹脂（但し、オルガノ基Rは、同一又は異なり、メチル基のようなアルキル基やフェニル基、又はビニル基のような架橋性官能基に由来する基）であることが好ましい。これらの組み合わせにより、シリコーン樹脂は、三次元架橋が形成されたMQ樹脂、MDQ樹脂、MTQ樹脂、MDTQ樹脂、TD樹脂、TQ樹脂、TDQ樹脂などの任意の組み合わせの樹脂を用いることができる。

[0087] このシリコーン樹脂が、繰返単位のSi原子が酸素原子又は架橋性官能基を介して次なる繰返単位のSi原子に結合して三次元架橋している。

[0088] シリコーン樹脂製反射基材は、電気部品に装着されるものであるから、電気接点障害やくもりの原因となるものでシリコーン樹脂中に含有される低分子シロキサン例えばシロキシ基繰返単位が4～10（D4～D10）の環状低分子量シロキサンを、予め300ppm、好ましくは50ppm未満にまで除去したシリコーン樹脂で形成されていると、なお一層好ましい。具体的

には、市販の低分子シロキサン低減グレードの重合性シリコーン樹脂原材料を用いたり、低分子シロキサン除去処理として、加熱オープン処理（例えば200℃で4時間加熱処理）、真空加熱処理（例えば真空下200℃で2時間加熱）などの加熱処理を施したりしたシリコーン樹脂原材料を用いることができる。また、これらの処理に加えて、超音波溶媒抽出などの手段を施して成型品から低分子シロキサン除去することもできる。シリコーン樹脂原材料から低分子シロキサンを除去できるが、成形品から低分子シロキサンを除去する方が、より低レベルにまで除去できるので、好ましい。

[0089] シリコーン樹脂原材料組成物は、通常の硬化性シリコーン樹脂組成物と同様に、2液に分け、使用時にこの2液を混合して硬化させる所謂二液型の組成物でもよいが、組成物を使用する際の作業性等の点から一液型とすることが好ましい。このシリコーン樹脂原材料組成物は、通常の条件で硬化でき、例えば加熱により、又は紫外線照射により、架橋させて、硬化させ、硬質性若しくは軟質性の非弾性、又はゴム弾性を発現させることができる。

[0090] このようなシリコーン樹脂製反射基材10・20は、未処理の支持体上に反射層が形成されていてもよい。重合性シリコーン樹脂原材料の三次元架橋による硬化の際に、シリコーン樹脂の密着性・接着性が優れていることから、支持体と反射層との接着強度が高い。

[0091] 支持体を予め表面処理することは必ずしも必要でないが、シリコーン樹脂原材料組成物の塗工の前に、支持体の塗工面側を予め、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線処理、フレイム処理、イトロ処理又は粗面処理のような表面処理された支持体上に反射層が形成されていると、表面処理された支持体上に反射基材が、一層強固に密着して接着するのでなお好ましい。これらのコロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、フレイム処理又はイトロ処理は、支持体上に重合性シリコーン樹脂原材料組成物が付される直前に行われることが好ましい。

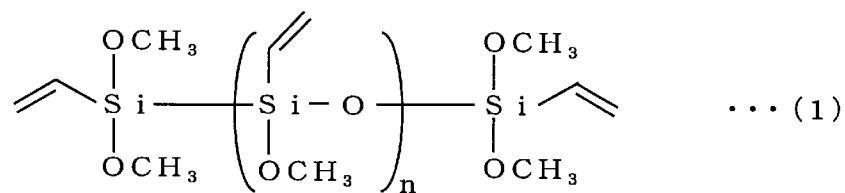
[0092] また、これらの支持体と反射材層とが、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、フレイム処理又はイトロ処理により強固に接着をしていれ

ばよく、接着体となる反応性基含有ポリシロキサン溶液で表面処理されていてもよい。

[0093] 支持体と反射材層とを接触によってより一層強固に接着させるには、両者又は一方の接着体となる面に、シランカップリング剤のような機能性シラン化合物を用いてもよい。このような機能性シラン化合物は、OH基との反応性が高い反応性基を含有するポリシロキサンが挙げられる。

[0094] このような反応性基含有ポリシロキサンとして、下記化学式（1）

[化1]



（式（1）中、nは3～4の数であって、反応性基である—OCH<sub>3</sub>の少なくとも何れかが、反射層及び金属箔層の表面の官能基例えばOH基と反応するものである）で示される化合物が挙げられる。この化合物は、繰返単位が、ブロック共重合、又はランダム共重合したものであってもよい。このビニルメトキシシロキサンホモポリマーのようなビニルアルコキシシロキサンホモポリマーの溶液に浸漬したりその溶液を塗布したり、反応性を向上させるために、それを白金触媒懸濁液に浸し、活性シリル基中のビニル基に白金触媒を保持させてもよい。

[0095] そのシランカップリング処理の有無によるシリコーン樹脂製反射基材の曲げ強度と硬度とを、表1に示す。

[0096] [表1]

表 1

| シランカップリング処理の有無 | 有り | 無し   |
|----------------|----|------|
| 曲げ強度（MPa）      | 20 | 16.9 |
| 硬度（Shor D）     | 66 | 65   |

- [0097] 表 1 から明らかな通り、このシランカップリング処理によりシリコーン樹脂製反射基材の強度が、向上している。
- [0098] シリコーン樹脂原材料に白色無機フィラー粉末を含有したシリコーン樹脂原材料の組成物は、重合性シリコーン樹脂原材料に白色無機フィラー粉末やシリコーンゴムパウダーの添加量又は有機溶剤や反応性希釈剤の添加量を適宜調整して加えて調製することができ、用途に応じて、液状、グリース状、又は可塑性で定義されるような可塑性である塑性となるように適度に調整して用いることができる。例えば、スプレー、ディスペンサー、或いはスクリーン印刷するときのレジストインクとしては、液状のものとして、粘度を  $0.5 \sim 500 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、より好ましくは  $10 \sim 200 \text{ Pa} \cdot \text{s}$  とすることが好ましい。また、熱プレス成形をする場合は、国際規格 ISO 7323 に基づく可塑性としては、 $100 \sim 500 \text{ mm} / 100$  のミラブルタイプ又は可塑性としての原材料組成物として用いることが好ましい。
- [0099] シリコーンゴムパウダー及び白色無機フィラーを用いる場合、粘度や硬度を調整するために、その添加量としてシリコーン樹脂原材料 100 質量部に対し、 $3 \sim 400$  質量部、好ましくは  $50 \sim 300$  質量部添加されることが好ましい。白色無機フィラーの添加量がこの範囲よりも少な過ぎると十分な反射が得られず、逆に白色無機フィラーの添加量がこの範囲よりも多過ぎると加工性が悪くなってしまう。シリコーン樹脂原材料組成物を、薄く塗布する場合には、白色無機フィラーの添加量が多い程、高い反射率を発現し、一方、厚く塗布する場合には、これらの添加量が少なくても十分な反射率が得られる。シリコーンゴムパウダーは、前記範囲内で、白色無機フィラーと共に加えられる。
- [0100] また、有機溶剤は、保存安定性、塗工性向上、塗工量の制御、粘度の調整などのために、添加されてもよい。有機溶剤を用いる場合、その添加量としてシリコーン樹脂原材料 100 質量部に対し、 $100 \sim 10000$  質量部添加されることが好ましい。有機溶剤がこの範囲よりも少ない場合には塗布、印刷時において糸引き、目詰まりが生じ生産性が落ちてしまう。一方、有機

溶剤がこの範囲よりも多い場合には、厚塗りができなかつたり、一度塗りで十分な反射率が得られなかつたりする。有機溶媒は、各種コーティング方法や要求される反射率、膜厚、粘度に応じ、適宜調整して用いられる。有機溶剤は、シリコーン樹脂原材料、架橋剤、反応抑制剤と反応しないものが適宜用いられ、具体的には、トルエン、キシレン、酢酸エチル、アセトン、メチルエチルケトン、ヘキサンが挙げられる。有機溶剤で粘度を調整する場合、有機溶剤を添加によって白色無機フィラー粉末の充填濃度が相対的に低下するが、硬化後に有機溶剤が揮発すると、白色無機フィラー粉末の充填濃度が粘度調整前の高濃度に戻るることとなるため、塗膜厚みが薄くて高濃度の印刷が可能となる。

[0101] 反応性希釈剤は、特に一液型接着剤の粘度調整用に使われるもので、有機溶媒と異なり揮発せず、そのままシリコーン樹脂として硬化するものである。反応性希釈剤として、例えば液状シリコーン樹脂用反応性希釈剤（モメンティブ・マテリアルズ・パフォーマンス社製 商品名：ME91）が挙げられる。反応性希釈剤は、シリコーン樹脂原材料100質量部に対し、0.1～30質量部、好ましくは1～20質量部添加されて用いられる。添加量がこの範囲より少な過ぎると、粘度の調整ができず、添加量がこの範囲より多過ぎると、シリコーン樹脂としても物性が弱くなる。反応性希釈剤は、シリコーン樹脂へと硬化するものであるため、有機溶剤を大量に使用した場合のように硬化後に揮発して肉痩せするようなことが起こらない。そのため、肉厚の反射層を形成するのに有用である。

[0102] 有機溶媒と反応性希釈剤との量は、反射層の厚さや印刷・塗布等の塗工方法に応じ、適宜調整される。

[0103] 重合性シリコーン樹脂原材料に白色無機フィラー粉末を含有した液状又はグリース状若しくは塑性の原材料組成物は、シリコーン樹脂への三次元架橋の架橋剤例えば例えば前記のようなハイドロジェンオルガノポリシロキサンや白金族金属系触媒含有ポリシロキサン、過酸化物のような架橋剤が、含有されていてもよい。

[0104] 重合性シリコーン樹脂原材料に白色無機フィラー粉末を含有した液状、又はグリース状若しくは塑性の原材料組成物は、加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤が、含有されていてもよい。反応抑制剤は、この原材料組成物の保存中に、必要に応じて添加されている触媒の活性を低下させることなく、シリコーン樹脂原材料、例えばアルケニル基含有オルガノポリシロキサン、オルガノハイドロジェンポリシロキサン付加反応を抑制し、保存安定性を高めるものである。反応抑制剤は、例えば、メチルビニルシクロテトラシロキサン類；3-メチルー1-ブチン-3-オール、3,5-ジメチルー1-ヘキシン-3-オール、3-メチルー1-ペンテン-3-オール、フェニルブチノールのようなアセチレンアルコール類；3-メチルー3-ペンテン-1-イン、3,5-ジメチルー1-ヘキシン-3-インなどのアセチレン化合物；これらのアセチレン化合物とアルコキシシラン、アルコキシシロキサン、ハイドロジェンシラン、又はハイドロジェンシロキサンとを反応させたシロキサン変性アセチレンアルコール類；ベンゾトリアゾールのような窒素含有有機化合物；有機リン化合物；オキシム化合物；有機クロム化合物が挙げられる。

[0105] これにより、この原材料組成物は、加熱前には三次元架橋が開始しないから長期間保存ができ、一方、加熱によって三次元架橋が速やかに開始し迅速に三次元架橋が完了して硬化し、反射層を形成する。しかも液状又はグリース状若しくは塑性組成物が有機溶媒で希釈されたものであったとしても、有機溶媒の揮発が無い時のみならず揮発したときでさえ、塗装しても均一な塗膜を形成することができるので、反射層にむらができない。

[0106] 架橋剤や反応抑制剤は、重合性シリコーン樹脂原材料100質量部に対して、夫々0.01～10質量部含有されていることが好ましい。

[0107] このような原材料組成物は、レジストとしても用いられるものである。この原材料は、加熱硬化型のレジストであり、例えば100℃以上に加熱されると硬化する。その硬化の際に、反応抑制剤を適宜選択することによりその温度依存性及び架橋開始温度制御性によって、硬化温度を適宜調整するこ

とができる。

[0108] この原材料組成物に、付加反応型の場合、主成分に加え、架橋剤、白金触媒、反応抑制剤、補強剤、用途に応じたその他の種々の添加剤が配合されていてもよい。

[0109] この原材料組成物に、接着成分として接着性付与成分が含有されていてもよい。接着性付与成分は、ビニル基、フェニル基、アルコシキ基、2, 3-エポキシプロピル基( $C_2H_3O-$ )のようなエポキシ環含有基、(メタ)アクリロイル基のような反応性の官能基を有するシラン化合物やシロキサン化合物が挙げられる。このような接着性付与成分は、具体的には、 $CH_2=CHSi(OCH_3)_3$ 、 $C_6H_5Si(OCH_3)_3$ 、 $CH_2=CHSi(OCH_2CH_2OCH_3)_3$ 、 $C_2H_3O-CH_2O(CH_2)_3Si(OCH_3)_3$ 、 $C_2H_3O-CH_2O(CH_2)_3SiCH_3(OCH_3)_2$ 、 $CH_2=CH-CO-O(CH_2)_3SiCH_3(OCH_3)_2$ 、 $CH_2=C(CH_3)-CO-O(CH_2)_3SiCH_3(OCH_3)_2$ 、2-(2, 3-エポキシプロピルオキシプロピル)-2, 4, 6, 8-テトラメチルシクロテトラシロキサン、2-(2, 3-エポキシプロピルオキシプロピル)-2, 4, 6, 8-テトラメチル-6-(トリメトキシシリルエチル)シクロテトラシロキサンなどが挙げられる。

[0110] これを用いて形成されたシリコーン樹脂製反射基材中、シリコーン樹脂100質量部に対し、白色無機フィラー粉末12a・12bが3~400質量部含まれていることが好ましい。白色無機フィラー粉末が、平均粒径0.1~10 $\mu m$ であると一層好ましい。

[0111] 白色無機フィラー粉末12a・12bは、例えば、酸化チタン、より具体的にはアナターゼ型酸化チタンやルチル型酸化チタンが挙げられる。酸化チタンと共に、又はその代わりに、アルミナや硫酸バリウム、マグネシア、チッ化アルミニウム、チッ化ホウ素(六方晶・立方晶)、チタン酸バリウム、カオリン、シリカ、タルク、粉末マイカ、粉末ガラス、粉末アルミニウム、粉末ニッケル、炭酸カルシウムのような無機白色顔料を、組み合わせて用いてもよく単独で用いてもよい。

- [0112] シリコーン樹脂にアルミナや硫酸バリウムのような無機白色顔料のみを分散可能な最大量を含有させても、光の漏洩を生じる恐れがあるが、このような無機白色顔料と共に酸化チタン特に隠蔽力の大きいルチル型酸化チタンが共存していると、光の漏洩が無くなるので一層好ましい。
- [0113] 熱伝導性改善のために、チッ化アルミニウム、チッ化ホウ素（六方晶・立方晶）、アルミナを配合することが好ましい。なお、これらの熱伝導性材料をシリコーン樹脂に分散充填し、別途熱伝導層又は熱伝導部材として、本発明の反射基材を構成する一部として積層又は載置してもよい。
- [0114] 例えば、堺化学工業株式会社製 商品名：GTR-100 ルチル型酸化チタン200質量部をシリコーン原材料100質量部に配合し、寸法70×70mm、厚み0.8mmのテストピースを作製し、熱伝導率と反射率を測定したところ、熱伝導率は1.2W/m・℃となり、反射率は450～1000nmの領域で95%以上となった。一方、熱伝導性向上配合として、堺化学工業株式会社製 商品名：GTR-100 ルチル型酸化チタン100質量部と昭和電工株式会社製 商品名：A-42-6 アルミナ100質量部をシリコーン原材料100質量部に配合し、寸法70×70mm、厚み0.8mmのテストピースを作製し、熱伝導率と反射率を測定したところ、熱伝導率は1.4W/m・℃となり、反射率は450～1000nmの領域で85～90%となった。また比較として、昭和電工株式会社製 商品名：A-42-6 アルミナ200質量部をシリコーン原材料100質量部に配合した寸法70×70mm、厚み0.8mmのテストピースを作製し、熱伝導率と反射率を測定したところ、熱伝導率は1.9W/m・℃となり、反射率は450～1000nmの領域で75～80%であった。この結果より、反射率90%を維持しながら、熱伝導率を向上することができた。また必要に応じて積層したり配合したりして反射率や熱伝導率を調整することができることが分かった。
- [0115] 反射層表面での光の散乱を増加させ反射率を向上させるために、白色無機フィラー粉末と共に、蛍光体を反射層に含有させ、それら粒子を表面から露

出させ、光を直接反射したり、光で基底状態から励起状態を経て基底状態へ戻るときに発する蛍光やりん光を発光させたりしてもよい。このような蛍光体として、ハロゲン化リン酸塩蛍光体やEu等の希土類金属含有蛍光体やYAG(イットリウム アルミニウム ガーネット)蛍光体のような無機蛍光物質や有機蛍光物質が用いられる。

[0116] その他、補強材としては、シリカ、カオリン炭酸カルシウム、炭酸亜鉛のような補強性無機充填剤；シリコーンレジン粉末のような補強性有機充填剤などが配合されていてもよい。ケイ酸カルシウム、二酸化チタン等の非補強性無機充填剤が配合されていてもよい。これらの補強材は、これ以外の成分の総量100質量部に対し、0~200質量部用いられる。

[0117] シリコーン樹脂製反射基材10・20中の白色無機フィラー粉末12a・12bは、酸化チタン、中でもアナターゼ型酸化チタンであると、近紫外LED、青色LEDの波長を反射するため一層好ましい。アナターゼ型酸化チタンが、シリコーン樹脂100質量部に対し3質量部より少ないと十分な反射性が得られず、一方400質量部を超えると加工性が困難となり生産性が低下してしまう。アナターゼ型酸化チタンは、シリコーン樹脂100質量部に対し、30~300質量部含まれているとなお一層好ましい。アナターゼ型酸化チタンは、形状に制限がなく任意の粒形状のもの、例えばフレーク状、不定形状、又は球状の粒子が使用できるが、その粒径が0.05~50 $\mu$ m、好ましくは0.05~30 $\mu$ m、一層好ましくは0.1~10 $\mu$ mであり、また、酸化チタン表面をAl、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZnO、ZrO<sub>2</sub>、及び／又はSiO<sub>2</sub>などで処理した酸化チタンを用いると、酸化チタンの光触媒による有機質の酸化分解反応を抑制することができるため、より長期間の使用に耐えることができる。

[0118] シリコーン樹脂製反射基材10・20に含有された白色の酸化チタン粉末、特にアナターゼ型酸化チタン粉末は、ルチル型酸化チタンと比較し、遥かに分解触媒活性作用が大きい。アナターゼ型酸化チタン粉末は、無機物からなるタイルや外壁材のような建材などに添加されその建材表面に付着した塵

埃等の付着異物を分解するほどの強力な光分解触媒として作用するものであるから、通常、ポリカーボネート、ポリフタルアミド、ポリエーテルエーテルケトンのような熱可塑性樹脂等の様々な高分子化合物に添加されるとそれを分解し黄変させたり、劣化してひび割れを生じさせたりしてしまう。しかし、シリコーン樹脂、特にジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含むシリコーン樹脂は、アナターゼ型酸化チタンに対しても化学的に安定であるから、このシリコーン樹脂製反射基材 10・20 は長期間に渡り黄変のような変質も変形もしない。さらにアナターゼ型酸化チタン粉末の表面に、 $\text{Al}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、及び／又は  $\text{SiO}_2$  などで表面処理を行うと、分解触媒活性作用が抑制され、より長期間に渡り黄変のような変質を防止できたり、シリコーン樹脂への分散性が向上して反射層の反射率が一層向上したりする。表面処理は、酸化チタンと、これらの表面処理剤の原末と混練、又はこれら表面処理剤の原末を含有する懸濁液への浸漬又は噴霧等によって施される。市販の表面処理酸化チタンを用いてもよい。酸化チタンが表面処理されていると白色性が高まり、反射層の反射率が一層向上する。

[0119] このシリコーン樹脂製反射基材の反射層の表面が、 $100\text{nm} \sim 10\mu\text{m}$  程度のナノメートル乃至マイクロメートルオーダーの凹凸形状、角錐状や角柱状のプリズム形状、エッチング処理やサンドブラスト処理などによる梨地面形状となって非鏡面であると、入射した光が四方八方へ拡散し、鏡面のような特定方向への反射よりも拡散反射率が向上し、光の反射ムラを低減して、白色度が高くなって、反射効率が一層向上する。

[0120] 図 11 は、ポリジメチルシロキサンのみとポリフェニルシロキサンのみとから夫々成るシリコーン樹脂 100 質量部中に、シランカップリング処理された  $\text{Al}_2\text{O}_3$  で表面処理されたアナターゼ型酸化チタン、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  で表面処理されたルチル型酸化チタン、アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) の 200 質量部が、各々分散されつつ含有されたシリコーン樹脂製反射基材について、照射波長と、その反射率との相関関係を示す図である。

[0121] 図 11 から明らかな通り、低屈折率のポリジメチルシロキサンからなるシ

リコーン樹脂製反射基材は、高屈折率のポリフェニルシロキサンからなるものよりも、アナターゼ型酸化チタン及びルチル型酸化チタンを含有する何れでも、波長200～1000nm、とりわけ350～1000nmの広範囲に渡り、反射率は3%高い。

[0122] また、ポリジメチルシロキサンとポリフェニルシロキサンとの何れのシリコーン樹脂製反射基材も、波長400nmで、ルチル型酸化チタン含有のものの反射率は僅か30%程度であるのに対し、アナターゼ型酸化チタン含有のものの反射率は80%を超えている。しかもアナターゼ型酸化チタン含有のものは、ルチル型酸化チタン含有のものよりも、波長380～420nmで特に、反射率が40%も高くなっている。一方、波長420～1000nmの領域ではルチル型酸化チタンの反射率が6%高い。

[0123] アナターゼ型酸化チタンの屈折率は2.45～2.55であるのに対し、ルチル型酸化チタンの屈折率は2.61～2.90である。一方、アルミナの屈折率は約1.76である。アナターゼ型酸化チタンもルチル型酸化チタンと同様にアルミナよりも屈折率が高いから、より白色を呈する。

[0124] アルミナは、酸化チタンよりも屈折率が低い反面、熱伝導性が高く、放熱性に優れている。しかも図11から明らかな通り、アルミナを含有したポリジメチルシロキサンのシリコーン樹脂製反射基材は、アルミナを含有したポリフェニルシロキサンのものよりも、波長340～1000nmで反射率は6～9%高い。従来、アルミナを含有したポリフェニルシロキサンのみからなる従来のシリコーン樹脂では、波長400nm以上の反射率が80%程度であり反射基材として不向きであったが、ベースポリマーをポリジメチルシロキサンのようなジメチルシロキシ繰返単位が主成分であるシリコーン樹脂にすることにより、白色無機フィラー粉末をアルミナにしても、波長400nm以上で反射率が90%以上となり、反射基材として好適となる。

[0125] 従って、ジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含むシリコーン樹脂を用いつつ白色無機フィラー粉末を適宜選択することにより、反射性と放熱性とを有することができるが、白色無機フィラー粉末としてチタンを選択した

場合には反射性向上を重視し、アルミナを選択した場合には放熱性向上を重視し、併用することにより反射性及び熱放射性を調節するという目的用途に応じたシリコン樹脂製反射基材 10・20 を、得ることができる。

[0126] 図 12 は、ポリフェニルシロキサンのみから成るシリコン樹脂 100 質量部中に、アナターゼ型酸化チタン、ルチル型酸化チタンの 200 質量部が、各々分散されつつ含有されたシリコン樹脂製反射基材を 150℃で 1000 時間加熱した前後において、照射波長と、その反射率との相関関係を示す図である。

[0127] 図 12 から明らかな通り、波長 460 nm で、ルチル型酸化チタン含有のポリフェニルシロキサンのみからなるシリコン樹脂の反射率は 97% であるのに対し、ルチル型酸化チタン含有のポリジメチルシロキサンのみからなるシリコン樹脂の反射率は 100% を超えている。ポリジメチルシロキサンのみからなるシリコン樹脂は、ポリフェニルシロキサンのみからなるシリコン樹脂よりも、全波長領域において、反射率が高くなっている結果であった。一方、ルチル型酸化チタン含有のポリジメチルシロキサンのみからなるシリコン樹脂の反射率も 100% を超えていた。

[0128] シリコン樹脂製反射基材 10・20 は、シリコン樹脂原材料と白色無機フィラー粉末 12a・12b と必要に応じシランカップリング剤とが含有された液状又はグリース状若しくは塑性の原材料組成物を用いて、付加反応により無溶媒下で加熱硬化するものであり、型を用いて、コンプレッション成形、射出成形、トランスファー成形、射出成形 (LIMS)、押し出し成形、カレンダー成形のような方法で支持体上に形成される。このような液状又はグリース状若しくは塑性組成物は、コーターを用いて 1~2000 μm の適切な厚さとなるように調整しながら、塗布されてもよい。チップ及びデバイスを組み合わせて電子回路を実装するチップオンボードの場合、チップが搭載される部分を残して、スクリーン印刷等の手法で、この原料組成物を塗布される。

[0129] シランカップリング剤は、反応性官能基として、アルキルオキシ基やビニ

ル基やアミノ基やエポキシ基を有するものが挙げられる。カップリング剤としては、シランカップリング剤の他に、チタネートやアルミネートのカップリング剤でもよい。この組成物にシランカップリング剤が含まれていると、それが含まれていない場合よりも、シリコーン樹脂が、白色無機フィラー粉末例えばアナターゼ型酸化チタンを網目構造の中に確りと取り込むため、その強度が顕著に強くなる。特に、シランカップリング剤処理された白色無機フィラー粉末含有のシリコーン樹脂製反射基材は、白色無機フィラー粉末がシランカップリング剤を介してシリコーンと架橋しているため、曲げ強度、濡れ性・分散性が向上しており、高品質のものとなる。このようなシランカップリング処理は、例えばアナターゼ型酸化チタンに対し1質量%のシランカップリング剤を添加し、ヘンシェルミキサーで攪拌して表面処理を行い、100～130℃で、30～90分間、乾燥させるというものである。

[0130] 研磨は、具体的には、粗さ500～10000番の研磨布紙、例えば紙やすりで擦ったり、微粒子含有研磨剤で磨いたり、砥石で磨くホーニングを行ったり、布皮などの柔軟材料で擦るバフ研磨を行ったり、表面をエンボス加工してやすりのような凹凸を付したローラーを高速回転させながら接触させたりして、シリコーン樹脂の表面に白色無機フィラーを露出させるものである。粗面化は、具体的には、金属粗粒、砂又は研磨剤を吹き付けるサンドブラストや梨地加工を行ったり、研磨剤を懸濁した液を噴射するウェットブラストを行ったり、金属やすり等で擦傷したり、金属ブラシや金属タワシやスチールウールで毛搔いたり、紫外線照射による洗浄処理や、コロナ放電処理により、有機物を除去して、シリコーン樹脂の表面に、白色無機フィラーが露出するまで物理的に付して表面加工するというものである。ケミカルエッチングは、具体的には、塩酸、硫酸、硝酸、フッ化水素酸のような強酸による酸処理を行ったり、苛性ソーダなどでアルカリ処理をしたりして、シリコーン樹脂の表面に、白色無機フィラーが露出するまで化学的に付して表面加工するというものである。反射層の研磨による粗面化の場合、材料硬度はJIS K 6253 に準拠したJIS A硬度計で60以上あると容易に

研磨することができるので望ましい。

- [0131] このような研磨や粗面化やケミカルエッチングにより露出した白色無機フィラー粒子の表面で、光が反射することから、反射効率が一層向上する。物理的研磨がより好ましい。
- [0132] 図13は、ポリジメチルシロキサンのみから成るシリコーン樹脂100質量部中に、白色無機フィラー粉末としてアナターゼ型酸化チタンとルチル型酸化チタンの100質量部が、夫々分散されつつ含有されたシリコーン樹脂製反射基材について、#1500の紙やすりで、表面を擦って研磨した前後における照射波長と、その反射率との相関関係を示す図である。
- [0133] 図13から明らかな通り、これらの粗面化したシリコーン樹脂製反射基材は、ポリジメチルシロキサン、ポリフェニルシロキサンにおいても白色無機フィラー粉末がアナターゼ型酸化チタンであるかルチル型酸化チタンであるかに関わらず、波長200~1000nmの広範囲に渡り、反射率は3%程度高い。しかも、シリコーン樹脂製反射基材は、JIS K7375に準拠し、標準白板を100としたとき、同じく100程度の反射率相対値を示し、反射効率が高いことが示された。
- [0134] 特に、図13に示す通り、ルチル型酸化チタンを含有するポリジメチルシロキサンのみから成るシリコーン樹脂製反射基材は、反射率が100%を越え、反射効率が極めて高いものであった。
- [0135] これらの表面を粗面化したシリコーン樹脂製反射基材は、金属と接着し易く、そのシリコーン樹脂の表面で、金属膜が確りと付され易くなる。また、カップリング処理された白色無機フィラーを用いたシリコーン樹脂製反射基材は金属と接着し易く、そのシリコーン樹脂の表面で、金属膜が確りと付され易くなる。金属膜は、銅、銀、金、ニッケル、パラジウム等のめっき被膜、金属蒸着被膜、接着剤、金属溶射で接着された金属箔膜が挙げられる。
- [0136] シリコーン樹脂は、通常、難接着性のため、金属膜が付され難い。しかし、このシリコーン樹脂製反射基材を用いれば、金属膜との密着性が良い。
- [0137] 金属膜は、シリコーン樹脂製反射基材に直接、めっきされ、金属蒸着され

、又は金属箔膜を接着剤で接着されて形成されていてもよい。シリコーン樹脂製反射基材が予めコロナ処理、プラズマ処理、紫外線処理、フレイム処理、イトロ処理され、あるいはポリパラキシリレンでコーティング処理されて下塗りされ、その上に蒸着等による金属膜で被覆されてもよい。

[0138] 金属膜の形成方法の一例は、以下の通りである。白色無機フィラー粉末が含有されて板状に形成されたシリコーン樹脂製反射基材に、マスキング材としてフィルムを貼付する。次にポリパラキシリレン類である「パリレンC」（日本パリレン株式会社製の商品名；「パリレン」は登録商標； $-\text{[(CH}_2\text{)-C}_6\text{H}_3\text{C(CH}_3\text{)-CH}_2\text{)]}_n\text{-}$ ）の被膜を設けるため、「パリレンC」の原料ダイマーである粉末状のモノクロロパラキシリレン類2量体を気化室に入れ減圧下で加熱して、蒸発したダイマーが熱分解室に誘導され反応性の高いパラキシリレンモノマーのラジカルとした後、反射基材に蒸着させて0.5～5ミクロン、好ましくは1～2ミクロンのポリパラキシリレン類コーティング処理し、下塗り層を形成して調製する。その下塗り層の上に、真空蒸着により、金属層として厚さ数ミクロンの銀層を形成させる。その後、マスキング材を剥がすと、金属膜が付されてしかもガス透過係数や絶縁抵抗の小さいシリコーン樹脂製反射基材が得られる。

[0139] 金属蒸着に代え、金属めっき、金属箔膜の接着であってもよく、その調製方法は、特に限定されない。

[0140] めっきの方法としては、まず白色無機フィラー粉末が含有されて板状に形成されたシリコーン樹脂製反射基材を、酸又はアルカリを用いて表面を粗面化し、その後、無電解ニッケルめっきによってニッケルめっきし、その後電解めっきにより銅めっきをする。さらに用途に合わせ金や銀のめっきを行う。

[0141] 銅箔を貼り合わせる方法としては、銅箔の裏面に接着剤層を形成し、その接着剤層側を、白色無機フィラー粉末が含有されて板状に形成されたシリコーン樹脂製反射基材に貼り合わせ油圧プレスにて加熱硬化させ、架橋接着をする。銅箔はロール状の連続シートであってもそれを裁断した個別シートで

あってもよい。巻かれているロール状に巻かれた銅箔を、引き出し、シリコン樹脂製反射基材と貼り合わせてから、再度、ロール状に巻き取られてもよい。

[0142] このように支持体の上に金属層を設け、その金属層に回路をエッチングにより形成し、発光ダイオードチップを結線する部分及び搭載する部分を除いて、シルク印刷によりシリコン樹脂原材料組成物を塗布し、シリコン樹脂製反射基材を形成する場合、前記回路とシリコン樹脂製反射基材の間に、ガスバリア層を設けてもよい。シリコン樹脂製反射基材は、三次元架橋したシリコン樹脂及び無機フィラー粉末よりなるので、エポキシ樹脂などの通常の樹脂よりもガス透過性が高いため、回路の金属層が腐食され酸化皮膜を形成するためシリコン樹脂製反射基材と金属層の間に剥離が発生する場合がある。これを防止するためガスバリア性を有する皮膜をシリコン樹脂製反射基材と金属層の間に形成するとよい。ガスバリア層は、可撓性であっても非可撓性であってもよい。ガスバリア層の厚みとしては、 $1 \sim 30 \mu\text{m}$ が好ましく、材料としては、シリコン樹脂よりガス透過性が小さい樹脂であれば適宜選択して使用することができるが、エポキシ樹脂などのフォトレジストや、パラキシリレンコート、ポリイミド樹脂、ポリパラキシリレン、ウレタン樹脂、アクリル樹脂、ポリアミドが挙げられる。

[0143] シリコン樹脂は、気体透過性が大きく腐食性ガスを透過し易いため金属層が腐食してしまう。そこでこれを防止するためにガスバリア性のある樹脂をガスバリア層としてコーティングし、その上にシリコン樹脂製反射基材を設けておくことが好ましい。

[0144] シリコン樹脂製反射基材の上に金属箔や金属めっきを付してもよい。また、銅箔にシリコン樹脂原材料組成物を塗工し基板に貼り合わせてエッチングしパターンを作製してもよく、基板にシリコン樹脂を塗工しその後めっきを付してもよい。

[0145] このシリコン樹脂反射基材は、反射層がシリコン樹脂を用いていることから、非接着性を有している。そのためそこへ、埃や塵のようなゴミ・異

物が付着した場合は、粘着ローラーを用いて、なぞれば、シリコン樹脂製反射基材に粘着することなくゴミ、異物が容易に粘着ロールへ粘着され除去される。またこのシリコン樹脂製反射基材は、非接着性であるが、絶縁性が高いため静電気により、埃や塵のようなゴミ・異物が吸着して付着し易い。そこでシリコン樹脂製反射基材の反射面にシリコンハードコート層をコーティングすることにより、これらゴミ・異物の付着を防止することができる。また、ゴミ・異物が付着したとしてもエアーを吹き付けることにより容易に除去することができる。このシリコン樹脂製反射基材に用いることができるシリコンハードコート剤としては、シリカやフッ素パウダーが分散されたシリコンハード剤や、エアーバックの表面処理に使用されるシリコンコーティング剤が使用できる。

[0146] 次に、図1を参照しながら、このシリコン樹脂製反射基材であるパッケージケース10とシリコン樹脂製反射基材20とが、主鎖中にジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含むシリコン樹脂と、アナターゼ型酸化チタン粒子とを含有した例の発光装置である照明器具について、具体的に説明する。

[0147] 配線基板の一部をなすシリコン樹脂製反射基材20は、アナターゼ型酸化チタン粒子12bを含有しているシリコン樹脂で、成形されている。シリコン樹脂製反射基材20上の発光ダイオード13への装着面側の表面から酸化チタン粒子12bの一部が露出している。シリコン樹脂製反射基材20のその表面に、導電金属膜である銅膜15a・15bが、付され、電源（不図示）へ接続される導電パターンを形成している。発光ダイオード13から伸びた2本のリード線14a・14bが、その銅膜15aと銅膜15bとに、夫々接続されている。そのシリコン樹脂製反射基材20の表面上の導電パターン部位以外の部位は、シリコン樹脂がむき出しになっており、そこでアナターゼ型酸化チタン粒子12bの一部が露出しているために、白色を呈し、しかも優れた隠蔽性を有するから光を遺漏漏洩しないようになっている。さらにその部位で、光、特に380～420nmの波長域のみなら

ずそれ以上の可視領域の光と、それより長波長の赤外線のような熱線との光の反射率が、極めて高くなっている。

[0148] また、パッケージケース 10 も、シリコン樹脂に同種のアナターゼ型酸化チタン粒子 12 a を含有する原材料組成物により、成形されている。パッケージケース 10 は、発光ダイオード 13 を取り巻きつつ、傾斜した内壁 11 によってその出射方向へ向かって末広がりに開口しており、配線基板のシリコン樹脂製反射基材 20 上で発光ダイオード 13 の装着面側の表面に、接着剤層（不図示）を介して一体に接着されている。このパッケージケース体 10 も、アナターゼ型酸化チタン粒子 12 a のために、白色を呈し、しかも優れた隠蔽性を有するから光漏れすることがなく、光、特に 380 nm 以上、中でも 400 nm 以上の波長の光の反射率が極めて高いものとなっている。

[0149] これらシリコン樹脂製反射基材 20 もパッケージケース 10 も、化学的に安定で変色し難いポリジメチルシロキサンのような主鎖中に非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含みつつ三次元架橋したシリコン樹脂で形成されているために、高反射率であり、高輝度光に長期間曝されても黄変せず白色を維持でき、しかも高い機械的強度を有し、優れた耐光性、耐熱性、耐候性を示すので、耐久性に優れている。

[0150] シリコン樹脂製反射基材 20 上の発光ダイオード 13 の非装着面側の表面に、支持体 16 が、付されて、照明器具 1 となっている。発光ダイオード 13 が装着されたシリコン樹脂製反射基材 20 とパッケージケース 10 との複数组が、整然と四方八方に並べられた照明器具であってもよい。パッケージケース 10 の出射方向側の開口が、ガラス製や樹脂製の透明板や透明フィルムで覆われていてもよい。その透明板や透明フィルムが、その透過光の波長を所期の波長へ変換する顔料、色素、蛍光剤、りん光剤を含有していてもよい。パッケージケース 10 の出射方向側の開口が、凸レンズ、凹レンズ、フレネルレンズのようなレンズで、覆われていてもよい（不図示）。

[0151] シリコン樹脂製反射基材 20 は、支持体 16 上に、スクリーン印刷のよ

うな各種印刷、噴霧、刷毛塗り、塗布等の塗工によって形成される。

[0152] このような支持体 16 は、非変形性の硬質乃至剛直な膜状、板状、円筒のような筒状・球体状・椀状等の立体状など如何なる形状であってもよく、所謂フレキシブルプリントサーキット（FPC）のようにフレキシブルであって柔軟な軟質のシートや撓むと付勢される程度の硬質なシートであってもよく、巻き取り可能なロール状であってもよく、様々な素子に内蔵されてさほど面積をとらない微小なワーキングチップであってもよい。支持体は、導電性を有するものや、熱伝導性・放熱性を有するものであってもよい。おもて面に反射層、必要に応じ、うら面に粘着剤層・接着剤層を有していてもよい。

[0153] 支持体 16 は、有機材料、無機材料の何れでもよく、シリコーン樹脂、イミド樹脂、ビスマレイミド・トリアジン樹脂、ガラス繊維含有エポキシ樹脂（ガラエポ）、紙フェノール樹脂、ベークライト、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、プラスチックフィルムとしてはポリカーボネート樹脂、フッ素樹脂、ポリイミド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、アラミド樹脂、ポリエーテルエーテル樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、液晶ポリマー、ポリエーテルサルフォン樹脂、シクロオレフィン樹脂、シリコーン樹脂、及びシリコーンゴム、アルミニウム箔、銅箔、ニッケル箔などを原材料に用いて成形したものが挙げられるが、これに限定されるものではない。配線基板の一部をなすシリコーン樹脂製反射基材 20 は、主鎖中にジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含む高価なシリコーン樹脂を含むものであるが、安価な支持体 16 に薄く付されただけで、十分な反射効果を奏するから、生産コストの削減に資する。

[0154] その場合、膜状のシリコーン製反射基材は、その原材料含有組成物を塗布して、10～200  $\mu\text{m}$  の被膜として支持体 16 上に付されていることが好ましい。

[0155] パッケージケース 10 とシリコーン樹脂製反射基材 20 を有する配線基板

とは、以下のようにして使用される。この発光ダイオード 13 に、陰極側銅膜 15 a 及びリード線 14 a と、陽極側銅膜 15 b 及びリード線 14 b とにより、印加すると、発光ダイオード 13 は、発光する。発光した光の一部は、パッケージケース 10 の出射方向側の開口から、直接、外界へ照射される。発光した光の別な一部は、パッケージケース 10 の内壁 11、又は配線基板表面上の導電パターン以外をなすシリコン樹脂製反射基材 20 の部位で反射して、出射方向側の開口から、外界へ照射される。

[0156] 別なシリコン樹脂製反射基材の態様は、図 2 の通り、別な照明器具に実装されて用いられるもので、配線基板 21 が、高屈折率の白色無機フィラー粉末である酸化チタン粒子 12 c を含有しているシリコン樹脂で、ガラスクロス 22 を内在しつつ成形されて、その表面に、導電金属膜である銅膜 15 a ・ 15 b の導電パターンが形成され、発光ダイオード 13 のリード線 14 a ・ 14 b がその銅膜 15 a と銅膜 15 b とに、夫々接続されているというものである。

[0157] 別なシリコン樹脂製反射基材 1 の態様は、図 3 (d) の通り、別な照明器具に実装されて用いられるもので、導線パターンを成す導電金属膜 15 a ・ 15 b、例えば銅膜が、剛直なプラスチックなど適切な材料で形成された支持体 16 上に付され、高屈折率の白色無機フィラー粉末である酸化チタン粒子 12 を含有するシリコン樹脂で形成された反射層を兼ねるパッケージケース 10 が、シリコン樹脂製反射基材として、支持体 15 及び銅膜 15 a ・ 15 b を覆っている。

[0158] 図 3 のシリコン樹脂製反射基材 1 は、以下のようにして、製造される。先ず、同図 (a) のように、ガラス繊維布にエポキシ樹脂を含浸させたガラスエポキシ基板などの支持体 16 に、印刷、ケミカルエッチング等により、所望の形状の導線パターンを成す導電金属膜 15 a ・ 15 b を形成する。次いで、支持体 16 及び導電金属膜 15 a ・ 15 b を覆うように重合性シリコン樹脂原材料の液状又はグリース状若しくは塑性の組成物を塗工し、略半球状の突起を多数有する金型 31 で、最厚部を 100 ~ 1000  $\mu\text{m}$ 、最薄

部と10～100 $\mu$ mとなるように、押圧しながら、加熱すると、重合性シリコン樹脂原材料が三次元架橋しつつ硬化し、反射層を兼ねたパッケージケース10が、支持体16及び導電金属膜15a・15bと密着して成形される。金型31をパッケージケース10から、離型させると、その離型された部位に形成された内壁11が、反射面となる。次いで、同図(c)のように、パッケージケース10の最薄部に、導電金属膜15a・15bに到達するまでの穴32を開ける。同図(d)のように、そこへ発光ダイオードを挿入して、適宜、半田等の接続材でその陰陽端子を導電金属膜15a・15bに接続させる。必要に応じて、ダイシングソー33で所定の大きさに切断すると、照明器具用の発光ダイオードチップが形成される。

[0159] 図4に示すように、所望の形状の導線パターンの導電金属膜(回路)15a・15bが付された支持体16へ、重合性シリコン樹脂原材料の液状組成物を塗工した後、サンドブラスト表面処理された金型31で、押圧しながら、加熱すると、重合性シリコン樹脂原材料が三次元架橋しつつ硬化し、反射層を兼ねたシリコン樹脂製反射基材20が成形される。導電金属膜とシリコン樹脂製反射基材との間にエポキシ樹脂やポリイミドワニスなどで剥離防止のために形成されたバリア層を有していてもよい(不図示)。

[0160] 図5に示すように、所望の形状の導線パターンの導電金属膜15a・15bが付された柔軟な支持体シート原料ロールから支持体シートを引き出し、導電金属膜15a・15b側の表面に、塗工ノズル34から流れ出る重合性シリコン樹脂原材料を塗工した後、サンドブラスト処理されたローラー35で、押圧しながら、加熱すると、重合性シリコン樹脂原材料が三次元架橋しつつ硬化し、反射層を兼ねたシリコン樹脂製反射基材20が成形される。必要に応じ、ダイシングソー33で、所望の大きさに切断してもよい。

[0161] 図4～5のようにして形成されたシリコン樹脂製反射基材20は、図6(a)のようなやや先細りのグラインダー36や、同図(b)のような略半球状のグラインダー36を回転させつつ、導電金属膜15a・15bが露出するまで、パッケージケースの窪みを形成するように厚み方向へ切削され、

その後、必要に応じ、発光ダイオードの実装などにより、照明器具（不図示）へと導いてもよい。図6（c）のように、円盤状のグラインダー36を回転させつつ、導電金属膜15a・15bが露出するまでそれに沿って溝状に、切削されてもよい。

[0162] 又は、シリコン樹脂製反射基材20は、図7のように、ローラー状のグラインダー36を高速回転させつつ、導電金属膜15a・15bに達するまで、切削研磨し、支持体16上に、導電金属膜15a・15bと反射層となるシリコン樹脂製反射基材20とが隙間なく仕切られたまま露出しているもよい。

[0163] シリコン樹脂製反射基材1は、図8に示すように、支持体16へ付された所望の形状の導線パターンの導電金属膜15a・15bに発光素子である発光ダイオード13を接続しておき、それを取り巻き盛上げるように、ノズル34から流し出した重合性シリコン樹脂原材料を、垂らして、成形されてもよい。

[0164] また、シリコン樹脂製反射基材1は、図9に示すように、窪みを有するパッケージケースを兼ねる支持体16の表面に、重合性シリコン樹脂原材料を噴霧塗装した後、加熱して、反射層となるシリコン樹脂製反射基材20を形成してもよい。

[0165] シリコン樹脂製反射基材1を成形する際のこれらの金型から離型の度に、又は数回～10回の離型の度に、離型剤、例えば、ダイフリー（ダイキン工業株式会社製の商品名）を金型に塗布して、離型性を一層向上させてもよい。

[0166] 別なシリコン樹脂製反射基材の態様は、図10の通り、太陽電池2のアセンブリとして組み込まれるもので、太陽電池素子17である光電変換素子を装着したパッケージケース10に、用いられているというものである。パッケージケース10は、アナターゼ型酸化チタン粒子12aを含有するシリコン樹脂で、椀状に複数窪んだ列が幾重にも並んで、成形されている。太陽電池素子17は、内部の略球状のp型シリコン半導体17aとその周りを

覆ってPN接合しているn型シリコン半導体17bとからなる。n型シリコン半導体17bの下端が研磨によって欠落しており、そこからp型シリコン半導体17aが露出している。n型シリコン半導体17bは、負電極の電極エレメント層である銅膜18bのみに接続し、一方p型シリコン半導体17aは、正電極の電極エレメント層である銅膜18aのみに接続している。両電極である銅膜18a・18bは、その間で積層されている絶縁体層19で、隔離され絶縁されている。パッケージケース10は、太陽電池素子17を取り巻きつつ、碗状に窪んだ内壁11によってその出射方向へ向かって末広がりに開口しており、銅膜18bへ接着剤層（不図示）を介して一体に接着されている。

[0167] このパッケージケース10であるシリコーン樹脂製反射基材は、以下のようにして使用される。図10のようにこの太陽電池アセンブリ2の太陽電池素子17に向けて光例えば太陽光を入射させる。例えば真上からの入射太陽光は真直ぐに太陽電池素子17の頂部に垂直に入射する。その真上よりもやや外れた入射太陽光は、パッケージケース10の内壁11で反射し、太陽電池素子17の側面へ略垂直に入射する。このようにして、太陽電池アセンブリ2へ入射した光は、n型シリコン半導体17bとp型シリコン半導体17aとのPN接合界面に効率よく到達し、光起電力が生じ、回路にすると、光電流が流れる。

[0168] また、図1～図10のようなシリコーン製反射基材20のシリコーン樹脂の表面、即ち配線基板上の発光ダイオード13への装着面側の表面や、パッケージケース10の内壁11の表面が、研磨、粗面化及び／又はケミカルエッチングによって、表面処理されており、白色無機フィラー粒子の一部が、そのシリコーン樹脂の表面から、露出しているもよい。

[0169] パッケージケース10と、配線基板のシリコーン樹脂製反射基材20上で発光ダイオード13の装着面側の表面とは、接着剤層を介して一体に接着される。シリコーン樹脂製接着剤として、例えば、低分子シロキサンカット品SE-9186L（東レ・ダウコーニング株式会社製；商品名）が挙げられ

る。

- [0170] シリコーン樹脂製反射基材は、一般的な白熱電球やハロゲンランプやLED等による電気スタンドのような照明器具をはじめとする様々な発光装置の他、太陽電池のように光を反射するのに用いてもよく、電気ストーブや燃焼ストーブ等の熱源近傍の壁や什器に貼付して赤外線を反射させ加熱効率を上げたり壁や什器の対熱保護のために用いられたりしてもよい。

## 実施例

- [0171] 以下に、本発明のシリコーン樹脂製反射基材を試作し、装置に組み込んだ例を示す。

- [0172] (実施例 1)

### 初期反射率の比較

(ポリフェニルシロキサン樹脂とポリジメチルシロキサン樹脂との比較)

ポリフェニルシロキサン樹脂（商品名 X E 1 4 - C 2 5 0 8 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ）とポリジメチルシロキサン樹脂（商品名 I V S M 4 5 0 0 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製）を用いて、アナターゼ型酸化チタン（商品名 A - 9 5 0 : 堺化学工業株式会社製）とルチル型酸化チタン（商品名 G T R - 1 0 0 : 堺化学工業株式会社製）とアルミナ（商品名 A E S 1 2 : 住友化学株式会社製）を各々 2 0 0 質量部添加し、25  $\mu$ m のポリイミドを支持体に加熱プレスにて、150℃で10分間の硬化条件によって、縦70mm、横70mm、厚さ0.3mmのシリコーン白色反射板であるシリコーン樹脂製反射基材を作製した。それぞれの反射率を、分光光度計 UV-3150（株式会社島津製作所製）を用いて測定した。その結果を示す図11よりすべてにおいてポリジメチルシロキサンをベースポリマーとした場合3~5%の反射率の向上が見られた。

- [0173] (実施例 2)

### 高温での経時後の反射率

ポリフェニルシロキサン樹脂（商品名 X E 1 4 - C 2 5 0 8 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ）とポリジメチルシロキサン樹脂（商品

名 I V S M 4 5 0 0 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製) にアナターゼ型酸化チタン (商品名 A - 9 5 0 : 堺化学工業株式会社製) とルチル型酸化チタン (商品名 G T R - 1 0 0 ; 堺化学工業株式会社製) をそれぞれ 2 0 0 質量部添加し、加熱プレスにて、2 5  $\mu$  m のポリイミドの支持体に 1 5 0 °C で 1 0 分間の硬化条件によって反射層を形成し、縦 7 0 mm、横 7 0 mm、厚さ 0 . 3 mm のシリコン白色反射板であるシリコン樹脂製反射基材を作製した。1 5 0 °C で 1 0 0 0 時間、加熱経過後の反射率を、分光光度計 U V - 3 1 5 0 (株式会社島津製作所製) を用いて測定した。その結果を示す図 1 2 より、ポリフェニルシロキサン樹脂のシリコン白色反射板は短波長側で反射率の低下が見られるのに対し、ポリジメチルシロキサン樹脂のシリコン白色反射板は反射率の低下が見られない。

[0174] (実施例 3)

ポリジメチルシロキサン樹脂 (商品名 I V S M 4 5 0 0 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製) にアナターゼ型酸化チタン (商品名 A - 9 5 0 : 堺化学工業株式会社製) とルチル型酸化チタン (商品名 G T R - 1 0 0 ; 堺化学工業株式会社製) をそれぞれ 1 0 0 質量部添加し、加熱プレスにて、1 5 0 °C で 1 0 分間の硬化条件によって反射層を形成し、縦 7 0 mm、横 7 0 mm、厚さ 0 . 3 mm のシリコン白色反射板であるシリコン樹脂製反射基材を作製した。それぞれの反射率を、分光光度計 (商品名 U V - 3 1 5 0 ; 株式会社島津製作所製) を用いて初期反射率を測定した後、# 1 5 0 0 のサンドペーパーでシリコン白色反射板の表面をそれぞれ研磨し、再度反射率を測定する。その結果を示す図 1 3 より、研磨などで表面加工を行うことにより 2 ~ 3 % 反射率が向上した。

[0175] 以上から明らかな通り、ポリフェニルシロキサン樹脂の反射板は、十分な反射率を有している。また、ポリジメチルシロキサンをベースポリマーとした場合ポリフェニルシロキサンをベースにした場合よりも反射率が高くさらには 1 0 0 0 時間経過後でも反射率の低下は見られない。これより黄変したり劣化したりすることが無いため、耐光性、耐熱性、耐候性に優れており、

有用な反射材料であることがわかった。また表面加工をすることによって、反射率が向上するとも分かった。

[0176] (実施例 4)

ポリジメチルシロキサン樹脂（商品名 I V S M 4 5 0 0 : モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製）にシリコーン樹脂 1 0 0 質量部に対してルチル型酸化チタン（商品名 G T R - 1 0 0 ; 堺化学工業株式会社製）を 1 0 0 質量部添加し、加熱プレスにて、 $25\mu\text{m}$ のポリイミドの支持体に  $150^{\circ}\text{C}$  で 1 0 分間の硬化条件によって反射層を形成し、縦 7 0 mm、横 7 0 mm、厚さ  $50\mu\text{m}$  の白色のシリコーン樹脂製反射基材を作製した。

[0177] (比較例 1)

エポキシ樹脂 1 0 0 質量部に対してルチル型酸化チタン（商品名 G T R - 1 0 0 ; 堺化学工業株式会社製）を 1 0 0 質量部添加したエポキシ樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして、エポキシ樹脂白色反射シートを作製した。

[0178] 実施例 4 のシリコーン樹脂製反射基材と比較例 1 の反射シートとを、実施例 2 と同様に耐熱性試験を行った。加熱前と  $150^{\circ}\text{C}$  で 1 0 0 0 時間加熱経過後の反射率を、分光光度計 UV-3 1 5 0（株式会社島津製作所製）を用いて測定した。その結果を図 1 4 に示す。図 1 4 から明らかな通り、エポキシ樹脂白色反射シートは全波長領域でポリジメチルシロキサン樹脂製反射基材より反射率が低い。また、加熱経時したエポキシ樹脂白色反射シートは、短波長側で著しい反射率の低下が見られるのに対し、ポリジメチルシロキサン樹脂製反射基材は反射率の低下が見られない。

[0179] (実施例 5)

支持体として、 $25\mu\text{m}$  のポリイミドフィルムに  $15\mu\text{m}$  の銅めっきを施した。これにフォトレジストを用いて、エッチング加工により回路を形成した。次に、アナターゼ型酸化チタンをシリコーン樹脂 1 0 0 質量部に対して 1 5 0 ~ 2 0 0 質量部の範囲で配合を変え、必要によりシリコーンゴムパウダーを夫々適量ずつ加えてアナターゼ型酸化チタン含有白色反射材用の原材

料組成物となし、これを回路の表面にLEDチップ及び配線を行う部分を除いて、スクリーン印刷を用いて $30\mu\text{m}$ の厚みで塗布し、 $150^{\circ}\text{C}\times 1$ 時間加熱し、反射層を形成し、シリコン樹脂製反射基材を作製した。このときシリコン樹脂製反射基材は、反射層の硬度はJIS A型硬度計で80と、JIS D型硬度計で70の硬度とであった。

[0180] (実施例6)

支持体として、 $25\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムに $15\mu\text{m}$ の銅めっきを施した。これにフォトレジストを用いて、エッチング加工により回路を形成した。回路の表面にLEDチップ及びその配線を行う銅めっき部分を含む全面に、アナターゼ型酸化チタンをシリコン樹脂100質量部に対して150～200質量部の範囲で配合を変え、必要によりシリコンゴムパウダーを夫々適量加えてアナターゼ型酸化チタン含有白色反射材用の原材料組成物となし、これを、スクリーン印刷を用いて $30\mu\text{m}$ の厚みで塗布し、 $150^{\circ}\text{C}\times 1$ 時間加熱し、反射層を形成した。このとき反射層の硬さはJIS D型硬度計で70の硬度を有していた。次いで、図7に示すように、銅めっきが露出するまで反射層を研削し、銅めっき部分とシリコン樹脂部分とが区分けされたシリコン樹脂製白色反射基材を作製した。

[0181] (実施例7)

支持体として、 $25\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムに $15\mu\text{m}$ の銅めっきを施した。この銅めっきにフォトレジストを用いて、エッチング加工により回路を形成した。この回路の表面にLEDチップ及びその配線を行う部分を除いてポリイミドワニス（商品名；FC-114 ファイン・ポリイミドワニス：ファインケミカルジャパン社製）を2回塗りして加熱硬化し膜厚 $4\mu\text{m}$ のガスバリアー層を設けた。しかる後、実施例5と同様にしてシリコン樹脂製白色反射基材（反射層の硬度は同値）を作製した。

[0182] (実施例8)

シリコン接着剤（商品名X-32-1964：信越化学工業株式会社製）にルチル型酸化チタン（商品名GTR-100：堺化学工業株式会社製）

を 100 質量部添加しさらに反応抑制剤としてアセチレンアルコールを 0.01 部添加しシリコン樹脂製反射基材に用いる液状の原材料組成物（粘度 600 Pa・s）を得た。この保存缶を開封後、室温において 7 日間放置し粘度を測定した結果変化が見られず、酸化チタンの沈降が見られず、150℃1 時間の加熱硬化においても反射率、硬さとも初期の原材料組成物のものと同じ特性を示し、長期の保管性を示し、図 1 のように LED を実装でき、量産において生産性に優れていることが分かった。

[0183] （比較例 2）

一液型エポキシ樹脂性レジストインクにおいては、その保存缶の開封後、室温において 24 時間放置し確認した結果、外周が硬化し内部がゲル化し使用ができない状況であった。

[0184] （実施例 9）

チップオンフィルム（以下 COF とする）として、厚さ 38  $\mu\text{m}$  のポリイミドフィルムに厚さ 8  $\mu\text{m}$  の導体（銅箔）に回路を形成し、ランドパターン部を除いてガスバリア層としてポリイミドワニス（商品名；FC-114 ファイン・ポリイミドワニス：ファインケミカルジャパン社製）を 2 回塗りして加熱硬化し膜厚 4  $\mu\text{m}$  のガスバリア層を設けたのち、スクリーン印刷により、ランドパターン部を除き白色無機フィラー含有原材料組成物を 30  $\mu\text{m}$  塗布し、150℃×1 時間で硬化させ、反射層を形成し、COF のシリコン樹脂製反射基材を得た。白色無機フィラー含有原材料組成物はポリジメチルシロキサン樹脂（商品名 IVSM4500：モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製）100 質量部にアナターゼ型酸化チタン（商品名 A-950：堺化学工業株式会社製）とルチル型酸化チタン（商品名 GTR-100；堺化学工業株式会社製）を 80 質量部添加したものである。このシリコン樹脂製反射基材に日亜化学製白色 LED パッケージ NS-SW064 を直接ランド部の上にマウントし、鉛フリーリフローに通しハンダを行い、高反射 COF 基板のフレキシブル LED 照明基板を得た。この基板は厚みが薄く狭い箇所に挿入可能であり、熱による黄変がなく反射率 98% の C

OFとなった。また、金属と反射層との剥離も認められなかった。

[0185] (実施例 10)

シリコーン樹脂原材料組成物を調製後、シロキシ基繰返単位を4～10とする低分子量ポリシロキサンを300ppm未満になるまで、減圧下及び／又は200℃で維持した後、常圧に戻して用いたこと以外は、実施例1～10と同様にして、シリコーン樹脂製反射基材を作製し、夫々LEDを実装してLED照明基板を製造したところ、電気接点障害、くもりの発生による照度低下などの現象は、認められなかった。

[0186] (実施例 11)

酸化チタンを、前記化学式(1)で示される反応性基含有ポリシロキサンをシランカップリング剤として浸漬し、表面処理したこと以外は、実施例1と同様にして、シリコーン樹脂製反射基材を作製したところ、表面処理しない場合よりも、前記表1で示す場合と同様に、樹脂製反射基材の曲げ強度と硬度とが、向上していた。

(実施例 12)

実施例9と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパターン部を除いて酸化チタン含有ジメチルシリコーン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、φ1mmの微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。

[0187] (実施例 13)

実施例9と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパターン部を除いて酸化チタン含有ジメチルシリコーン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、φ1mmの微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。更に、サンドペーパー#1000を用い表面を研磨し、酸化チタン粉末を露出させた基板の反射率を測定したところ、3%の反射率向上が見られた。

[0188] (実施例 14)

実施例9と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパター

ン部を除いて無機白色フィラー粉末としてアナターゼ酸化チタンを100質量部、YAG蛍光体を3質量部含有させたジメチルシリコーン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、 $\phi 1\text{ mm}$ の微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。サンドペーパー＃1000を用い表面を研磨し、無機白色フィラー粉末を露出させた基板の反射率を測定したところ90%であった。400～500 nmの吸収が確認されその分反射率が低下したものの十分な反射率を維持できるとともに、550 nmの励起光が確認された。

[0189] (実施例15)

支持体として、25  $\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムにプラズマ処理を行い、プライマー処理を行い反射層として、シリコーン樹脂100質量部に対してアルミナで表面処理を行ったアナターゼ型酸化チタン200質量部を配合し分散させ30  $\mu\text{m}$ の厚みで塗布し、その支持体の反対の面にはシリコーン粘着剤を30  $\mu\text{m}$ で塗工し、離型シートを積層し、150℃×1時間加熱し、反射層と粘着層を有したカバーレイフィルムを得た。このカバーレイフィルムを、回路を設けてあるFR-4基板にランドパターンを逃がすように穴を開け、位置を合わせて、貼り合わせた。

[0190] (実施例16)

シリコーン樹脂原材料組成物を調製後、シロキシ基繰返単位を4～10とする低分子量ポリシロキサンを300 ppm未満になるまで、減圧下及び／又は200℃で維持した後、常圧に戻して用いたこと以外は、実施例1～15と同様にして、シリコーン樹脂製反射基材を作製し、夫々LEDを実装してLED照明基板を製造したところ、何れも電気接点障害、くもりの発生による照度低下などの現象は、認められなかった。

[0191] (実施例17)

酸化チタンを、前記化学式(1)で示される反応性基含有ポリシロキサンをシランカップリング剤として浸漬し、表面処理したこと以外は、実施例1と同様にして、シリコーン樹脂製反射基材を作製したところ、表面処理しな

い場合よりも、前記表1で示す場合と同様に、樹脂製反射基材の曲げ強度と硬度とが、向上していた。

[0192] (製造例1)

チップオンボード（以下COBとする）として、ガラエポ基板（FR-4基板）に導体厚み8 $\mu$ m（銅箔）に回路を形成しランドパターン部を除き、ガスバリア層としてエポキシ樹脂でコーティングし150℃×4時間で硬化させたのち、スクリーン印刷により酸化チタン含有のシリコーン樹脂原材料組成物（シリコーン樹脂原材料組成物はポリジメチルシロキサン樹脂（商品名IVSM4500：モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製）100質量部にアナターゼ型酸化チタン（商品名A-950：堺化学工業株式会社製）とルチル型酸化チタン（商品名GTR-100：堺化学工業株式会社製）を80質量部添加したもの）を塗布し、150℃×1時間で硬化させ、COFのシリコーン樹脂製反射層を有する反射基材を得た。そこに日亜化学製白色LEDパッケージNSSW064を直接フィルム上にマウントし、鉛フリーリフローに通しハンダを行い、高反射COB基板を得た。

[0193] (製造例2)

製造例1と同様にしてCOBのシリコーン樹脂製反射層を有する基材を得た。そこにベアチップ（LED素子自体）を直接基板上のランドパターンに実装しワイヤー（金線）ボンディングし、シリコーン透明樹脂で封止を行い、ガラスエポキシLED照明基板を得た。この基板は熱による黄変もなく反射率98%のCOBとなった。

[0194] (製造例3)

COBとしてBTレジン製基板（三菱ガス化学株式会社製）に導体厚み8 $\mu$ m（銅箔）を形成しランドパターン部を除き、ガスバリア層としてエポキシ樹脂を20 $\mu$ mコーティングし150℃×4時間で硬化させたのち、反射層をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、COBのシリコーン樹脂製反射層を有する基材を得た。そこにベアチップ（LED素子自体）を直接基板上のパターンに実装しワイヤー（金線）ボンディングし

シリコン透明樹脂で封止を行った。さらに、樹脂封止されたベアチップ周辺を囲むようにして反射枠として酸化チタン含有シリコン樹脂原材料組成物をディスペンサーにより、高さ0.5mmで吐出したのち150℃×1時間で硬化させ厚物成形を行いシリコン樹脂製反射枠付高反射COBを得た。

[0195] (製造例4)

製造例1と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパターン部を除いて酸化チタン含有ジメチルシリコン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、φ1mmの微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。

[0196] (製造例5)

製造例1と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパターン部を除いて酸化チタンジメチルシリコン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、φ1mmの微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。更に、サンドペーパー#1000を用い表面を研磨し、酸化チタン粉末を露出させた基板の反射率を測定したところ、3%の反射率向上が見られた。

[0197] (製造例6)

製造例1と同様にして回路を形成した後、φ1mmに収まるランドパターン部を除いて無機白色フィラー粉末としてアナターゼ酸化チタンを100質量部、YAG蛍光体を3質量部含有させたジメチルシリコン樹脂原材料組成物をスクリーン印刷により塗布し、150℃×1時間で硬化させ、φ1mmの微細なランドパターンにダレることなく反射層を形成することができた。サンドペーパー#1000を用い表面を研磨し、無機白色フィラー粉末を露出させた基板の反射率を測定したところ90%であった。400~500nmの吸収が確認されその分反射率が低下したものの十分な反射率を維持できるとともに、550nmの励起光が確認された。

[0198] (製造例7)

支持体として、 $25\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムにプラズマ処理を行い、プライマー処理を行い反射層としてシリコン樹脂100質量部に対してアルミナで表面処理を行ったアナターゼ型酸化チタン200質量部を配合し分散させ $30\mu\text{m}$ の厚みで塗布し、その支持体の反対の面にはシリコン粘着剤を $10\mu\text{m}$ で塗工し、熱伝導層として、 $50\mu\text{m}$ のアルミ箔を積層し、更に粘着剤を $10\mu\text{m}$ で塗工し離型シートを積層し、 $150^{\circ}\text{C}\times 1$ 時間加熱し、反射層と粘着層を有したカバーレイフィルムを得た。このカバーレイフィルムを、回路を設けてあるFR-4基板にランドパターンを逃がすように穴を開け、位置を合わせて、貼り合わせた。

[0199] (製造例8)

実施例7と同様にシリコン樹脂原材料組成物となし、これを $25\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムの支持体上の導電回路に半田付けしたベアチップの周りに最外直径3mmのケーシングとして、高さ1mmでドーナツ状にポットティングして高反射枠を設け、チップ該当箇所を透明シリコン樹脂で封止し、反射基材を作製した。この反射基材を曲率半径20mmに撓ませたが反射異常は起きなかった。このポットティングした箇所の硬度は、JIS D型硬度計により、ショアD硬度で70であった

[0200] 以上の製造例1～7に示すように、シリコン樹脂及び酸化チタンのようなシリコン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を含有するシリコン樹脂製の液状又は塑性の原材料組成物は、支持体のみならず、板状支持体とも組み合わせることができる。

[0201] また、製造例8のように、酸化チタンのようなシリコン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を含有するシリコン樹脂製の液状又は塑性の原材料組成物をベアチップのケーシングとして、直径4mm以下といったように面積を取らない形でポットティングして用いても支持体の撓みの曲率半径が例えば20mm以上と大きい場合は、基材に用いることができる。

### 産業上の利用可能性

[0202] 本発明のシリコン樹脂製反射基材は、発光ダイオードのような発光素子

、白熱電球、ハロゲンランプ、水銀灯、蛍光灯のような発光装置に装着するもので、発光した光を反射して所望の方向へ出射させるために、それら発光光源に実装される配線基板やパッケージケースに用いられる。また、このシリコン樹脂製反射基材は、太陽電池素子のような光電変換素子に装着するもので、入射する光を反射して、光電変換素子へ集光させるために、それら光電変換素子に実装される配線基板やパッケージケースに用いられる。

[0203] 本発明のシリコン樹脂製反射基材の製造方法は、それら発光装置の作製に有用である。

[0204] また、本発明の原材料組成物は、シリコン樹脂製反射基材を塗布、噴霧、浸漬、成型等により簡易に形成するのに有用である。

[0205] また、本発明の原材料組成物は、室温に対して安定して保管することができるので、缶に入れ、レジストインクとして製品となる。また、適宜に粘度を調整して、反射層を形成するのに有用である。

## 請求の範囲

- [請求項1] 三次元架橋したシリコーン樹脂に、それよりも高屈折率の白色無機フィラー粉末が分散されつつ含有された反射層が、支持体上で膜状、立体状又は板状に形成されていることを特徴とするシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項2] 前記シリコーン樹脂が、非環状のジメチルシロキシ繰返単位を主成分として含んでいることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項3] 前記シリコーン樹脂中に含まれる、シロキシ基繰返単位を4～10とする低分子量ポリシロキサンが、最大でも300ppmであることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項4] 前記反射層が、1～2000 $\mu$ mの厚さで形成されていることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項5] 前記シリコーン樹脂が、屈折率を1.35以上、1.65未満とすることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項6] 前記白色無機フィラー粉末が、酸化チタン、アルミナ、硫酸バリウム、マグネシア、チッ化アルミニウム、チッ化ホウ素、チタン酸バリウム、カオリン、タルク、炭酸カルシウム、酸化亜鉛、シリカ、マイカ粉、粉末ガラス、粉末ニッケル及び粉末アルミニウムから選ばれる少なくとも1種の光反射剤であることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項7] 前記白色無機フィラー粉末が、シランカップリング処理されてシリコーン樹脂中に分散されたものであることを特徴とする請求項1に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項8] 前記白色無機フィラー粉末が、アナターゼ型若しくはルチル型の前記酸化チタン、前記アルミナ、又は前記硫酸バリウムであることを特徴とする請求項6に記載のシリコーン樹脂製反射基材。
- [請求項9] 前記酸化チタンが、Al、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZnO、ZrO<sub>2</sub>、及び／又

は $\text{SiO}_2$ で表面処理されて被覆されていることを特徴とする請求項 8 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項10] 前記白色無機フィラー粉末が、平均粒径 $0.05 \sim 50 \mu\text{m}$ であって、前記シリコン樹脂中に、 $2 \sim 80$ 質量%含有されていることを特徴とする請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項11] 前記反射層に、前記白色無機フィラー粉末と蛍光体とが分散されつつ含有されていることを特徴とする請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項12] 前記反射層の表面に、前記白色無機フィラー粉末と前記蛍光体との少なくとも何れかが露出していることを特徴とする請求項 11 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項13] 前記反射層の表面が連続して、ナノメートル乃至マイクロメートルオーダーの凹凸形状、プリズム形状、及び／又は梨地面形状の何れかの非鏡面となっていることを特徴とする請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項14] 前記シリコン樹脂の少なくとも一部の表面の研磨、粗面化、ざらついた金型による金型成形若しくはスタンプ成形、及び／又はケミカルエッチングによって、前記白色無機フィラー粉末の一部が、前記表面から露出していることを特徴とする請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項15] 導電パターンの付された前記支持体を覆う前記反射層が研磨され、前記導電パターンが露出していることを特徴とする請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項16] 前記表面の上に、金属膜が付されていることを特徴とする請求項 15 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

[請求項17] 前記金属膜が、銅、銀、金、ニッケル、及びパラジウムから選ばれる少なくとも何れかの金属で形成されていることを特徴とする請求項 16 に記載のシリコン樹脂製反射基材。

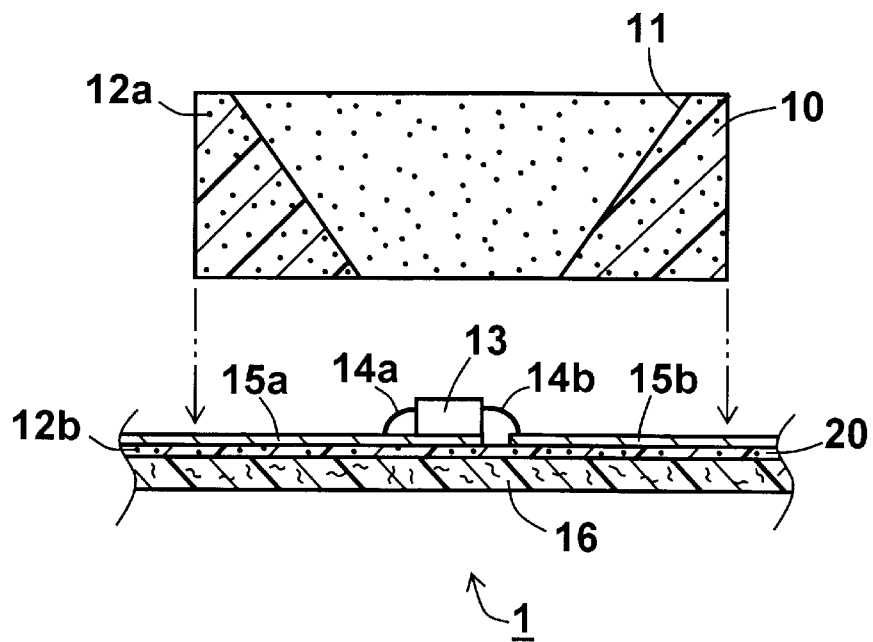
- [請求項18] 前記金属膜が、めっき被膜、金属蒸着被膜、金属溶射膜、又は接着された金属箔膜であることを特徴とする請求項16に記載のシリコン樹脂製反射基材。
- [請求項19] 発光素子、発光装置及び光電変換素子の何れかの背面、外周及び／又は導光材反射面に、配置されていることを特徴とする請求項1に記載のシリコン樹脂製反射基材。
- [請求項20] 三次元架橋したシリコン樹脂へと重合させる重合性シリコン樹脂原材料に、前記シリコン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を分散させて原材料組成物とした後、前記原材料組成物を膜状に支持体上に付し、三次元架橋させて前記シリコン樹脂へ重合させることにより、反射層を前記支持体上で膜状、立体状又は板状に形成することを特徴とするシリコン樹脂製反射基材の製造方法。
- [請求項21] 前記重合が、加湿、加圧及び紫外線照射の少なくとも何れかにより、なされることを特徴とする請求項20に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法。
- [請求項22] 前記重合が、金型内での射出成形、又は金型での押圧成形の際加熱及び／又は加圧により、なされることを特徴とする請求項20に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法。
- [請求項23] 前記金型の表面が、フッ素樹脂でコーティングされていることを特徴とする請求項22に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法。
- [請求項24] 前記重合性シリコン樹脂原材料に、前記シリコン樹脂への三次元架橋の架橋剤と、加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤とが、分散して含有されており、前記シリコン樹脂よりも高屈折率の白色無機フィラー粉末を分散させて、前記原材料組成物となした後、前記加熱によって前記重合がなされることを特徴とする請求項20に記載のシリコン樹脂製反射基材の製造方法。
- [請求項25] 重合性シリコン樹脂の原材料と、前記シリコン樹脂の原材料を三次元架橋させる架橋剤と、前記シリコン樹脂よりも高屈折率の白

色無機フィラー粉末とが含まれた液状又は塑性の原材料組成物であって、請求項 1 に記載のシリコン樹脂製反射基材を形成するために用いられる原材料組成物。

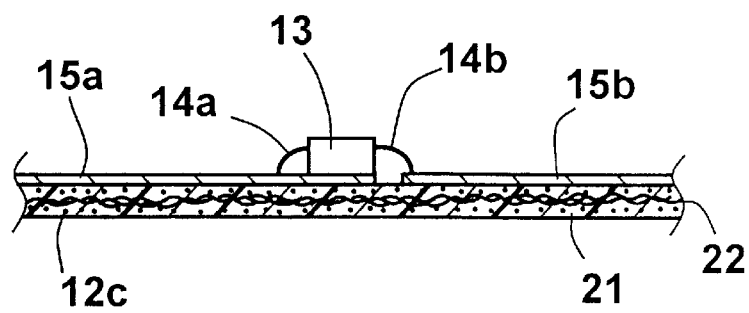
[請求項26]       加熱によって失活又は揮発する反応抑制剤が含まれていることを特徴とする請求項 2 5 に記載の原材料組成物。

[請求項27]       粘度調整のための有機溶剤及び／又は反応性希釈剤が含まれていることを特徴とする請求項 2 5 に記載の原材料組成物。

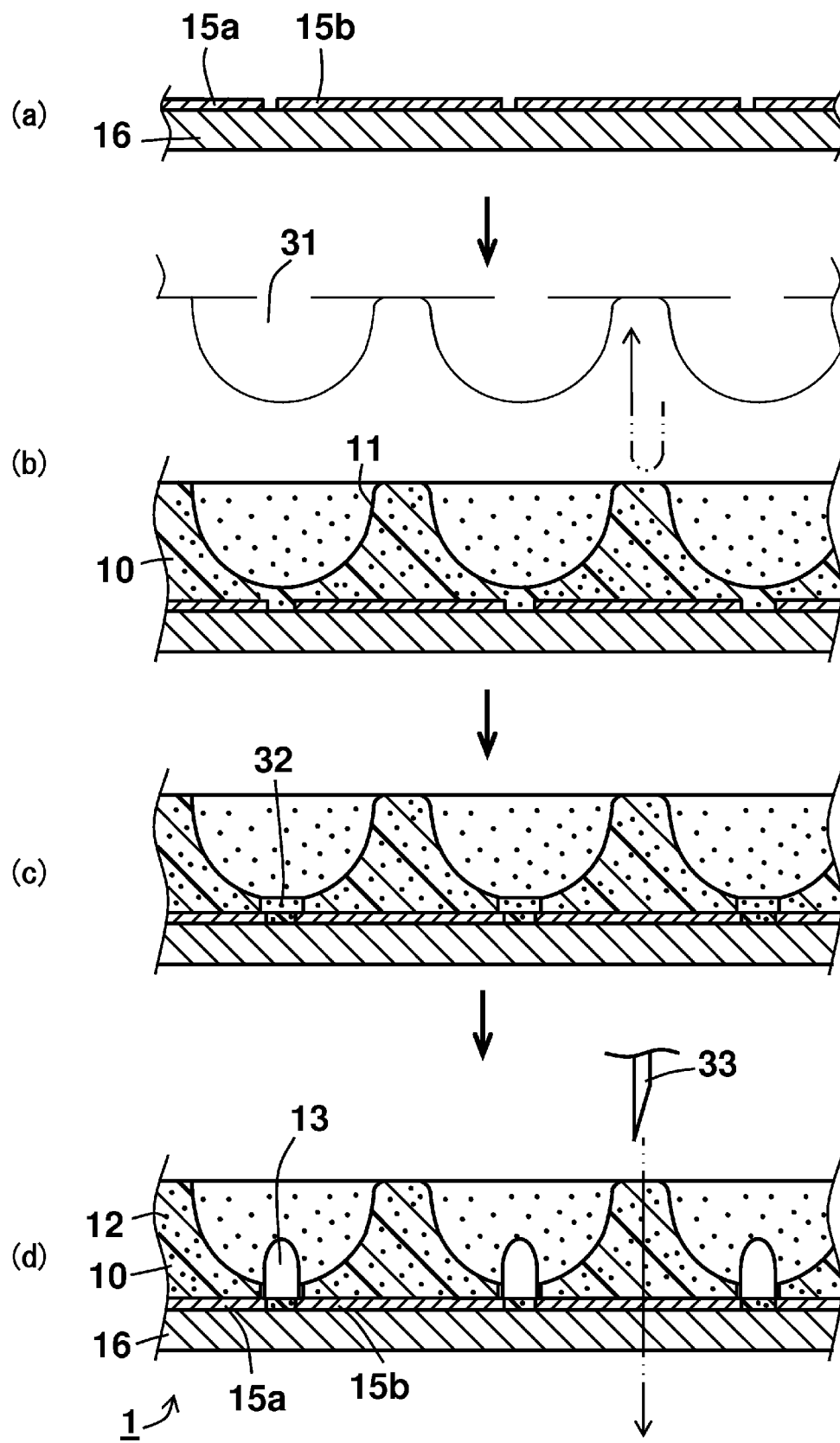
[図1]



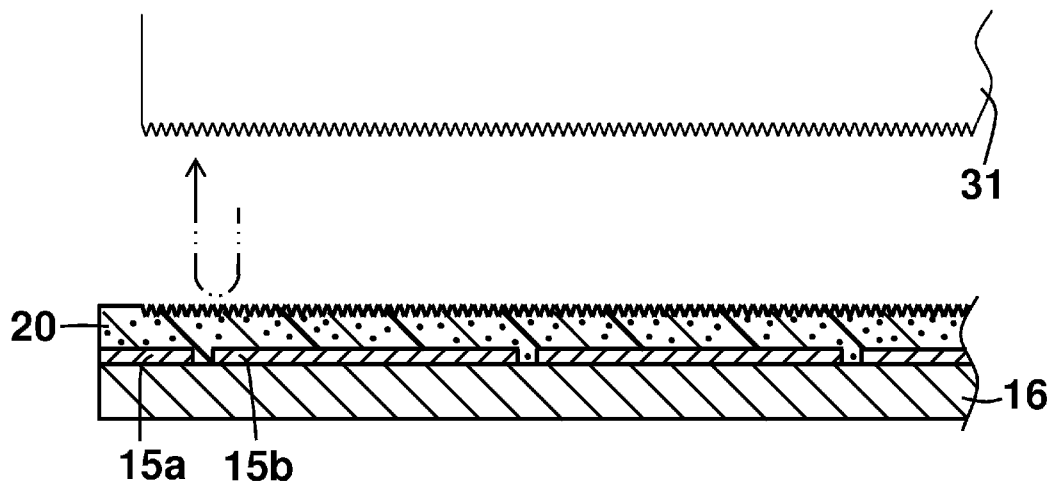
[図2]



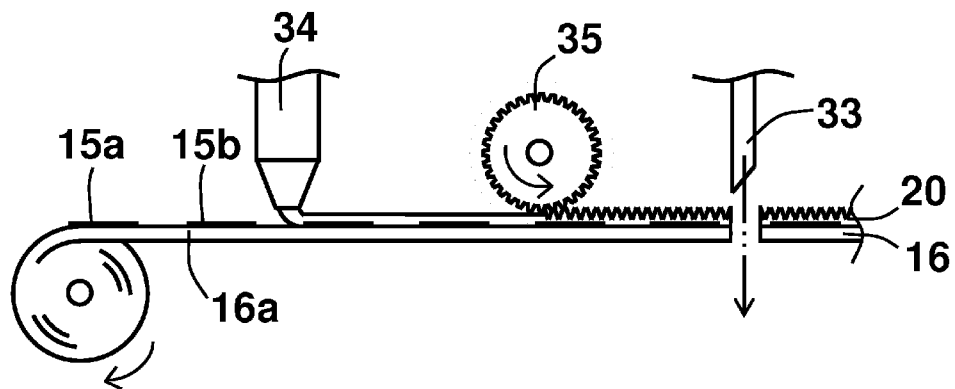
[図3]



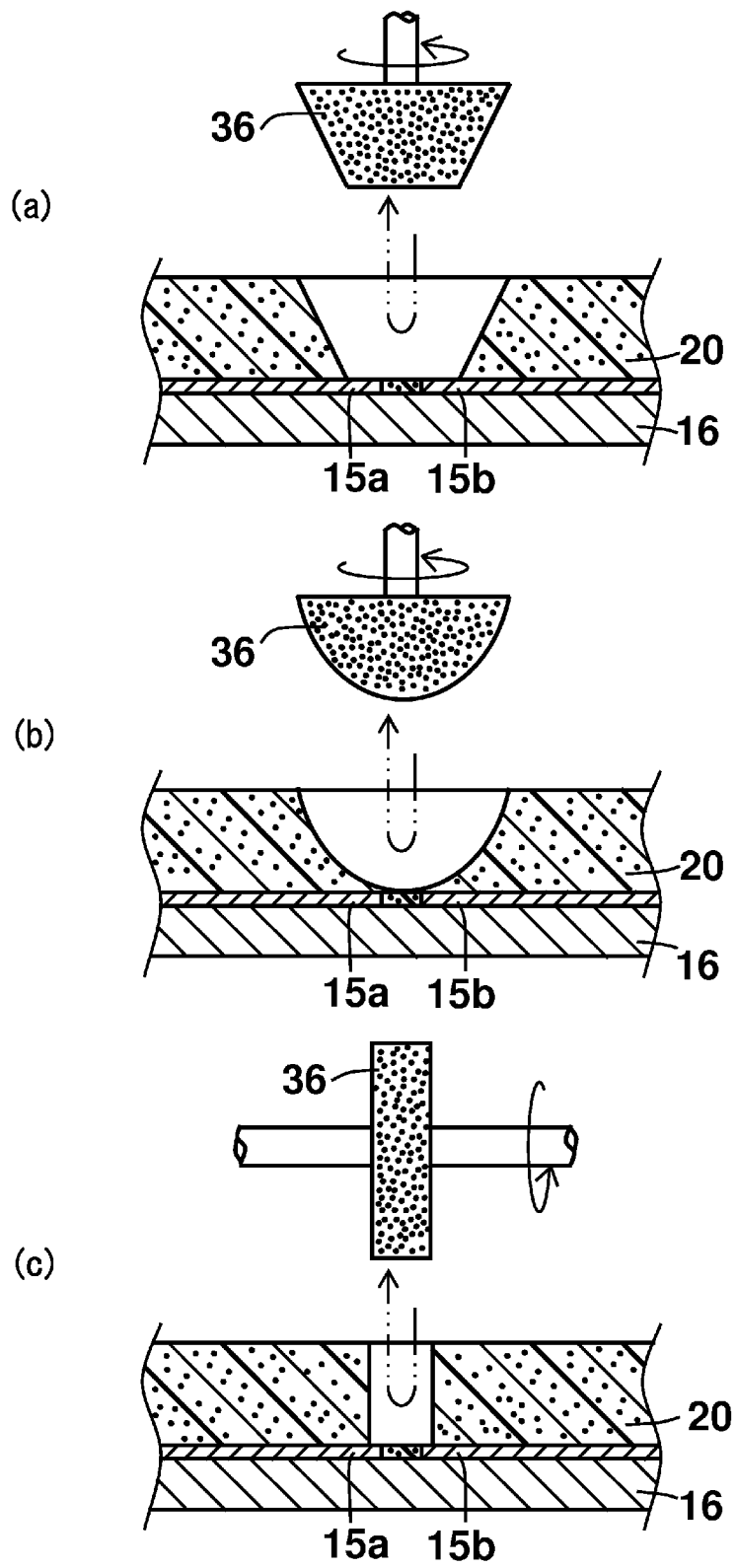
[図4]



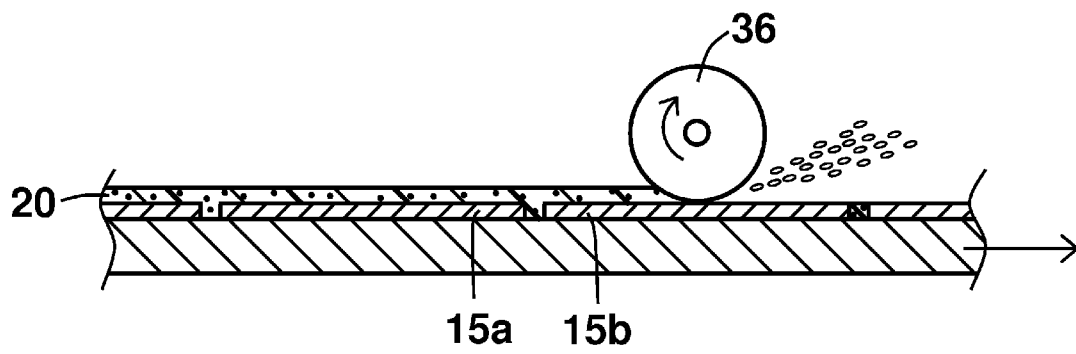
[図5]



[図6]

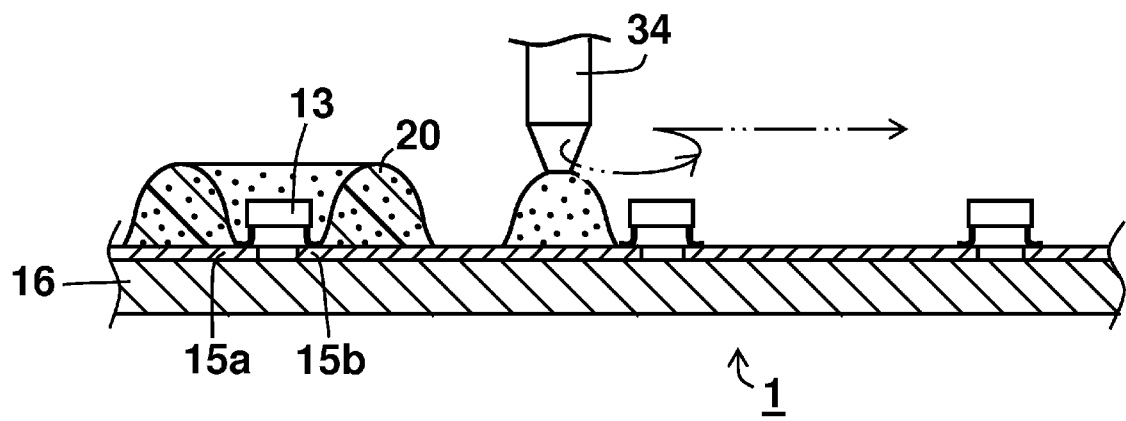


[図7]



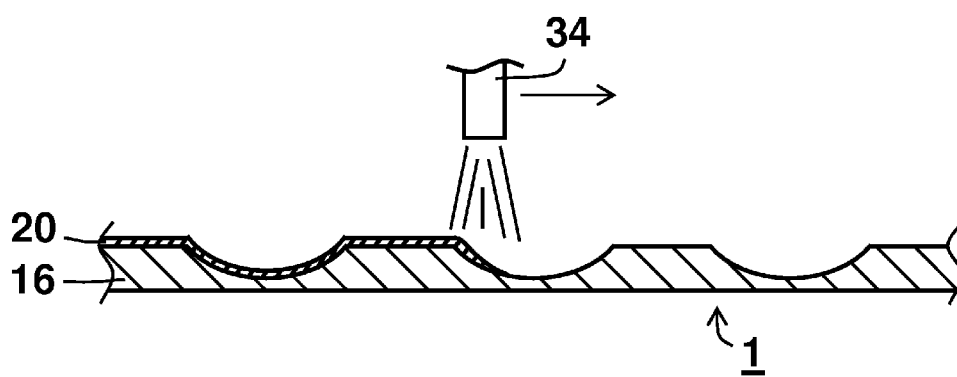
[図8]

図 8

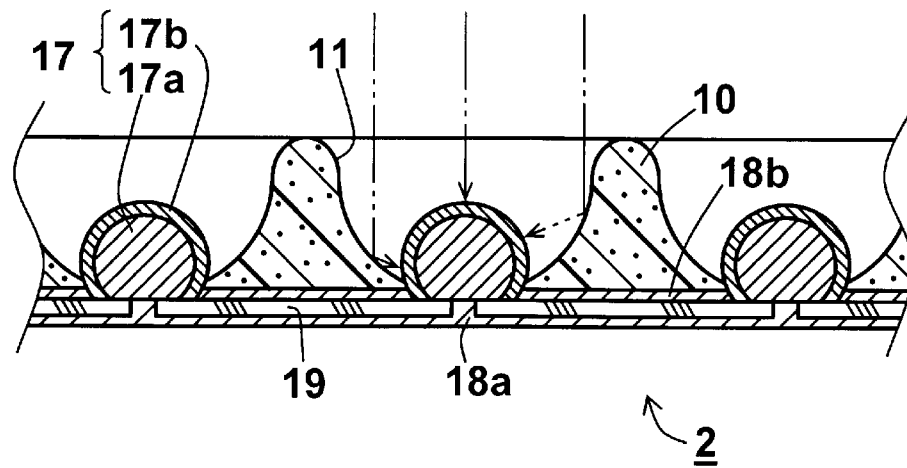


[図9]

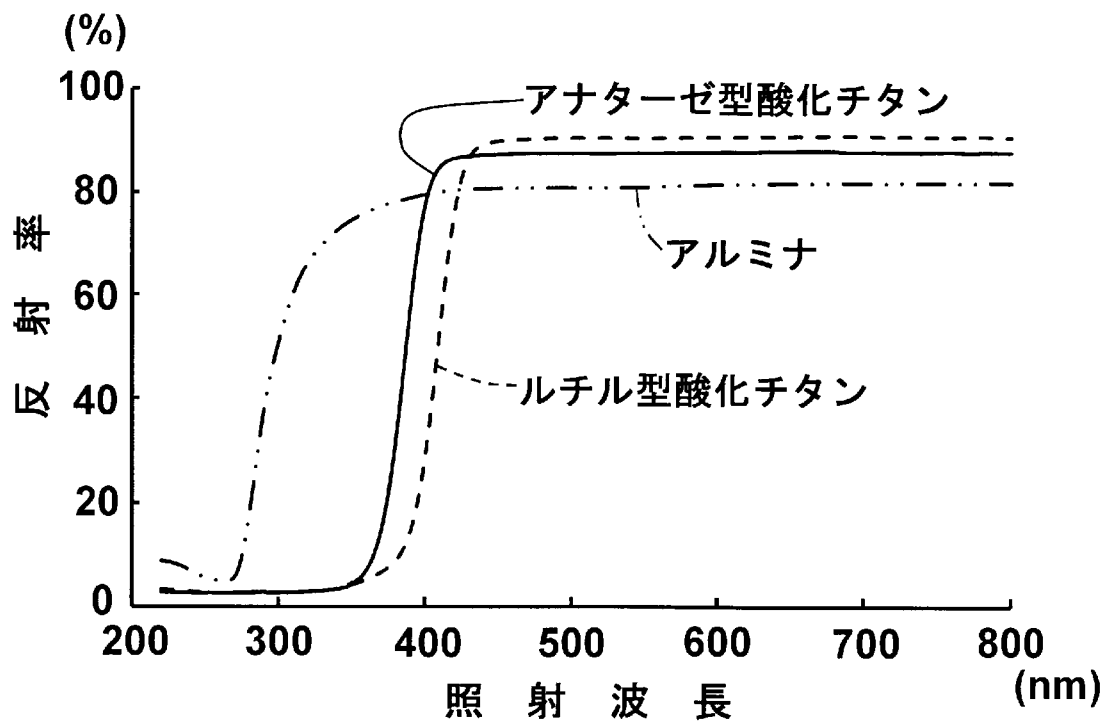
図 9



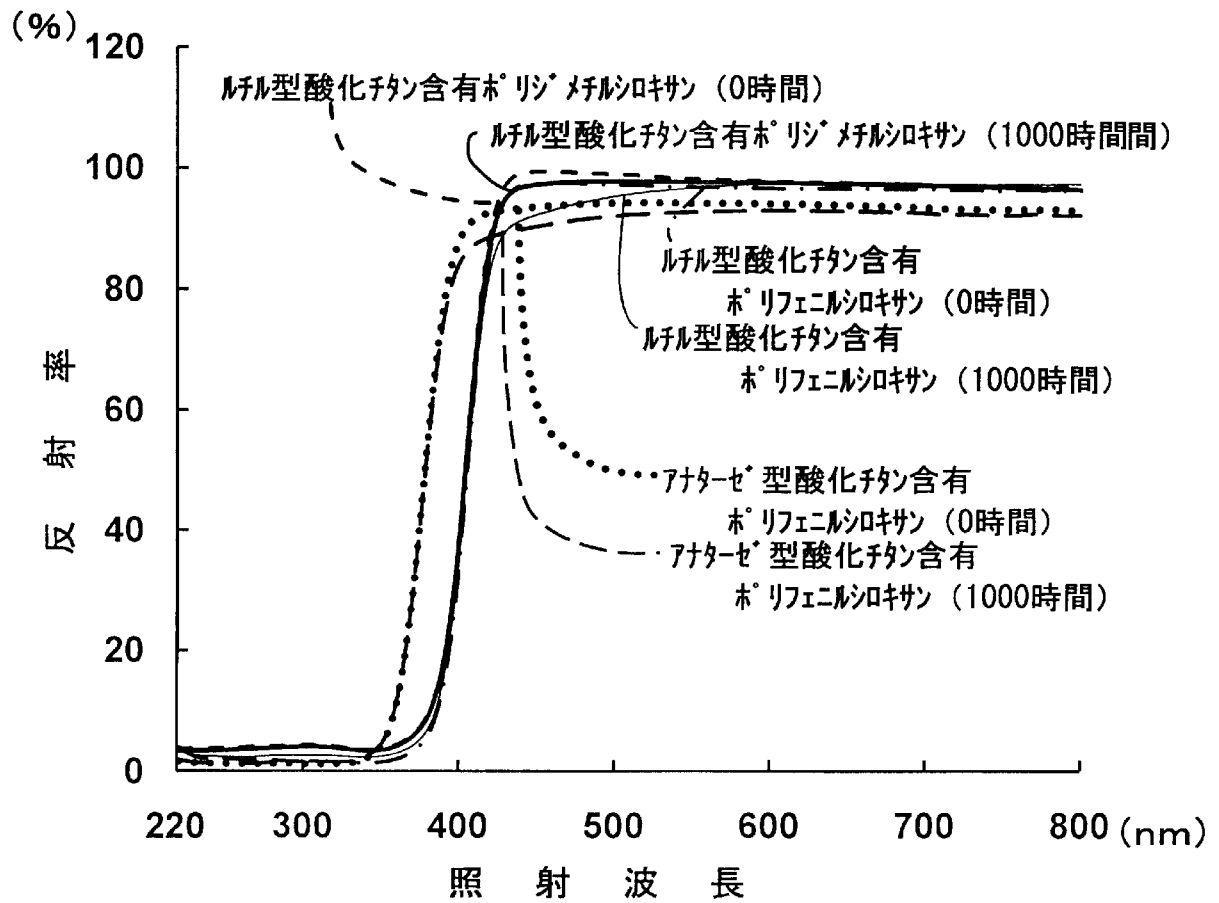
[図10]



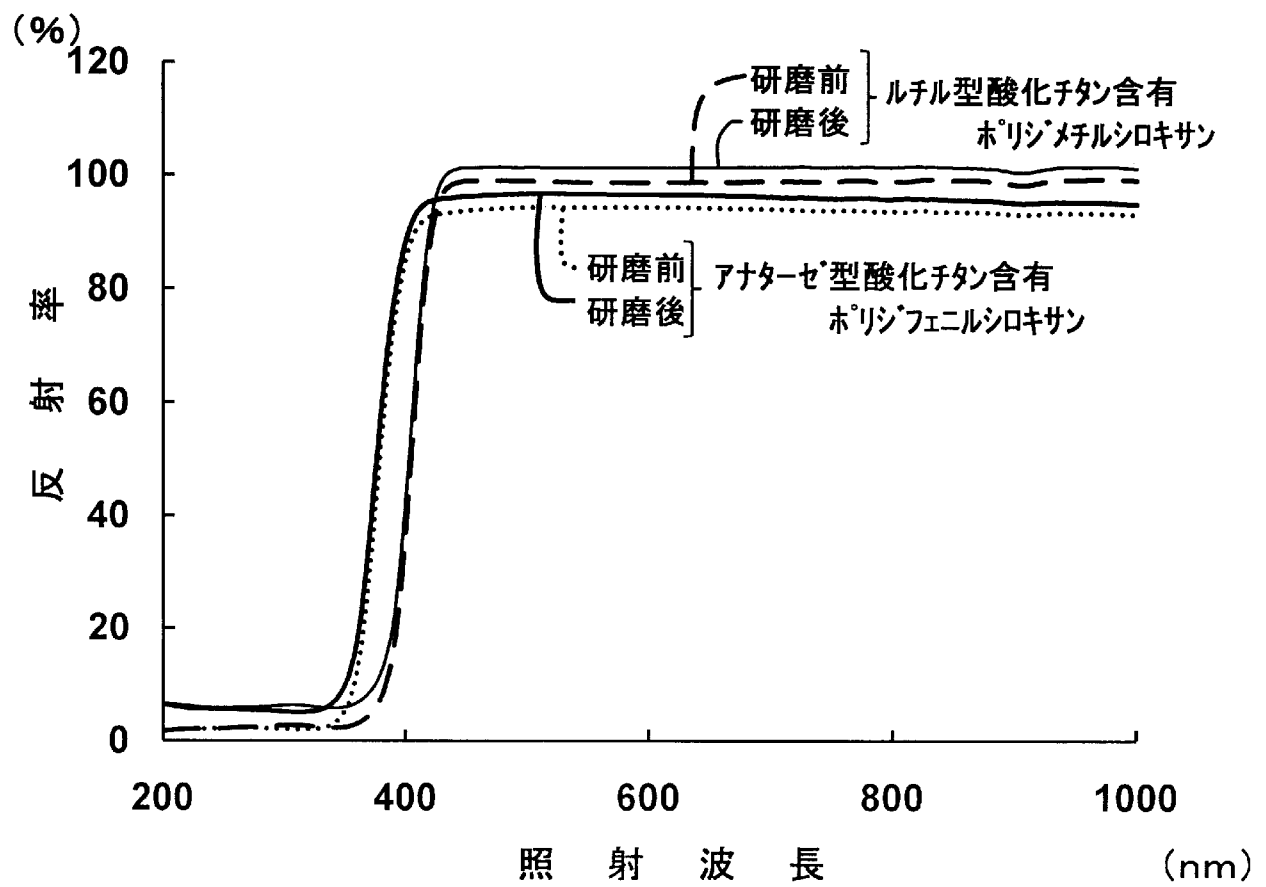
[図11]



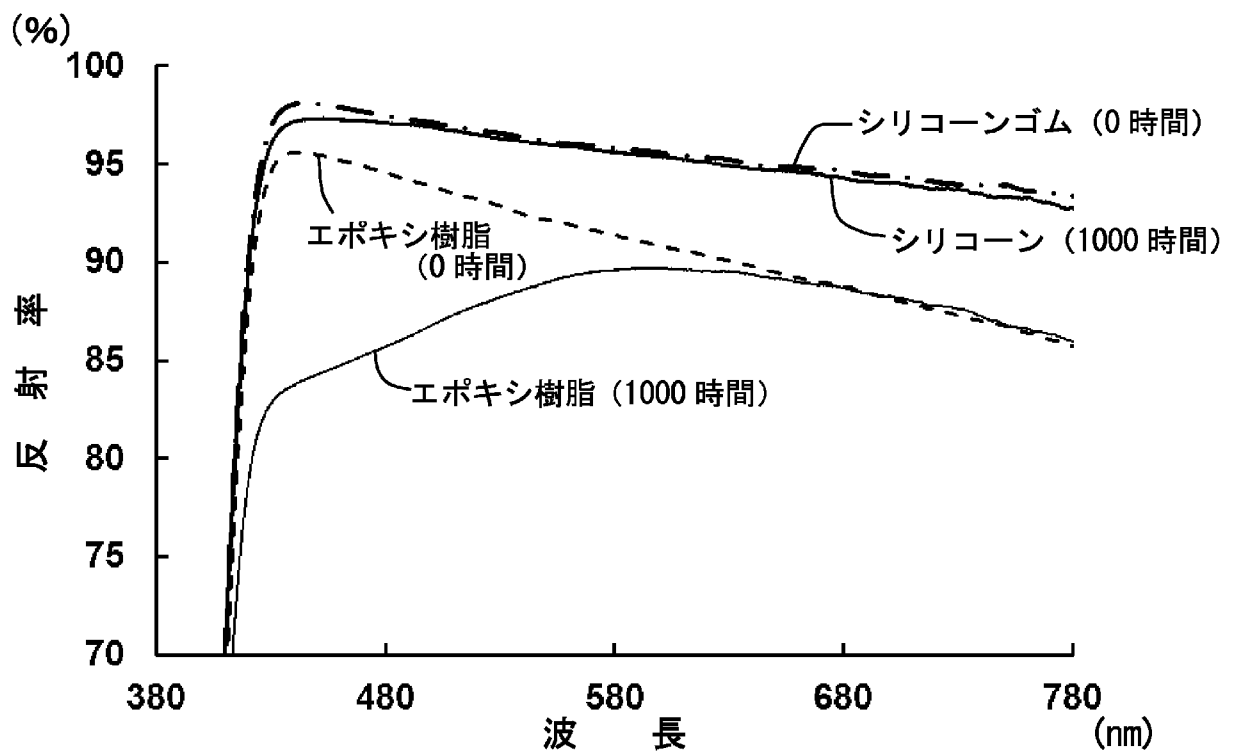
[図12]



[図13]



[図14]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/073445

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L33/60(2010.01)i, B29C45/14(2006.01)i, B29C47/02(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L83/04(2006.01)i, F21V7/22(2006.01)i, H01L31/04(2006.01)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)

H01L31/04-31/042, 31/052, 31/06, 33/00-33/64, B29C45/00-45/24, 45/46-45/63, 45/70-45/72, 45/74-47/96, C08G69/00-69/50

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 | 1996-2011 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2011 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2011 |

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. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X<br>Y    | JP 2009-164275 A (Asahi Rubber Corp.),<br>23 July 2009 (23.07.2009),<br>paragraphs [0001] to [0056], [0073] to [0079]<br>(Family: none)                                  | 25, 27<br>1-24, 26    |
| Y         | JP 2008-135390 A (Avago Technologies ECU IP<br>(Singapore) Pte. Ltd.),<br>12 June 2008 (12.06.2008),<br>paragraphs [0013] to [0027]; fig. 1 to 6<br>& US 2008/0117619 A1 | 1-24, 26              |
| Y         | JP 2006-324623 A (YANG PI-FU),<br>30 November 2006 (30.11.2006),<br>paragraphs [0025] to [0039]; fig. 1 to 15<br>& US 2006/0261366 A1 & TW 256737 B                      | 1-24, 26              |



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  
08 March, 2011 (08.03.11)

Date of mailing of the international search report  
22 March, 2011 (22.03.11)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/073445

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y         | JP 2006-124600 A (Teijin Chemicals Ltd.),<br>18 May 2006 (18.05.2006),<br>paragraphs [0056] to [0061]<br>(Family: none)                           | 9                     |
| Y         | JP 2009-129801 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha),<br>11 June 2009 (11.06.2009),<br>paragraph [0030]<br>(Family: none)                       | 9                     |
| Y         | JP 2008-251316 A (Hitachi, Ltd.),<br>16 October 2008 (16.10.2008),<br>paragraph [0071]<br>(Family: none)                                          | 12, 14                |
| Y         | WO 2007/074892 A1 (Nichia Chemical Industries, Ltd.),<br>05 July 2007 (05.07.2007),<br>paragraphs [0022] to [0047]; fig. 1 to 4<br>(Family: none) | 15-18                 |
| Y         | JP 2009-182149 A (Nitto Denko Corp.),<br>13 August 2009 (13.08.2009),<br>paragraphs [0006] to [0040]; fig. 1, 2<br>(Family: none)                 | 20-23                 |
| Y         | JP 5-315654 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha),<br>26 November 1993 (26.11.1993),<br>paragraph [0016]<br>(Family: none)                      | 23                    |
| Y         | JP 2008-159713 A (Momentive Performance Materials Japan L.L.C.),<br>10 July 2008 (10.07.2008),<br>paragraph [0025]<br>(Family: none)              | 24, 26                |

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L33/60(2010.01)i, B29C45/14(2006.01)i, B29C47/02(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L83/04(2006.01)i, F21V7/22(2006.01)i, H01L31/04(2006.01)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. H01L31/04-31/042, 31/052, 31/06, 33/00-33/64, B29C45/00-45/24, 45/46-45/63, 45/70-45/72, 45/74-47/96 C08G69/00-69/50

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 1 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 1 1 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 1 1 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<br>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<br>請求項の番号     |
|-----------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| X<br>Y          | JP 2009-164275 A (株式会社朝日ラバー) 2009.07.23, 【0001】<br>- 【0056】、【0073】- 【0079】欄 (ファミリーなし)                                           | 25, 27<br>1-24, 26 |
| Y               | JP 2008-135390 A (アバゴ・テクノロジーズ・イーシービーユー・<br>アイピー (シンガポール) プライベート・リミテッド) 2008.06.12,<br>【0013】- 【0027】欄、図1-6 & US 2008/0117619 A1 | 1-24, 26           |
| Y               | JP 2006-324623 A (楊丕福) 2006.11.30, 【0025】- 【003<br>9】欄、図1-15 & US 2006/0261366 A1 & TW 256737 B                                 | 1-24, 26           |

☒ 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

0 8 . 0 3 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

2 2 . 0 3 . 2 0 1 1

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)

土屋 知久

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

2 K

8 8 2 6

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                 |                |
|-----------------------|---------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| Y                     | JP 2006-124600 A (帝人化成株式会社) 2006.05.18, 【0056】<br>－ 【0061】欄 (ファミリーなし)           | 9              |
| Y                     | JP 2009-129801 A (電気化学工業株式会社) 2009.06.11, 【0030】欄 (ファミリーなし)                     | 9              |
| Y                     | JP 2008-251316 A (株式会社日立製作所) 2008.10.16, 【0071】欄 (ファミリーなし)                      | 12, 14         |
| Y                     | WO 2007/074892 A1 (日亜化学工業株式会社) 2007.07.05, [0022] － [0047] 欄、図1－4 (ファミリーなし)     | 15-18          |
| Y                     | JP 2009-182149 A (日東電工株式会社) 2009.08.13, 【0006】<br>－ 【0040】欄、図1, 2 (ファミリーなし)     | 20-23          |
| Y                     | JP 5-315654 A (電気化学工業株式会社) 1993.11.26, 【0016】欄 (ファミリーなし)                        | 23             |
| Y                     | JP 2008-159713 A (モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社) 2008.07.10, 【0025】欄 (ファミリーなし) | 24, 26         |