

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2008年6月5日 (05.06.2008)

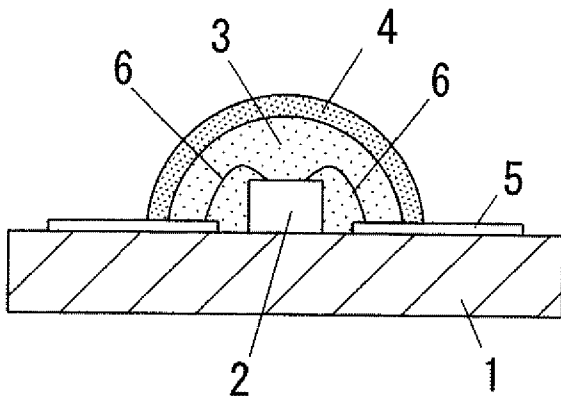
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/065966 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 33/00 (2006.01) C08L 83/07 (2006.01)
H01L 31/02 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2007/072654
 - (22) 国際出願日: 2007年11月22日 (22.11.2007)
 - (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 2006-319049
2006年11月27日 (27.11.2006) JP
 - (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電工株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC WORKS, LTD.) [JP/JP]; 〒5718686 大阪府門真市大字門真 1 0 4 8 番地 Osaka (JP).
 - (72) 発明者; および
 - (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 篠谷 賢一 (SHINOTANI, Ken-ichi) [JP/JP]; 〒5718686 大阪府門真市大字門真 1 0 4 8 番地 松下電工株式会社内 Osaka (JP).
 - (74) 代理人: 田中 光雄, 外 (TANAKA, Mitsuo et al.); 〒5400001 大阪府大阪市中央区城見 1 丁目 3 番 7 号 I M P ビル 青山特許事務所 Osaka (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, 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, 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 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) Title: SEMICONDUCTOR OPTICAL DEVICE AND TRANSPARENT OPTICAL MEMBER

(54) 発明の名称: 半導体光装置及び透明光学部材



(57) Abstract: Disclosed is a semiconductor optical device comprising a semiconductor light-emitting element or a semiconductor light-receiving element sealed with a sealing material, in which the sealing material is hardly deteriorated and which has a long service life. A semiconductor light-emitting element or a semiconductor light-receiving element is sealed with a silicon compound comprising a cage-type silsesquioxane compound represented by the formula: $(AR^1R^2SiOSiO_{1.5})_n(BR^3R^4SiOSiO_{1.5})_p(HOSiO_{1.5})_{m-n-p}$ [wherein A represents a group having a carbon-carbon unsaturated bond; B represents a substituted or unsubstituted saturated alkyl group, a hydroxy group or a hydrogen atom; R^1, R^2, R^3 and R^4 independently represent a functional group selected from a lower alkyl group, a phenyl group and a lower arylalkyl group; m represents a number selected from 6, 8, 10 and 12; n represents an integer of 2 to m; and p represents an integer of 0 to m-n] and a compound represented by the formula: $HR^5R^6Si-X-SiHR^7R^8$ [wherein X represents a bivalent functional group or an oxygen atom; and R^5, R^6, R^7 and R^8 independently represent an alkyl group having 1 to 3 carbon atoms or a hydrogen atom], and subsequently the silicon compound is polymerized.

(57) 要約: 半導体発光素子または半導体受光素子を封止材で封止した半導体光装置において、封止材が劣化し難く寿命に優れた半導体光装置を提供する。 $(AR^1R^2SiOSiO_{1.5})_n(BR^3R^4SiOSiO_{1.5})_p(HOSiO_{1.5})_{m-n-p}$ (Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基、Bは置換又は非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子、 R^1, R^2, R^3, R^4 は低級アルキル基、フェニル基、低級アリーールアルキル基から選ばれる官能基、mは6, 8, 10, 12から選ばれた数、nは2~mの整数、pは0~m-nの整数)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物と、 $HR^5R^6Si-X-SiHR^7R^8$ (Xは2価の官能基又は酸素原子、 R^5, R^6, R^7, R^8 は炭素数1~3のアルキル基又は水素原子)で表される化合物とを含有するケイ素化合物で、半導体発光素子又は半導体受光素子を封止して重合する。

WO 2008/065966 A1

明 細 書

半導体光装置及び透明光学部材

技術分野

[0001] 本発明は、シルセスキオキサン化合物を封止材として用いた半導体光装置、及びシルセスキオキサン化合物を成形材として用いた透明光学部材に関する。

背景技術

[0002] 近年、発光ダイオード、レーザーダイオード、半導体レーザー等の半導体発光素子が発光光源として利用されている。特に発光ダイオードは、長寿命な小型光源として、またサイン光源用途やディスプレイ光源用途として幅広く利用されている。

[0003] また、半導体発光素子は白色LEDユニットを組み込んだ照明用器具としての開発も進められており、今後ますます広く普及していくことが予想されている。白色LEDユニットに用いられる白色LEDの光源には青色域・近紫外域LEDが用いられ、照明用器具としての要求を満足させるために高出力・高輝度化を達成するための開発が進められている。

[0004] そしてこのように高出力・高輝度化された半導体発光素子からは高い熱エネルギー及び光エネルギーが発せられるために、このような半導体発光素子を基板上に実装して封止した場合には、一般に用いられているエポキシ系の封止材の場合、封止材が急速に劣化してしまい、比較的短寿命になるという問題があった。

[0005] 前記問題を解決するために、耐熱・耐候性に優れた封止材、例えばシロキサン化合物のような金属酸化物や低融点ガラス等を用いた封止材が検討されている。例えば、特許文献1では耐熱・耐光性に優れた材料として、ゾルーゲル法により得られる金属酸化物であるメタロキサンを用いて半導体発光素子を封止することにより得られる半導体装置が開示されている。

[0006] しかし、ゾルーゲル法で得られる金属酸化物であるメタロキサンは、多孔質構造となってしまうため吸水率が高く、使用時に吸湿してクラック等が生じる恐れがあるという問題があった。

[0007] また、情報の記録として、樹脂ディスクに光を照射して記録する例えばDVD装置等

が用いられており、近年の高容量化の要望に対応するため、青色域・近紫外域の光を照射して記録・読み出しする装置が検討されている。そして樹脂ディスクに記録された情報を読み取る場合には、青色域・近紫外域のレーザー光を樹脂ディスクの記録面に照射して、記録面で反射した光を半導体受光素子で受光することにより、情報の読み出しが行われている。このような半導体受光素子も、一般に封止材で封止されて保護されており、従来の赤色レーザー光を用いたものと比較して高出力のレーザー光が照射されるため、エポキシ系の封止材を用いた場合、封止材が劣化しやすいという問題があった。

[0008] さらにDVD装置では、記録スピードの向上も要望されている。ディスクの回転スピードアップにより記録速度向上が図られるが、回転スピードが速いと、遅いときと比較して一定時間中にディスクに照射されるレーザー光量(パワー密度)が減少する。この減少分を補完する目的でレーザーパワーの増大が進行しており、この点でもエポキシ系の封止材を用いた場合、封止材が劣化しやすいという問題があった。

[0009] また、上記青色域・近紫外域のレーザー光を樹脂ディスクの記録面に照射して、記録面で反射した光を半導体受光素子で受光するに際し、レーザー光の径を絞ったり、光路を曲げることが行われており、この場合に用いられるレンズやプリズム等の透明光学部材も、比較的高出力のレーザー光が照射されるため、エポキシ系の樹脂を用いて製造した場合、劣化し易いという問題があった。

特許文献1:特許第3412152号公報

発明の開示

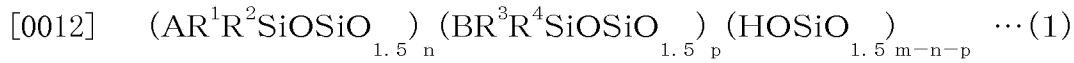
発明が解決しようとする課題

[0010] 本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、半導体発光素子または半導体受光素子を封止材で封止した半導体光装置において、封止材が劣化し難く寿命に優れた半導体光装置を提供することを目的とするものであり、また青色域・近紫外域の光が照射される部分に使用される透明光学部材において、劣化し難く寿命に優れた透明光学部材を提供することを目的とするものである。

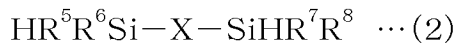
課題を解決するための手段

[0011] 本発明に係る半導体光装置は、下記式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン

化合物、又はこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物の部分重合体と、下記式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物で、半導体発光素子又は半導体受光素子を封止して成ることを特徴とするものである。

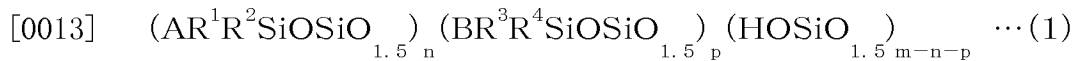


(式(1)中、Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基、Bは置換又は非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は各々独立に低級アルキル基、フェニル基、低級アリールアルキル基から選ばれる官能基を表し、mは6, 8, 10, 12から選ばれた数、nは2~mの整数、pは0~m-nの整数を表す)

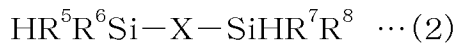


(式(2)中、Xは2価の官能基又は酸素原子を表し、 R^5 , R^6 , R^7 , R^8 は各々独立に炭素数1~3のアルキル基又は水素原子を表す)

また本発明に係る透明光学部材は、下記式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物、又はこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物の部分重合体と、下記式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物を、重合して成ることを特徴とするものである。



(式(1)中、Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基、Bは置換又は非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は各々独立に低級アルキル基、フェニル基、低級アリールアルキル基から選ばれる官能基を表し、mは6, 8, 10, 12から選ばれた数、nは2~mの整数、pは0~m-nの整数を表す)



(式(2)中、Xは2価の官能基又は酸素原子を表し、 R^5 , R^6 , R^7 , R^8 は各々独立に炭素数1~3のアルキル基又は水素原子を表す)

発明の効果

[0014] 式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物では、シリコン原子と酸素原子とで形成された多面体構造のシリコン原子にシロキサン結合を介して炭素-炭素不飽和結合を有する基が結合しており、この炭素-炭素不飽和結合に式(2)の化合物の-SiHがヒドロシリル化反応して、付加重合することにより架橋して硬化し、シリカのナノサイ

ズかご型構造を有機のセグメントでつなぎ合わせたような三次元架橋構造が形成され、ガラスライクな機能が発現し、青色域・近紫外域の光が照射された状態で使用されても劣化し難く、かつ吸水率が低い硬化物となる。また、このようにかご型シルセスキオキサン化合物を式(2)の化合物と反応させて架橋することによって、かご型シルセスキオキサン化合物をダイレクトに架橋反応させる場合よりも、未反応基が少ない状態で架橋して硬化させることができ、ストレスクラッキングが抑制され、かつ短波長高エネルギー光に対する照射耐性の高い硬化物を得ることができる。

[0015] このため、劣化し難く寿命に優れた封止材で封止した半導体光装置を得ることができ、また劣化し難く寿命に優れた材料で透明光学部材を得ることができる。

[0016] また、かご型シルセスキオキサン化合物に水酸基を導入することによって、表面が水酸基で覆われるTiO₂やZrO₂等の重金属ゾルとの親和性を高めることができ、かご型シルセスキオキサン化合物と重金属ゾルとの分散性を高めて、重金属ゾルの導入によって屈折率を均一に高めた硬化物を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の半導体光装置の実施の形態の一例を示す概略断面図である。

符号の説明

[0018] 2 半導体発光装置

3 封止材

発明を実施するための最良の形態

[0019] 以下、本発明を実施するための最良の形態を説明する。

図1は半導体光装置の一例を示すものであり、基板1の表面に半導体発光素子2が実装され、半導体発光素子2の全体と基板1の表面の一部が封止材3により封止されている。この封止材3の表面には蛍光体の層4が形成されている。また基板1上には電子回路5が形成され、図1の実施の形態ではボンディングワイヤ6で半導体発光素子2と電氣的に接続されている。

[0020] 上記の半導体発光素子2としては、公知の半導体発光素子2を使用することができるが、450nm以下の青色域や近紫外域の波長の光を出力する素子を用いる場合、得られる半導体光装置の照度を高めたり、演色性を高めたりすることができるために

好ましい。半導体発光素子2の具体例としては、例えば半導体基材上にGaAlN、ZnS、ZnSe、SiC、GaP、GaAlAs、AlInGaP、InGaN、GaN、AlInGaN等の半導体を発光層として形成させたものを用いることができる。この半導体発光素子2の実装は、基板1の半導体発光素子2を実装する部分に半導体発光素子2を載置し、ワイヤボンディング実装やフリップチップ実装等することにより行なうことができる。

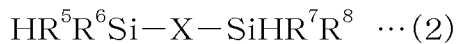
[0021] また上記の基板1は、セラミックス材料、熱可塑性樹脂・熱硬化性樹脂等の樹脂材料を各種成形法により所望の形状に成形して得ることができるものであり、その形状は特に限定されない。基板1に用いることのできるセラミックス材料としては、アルミナ、窒化アルミニウム、ジルコニア、炭化ケイ素等を挙げることができ、これらは公知の圧縮成形や射出成形(CIM)等により成形し、焼結することによって基板1として形成することができる。セラミックス材料は熱伝導性に優れているために半導体発光素子2の発熱による熱を基板1の全体に拡散させ、効率的に放熱できる点から好ましく用いることができる。また、樹脂材料としては、ポリフェニレンサルファイド(PPS)、ポリブタライミド(PPA)或いは液晶ポリマー(LCP)等の熱可塑性樹脂や、エポキシ樹脂、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂を使用することができる。この樹脂材料にガラス、シリカ、アルミナ等の充填材を配合することによって、基板1の熱伝導性や耐熱性を向上させることができる。

さらに基板1の表面には、上記のように半導体発光素子2と接続する所定のパターンの電気回路5が形成されているが、この形成方法は特に限定されず公知の方法を用いることができる。

[0022] 尚、図1の実施の形態では、本発明に係る半導体光装置を、半導体発光素子2を封止材3で封止した半導体発光装置を用いて説明したが、半導体受光素子を封止材で封止した半導体受光装置であってもよいのはいうまでもない。

[0023] 本発明において、上記の封止材3は、下記の式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物、またはこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物部分重合体と、下記の式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物を、架橋して形成されるものである。

[0024]
$$\left(\text{AR}^1 \text{R}^2 \text{SiOSiO} \right)_{1.5n} \left(\text{BR} \text{R} \text{SiOSiO} \right)_{3/4} \left(\text{HOSiO} \right)_{1.5p} \left(\text{HOSiO} \right)_{1.5m-n-p} \dots (1)$$



上記の式(1)において、Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基を表すものであり、炭素-炭素二重結合または炭素-炭素三重結合を基の一部に含むものであれば特に限定はされない。例えば、アルケニル基、アルキニル基、シクロヘキセニル基を含むものを挙げる事ができるものであり、アルケニル基またはアルキニル基を含む基としては、例えばビニル基、アリル基等の炭素-炭素二重結合を有する基や、エチニル基、プロピニル基等の炭素-炭素三重結合を有する基を挙げる事ができる。また炭素-炭素二重結合または炭素-炭素三重結合を有する基と、不飽和基を有しない2価の基が結合した基を挙げる事もできるものであり、この不飽和基を有しない2価の基が結合した基の例としては、シクロヘキセニルエチルジメチルシロキシ基等を挙げる事ができる。

[0025] また上記の式(1)のBは、置換または非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子を表すものである。飽和アルキル基としては例えば、置換または非置換で炭素数1~8の1価の飽和炭化水素基を挙げる事ができる。具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基等のアルキル基;シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基;メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基;2-フェニルエチル基、2-フェニルプロピル基、3-フェニルプロピル基等のアラルキル基;クロロメチル基、 γ -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等を例示することができる。これらの中でも、反応時の立体障害を減らす点から炭素数1~4のアルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。尚、一つの分子内に複数のB基を有する場合、すなわち $p \geq 2$ の場合、それぞれのB基は同じであってもよく、異なってもよい。

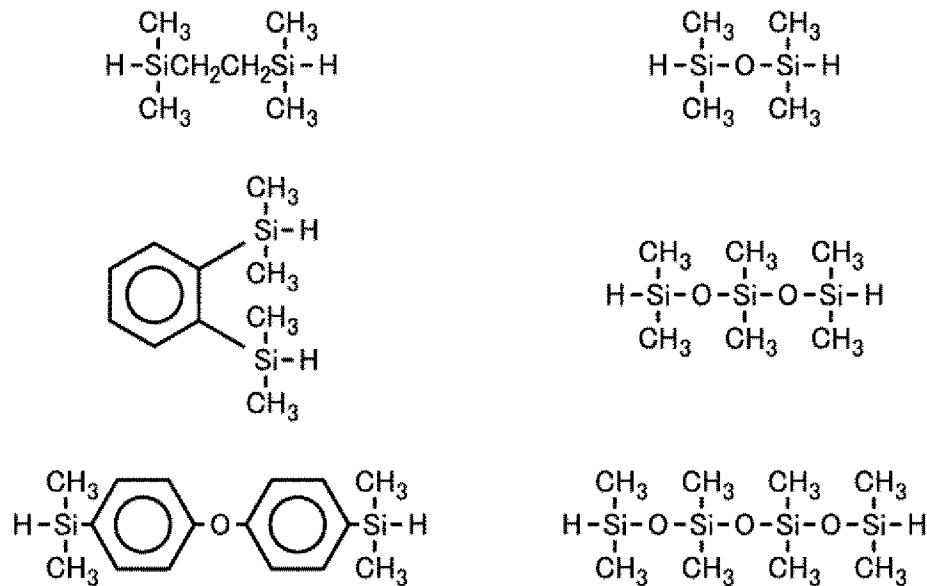
[0026] また上記の式(1)の R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、各々独立して、低級アルキル基、フェニル基、低級アリールアルキル基から選ばれた一つの官能基を表すものであり、メチル基、エチル基、プロピル基等の炭素数が1~4のアルキル基や、フェニル基や、ベンジル基、フェネチル基等の炭素数7~10のアリールアルキル基を例示することができる。これらの中でも、加水分解時の立体障害を減らす点からメチル基が好ましく、屈折

率を高める点からフェニルが好ましい。

[0027] さらに上記の式(1)において、mは6, 8, 10, 12から選ばれた数を表し、nは2~mの整数、pは0~m-nの整数を表すものである。

[0028] また、上記式(2)において、Xは2価の官能基又は酸素原子を表すものである。さらに式(2)においてR⁵, R⁶, R⁷, R⁸は、各々独立して炭素数1~3のアルキル基又は水素原子を表すものである。この式(2)に示される化合物としては、特に限定されるものではないが、次の[化1]に示すものを例示することができる。

[0029] [化1]

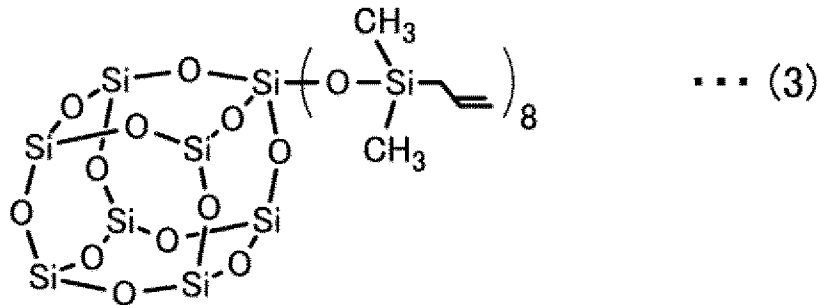


[0030] 式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物に対する式(2)の化合物の配合量は、特に限定されるものではないが、式(1)の化合物が有するAの不飽和基の量と当量、あるいは当量よりも少し多めに設定するのが好ましい。

[0031] 式(3)にかご型シルセスキオキサン化合物の一例を示す。式(3)の化合物は、上記の式(1)において、m=8, n=8, p=0, Aがアリル基、R¹, R²がメチル基の化合物であり、シリコン原子と酸素原子で形成された略6面体構造を構成する8つのシリコン原子に、シロキサン結合(-O-Si-)を介してアリル基が結合した構造を有するものである。尚、式(3)の構造式は、略6面体構造を構成する8つのシリコン原子に(-O

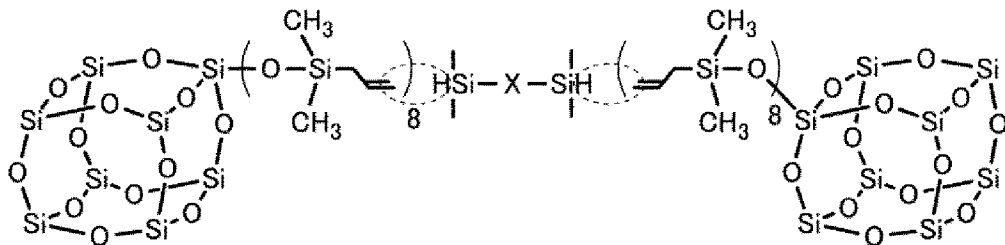
$-\text{Si}(\text{CH}_3)_2-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}_2$ が一つずつ結合していることを簡略化して表現している(以下の構造式においても同様に簡略化して表現する)。

[0032] [化2]



[0033] そして式(3)のかご型シルセスキオキサン化合物に、式(2)の化合物を反応性モノマーとして配合して反応させることによって、[化3]に示すように、式(3)の炭素-炭素不飽和結合を有する基Aの $-\text{C}=\text{C}$ に式(2)の化合物の両末端の $-\text{SiH}$ がヒドロシリル化反応して付加重合し、式(3)のかご型シルセスキオキサン化合物を式(2)の化合物で架橋して硬化させることができ、シリカのナノサイズかご型構造を有機のセグメントでつなぎ合わせたような三次元架橋構造を形成することができる。

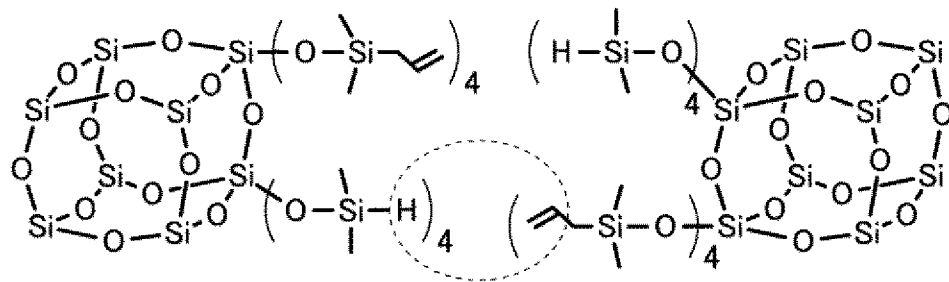
[0034] [化3]



[0035] ここで、本発明者等は従前に、式(1)のBが水素原子であるかご型シルセスキオキサン化合物を用い、かご型シルセスキオキサン化合物同士を基Aの炭素-炭素不飽和結合と、基Bの水素とで、ダイレクトに架橋させる硬化系を検討してきた。例えば[化4]に挙げるかご型シルセスキオキサン化合物は、式(1)において $m=8$ 、 $n=4$ 、 $p=4$ 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 がメチル基、Aがアリル基、Bが水素原子の化合物であり、シリコン

原子と酸素原子で形成された略6面体構造を構成する8つのシリコン原子のうち、4つのシリコン原子にシロキサン結合($-O-Si-$)を介してアリル基($-CH_2-CH=CH_2$)が結合し、他の4つのシリコン原子にシロキサン結合($-O-Si-$)を介して水素原子が結合した構造を有するものである。そして一方のかご型シルセスキオキサン化合物の $-SiH$ 基と他方のかご型シルセスキオキサン化合物の $-C=C$ 基をヒドロシリル化反応させ、かご型シルセスキオキサン化合物同士をダイレクトに架橋させて硬化させる。

[0036] [化4]



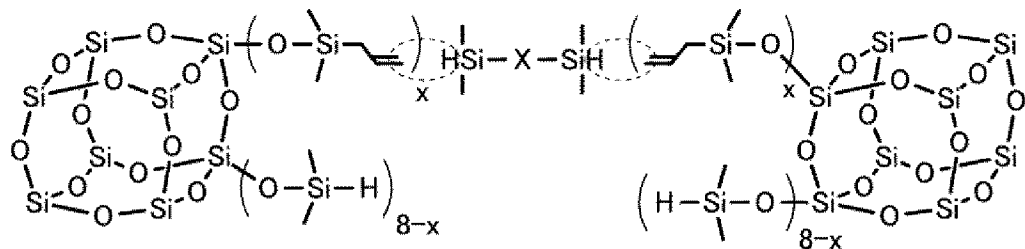
[0037] しかしこのようにかご型シルセスキオキサン化合物同士をダイレクトに架橋させる場合、架橋反応の進行が速いため、かご型シルセスキオキサン化合物間の $-SiH$ と $-C=C$ の架橋反応が急激にある程度進行すると構造が凍結され、それ以上の架橋反応が進まなくなり、この結果、架橋反応が進行している部分と未反応基が残っている部分とが共存する不均一な架橋構造となってしまう。従って、架橋構造が不均一になり、また反応進行が不均一に速く進むために、硬化した分子構造内に残留歪が蓄積されることになって、硬化物を例えばアセトン等の溶媒に浸すとストレスクラッキングが生じるなど、脆い硬化物しか得られないという問題があった。また硬化物には未反応基が残っているため、ブルーレイなど青色域・近紫外域の短波長高エネルギー光に対する照射耐性に改良の余地があった。

[0038] 一方、上記の[化3]のように、かご型シルセスキオキサン化合物に、両末端に $-SiH$ を有する式(2)の化合物を反応性モノマーとして反応させることによって、 $-C=C$ 基

を有する式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物が式(2)の化合物と徐々に反応して架橋していくため、反応の進行をよりマイルドに制御することができ、また架橋反応の進行の過程で未反応のまま残っている $-C=C$ 基が生じて、式(2)の化合物が残基部に移動して架橋反応が起こる。このように、反応の進行をマイルドに制御して、構造凍結を遅延させることができ、また未反応残基の少ない、より均一なネットワーク構造でかご型シルセスキオキサン化合物の三次元架橋構造を形成することができるものである。従って、硬化物のストレスクラッキングを抑制することができると共に強靭性を高めることができ、またブルーレイなど短波長高エネルギー光に対する照射耐性を向上させることができる。

[0039] [化5]にかご型シルセスキオキサン化合物の他の一例を示す。[化5]に挙げるシルセスキオキサン化合物は、上記の式(1)において、 $m=8$ 、 $n=x$ 、 $p=8-x$ 、Aがアリル基、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 がメチル基の化合物であり、シリコン原子と酸素原子で形成された略6面体構造を構成する8つのシリコン原子のうち、 x 個のシリコン原子にシロキサン結合($-O-Si-$)を介してアリル基が結合し、他の $8-x$ 個のシリコン原子にシロキサン結合($-O-Si-$)を介して水素原子が結合した構造を有するものである。

[0040] [化5]

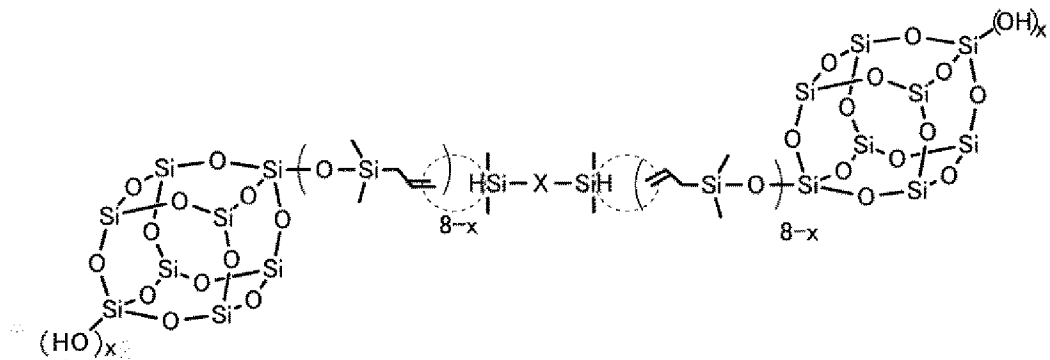


[0041] そしてこのかご型シルセスキオキサン化合物に、式(2)の化合物を反応性モノマーとして配合して反応させることによって、[化5]に示すように、かご型シルセスキオキサン化合物の基Aの不飽和結合 $-C=C$ に式(2)の化合物の両末端の $-SiH$ がヒドロシリル化反応して付加重合し、かご型シルセスキオキサン化合物を式(2)の化合物で架橋して硬化させることができ、シリカのナノサイズかご型構造を有機のセグメントでつなぎ合わせたような三次元架橋構造を形成することができる。

[0042] ここで、[化5]のかご型シルセスキオキサンのようにシロキサン結合を介して水素原子を結合させて、かご型シルセスキオキサンに $-SiH$ 基を導入することによって、 $-SiH$ 基を有するかご型シルセスキオキサン化合物と両末端に $-SiH$ を有する式(2)の反応性モノマーとの相溶性を向上させることができるものであり、かご型シルセスキオキサン化合物に対する式(2)の反応性モノマーの反応性を高めることができると共に、式(2)の反応性モノマーの配合量を多くすることが可能になる。

[0043] [化6]にかご型シルセスキオキサン化合物の他の一例を示す。[化6]に挙げるシルセスキオキサン化合物は、上記の式(1)において、 $m=8$ 、 $n=8-x$ 、 $p=0$ 、 A がアリル基、 R^1 、 R^2 がメチル基の化合物であり、シリコン原子と酸素原子で形成された略6面体構造を構成する8つのシリコン原子のうち、 $8-x$ 個のシリコン原子にシロキサン結合($-O-Si-$)を介してアリル基が結合し、他の x 個のシリコン原子に水酸基が結合した構造を有するものである。

[0044] [化6]

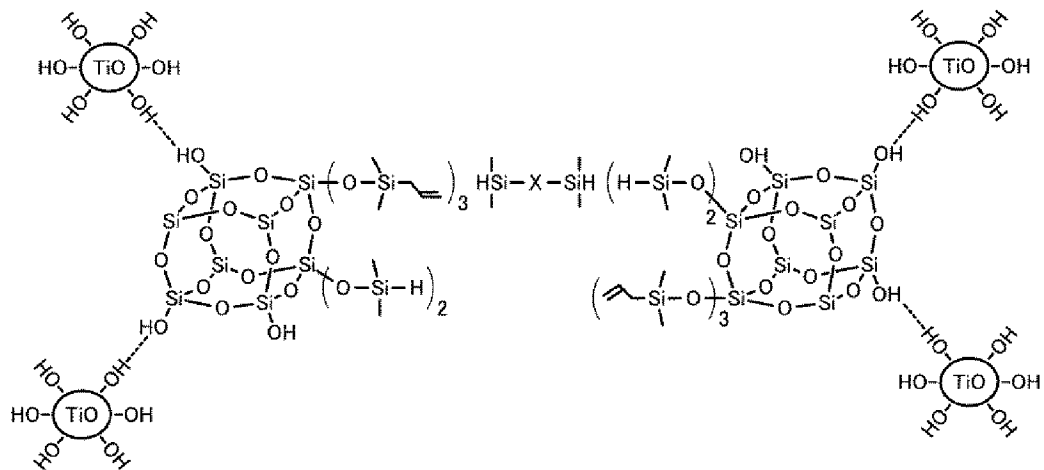


[0045] そしてこのかご型シルセスキオキサン化合物に、式(2)の化合物を反応性モノマーとして配合して反応させることによって、[化6]に示すように、かご型シルセスキオキサン化合物の基Aの不飽和結合 $-C=C$ に、式(2)の化合物の両末端の $-SiH$ がヒドロシリル化反応して付加重合し、かご型シルセスキオキサン化合物を式(2)の化合物で架橋して硬化させることができ、シリカのナノサイズかご型構造を有機のセグメントでつなぎ合わせたような三次元架橋構造を形成することができる。

[0046] ここで、かご型シルセスキオキサン化合物の硬化物の屈折率を高めるために、式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物と式(2)の化合物の混合系に TiO や ZrO 等の

重金属ゾルを混合し、この重金属ゾルをかご型シルセスキオキサン化合物の硬化物中に導入することが行なわれるが、かご型シルセスキオキサン化合物として[化6]に示すような-OH基を導入したシルセスキオキサン化合物を用いることによって、次の[化7]に示すように、シルセスキオキサン化合物の-OH基と重金属ゾルの表面を覆う-OH基との親和性によって、シルセスキオキサン化合物と重金属ゾルの分散性を高めることができ、重金属ゾルを均一に分散させて、均一な高屈折率を有するかご型シルセスキオキサン化合物の硬化物を得ることができる。

[0047] [化7]



[0048] [化7]に示すかご型シルセスキオキサン化合物は、上記の式(1)において、 $m=8$ 、 $n=3$ 、 $p=2$ 、Aがアリル基、Bが水素原子、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 がメチル基の化合物であり、シリコン原子と酸素原子で形成された略6面体構造を構成する8つのシリコン原子のうち、3つのシリコン原子にシロキサン結合(-O-Si-)を介してアリル基が結合し、2つのシリコン原子にシロキサン結合(-O-Si-)を介して水素原子が結合し、3つのシリコン原子に水酸基が結合した構造を有するものである。このように略6面体構造を構成するシリコン原子の一部に-SiH基が導入されていてもよい。

[0049] 本発明の式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物、又はこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物部分重合物と、式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物を用いて半導体発光素子2を封止するにあたっては、式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物と式(2)の化合物の重合・架橋が進む

条件であれば、特に限定されることなく任意の方法を採用することができ、必要に応じて白金、パラジウム等の付加反応触媒を用いて反応させるようにしても良い。ここで、本発明に係る式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物と式(2)の化合物からなるケイ素化合物は、架橋させるまでは、室温で液状ないしは比較的低温で熔融する固形であるため、半導体発光素子2等の封止を容易に行なうことが可能である。

[0050] 尚、半導体発光素子2等を封止する封止材3には、上記式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物またはこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物部分重合物と、上記式(2)で表される化合物に加えて、付加反応性を有するケイ素化合物を、硬化物の望ましい光学および物理的特性が維持される限りにおいて含有しても良い。

[0051] また、本発明に係る式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物と式(2)の化合物からなるケイ素化合物を成形材として用い、これを成形して重合・硬化させることによって、レンズやプリズム等の透明光学部材を作製することができる。また、光学ディスクの表面に塗布して重合させることにより、ブルーレイディスクの保護層等の透明光学部材に利用できる。

[0052] 上記の説明では、上記式(1)のかご型シルセスキオキサン化合物を $m=8$ の場合について説明したが、 m が6, 10, 12の場合も、同様に反応させることにより、かご型シルセスキオキサン化合物やかご型シルセスキオキサン化合物の部分重合物を得ることができる。そして、これらの化合物を用いた場合も式(2)の化合物と重合することにより架橋し、シリコン原子と酸素原子で形成された多面体構造を骨格に有する三次元架橋構造が形成される。そしてこの場合も同様に、青色域・近紫外域の光が照射された状態で使用されても、劣化しにくく、かつ吸水率が低い硬化物とすることができる。

実施例

[0053] 次に、本発明を実施例によって具体的に説明する。

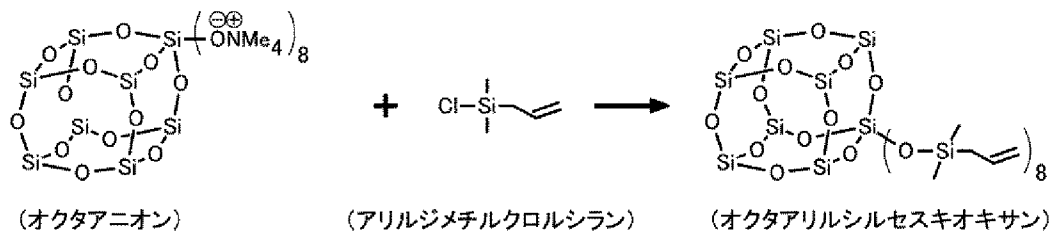
[0054] まず、上記の式(3)のオクタアシルセスキオキサンの合成例について説明する。

[0055] 三口フラスコに滴下ロート、温度計、試薬注入弁を取り付けた器具を組み、三口フ

ラスコにヘキサン188ml、アリルジメチルクロルシラン28.35mlを投入した。次に三口フラスコ内の系全体を5°C以下になるように氷浴で冷却し、系内の温度が5°C以下になったことを確認した後、窒素気流下で滴下ロートからオクタアニオン50mlを1~2滴/秒の速さで滴下した。このとき、オクタアニオンの8つの反応サイトの全てにアリルジメチルクロルシランを置換させるために、アリルジメチルクロルシランの配合量はオクタアニオンに対して大過剰(30倍当量以上)に設定する必要がある。なお上記オクタアニオンは、水酸化テトラメチルアンモニウム存在下テトラエトキシシランを加水分解重縮合させることにより得ることが可能である。

[0056] 滴下完了後、氷浴を外し、室温で6時間攪拌して[化8]に示すようにオクタアニオンとアリルジメチルクロルシランを反応させた([化8]においてMeはメチル基を示す)。得られた反応溶液をヘキサン50mlで3回抽出し、ヘキサン層を乾燥剤(硫酸ナトリウム)で乾燥させた後、吸引濾過した。得られたろ液をエバポレーターを用いてヘキサンを留去し、さらにヘキサンを除去して得られた反応生成物から未反応原料を真空ポンプで65°Cで加熱しながら除去することによって、精製されたオクタアリルシルセスキオキサンを得た。

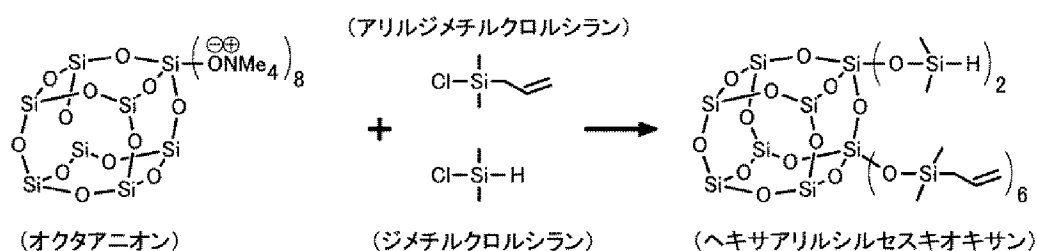
[0057] [化8]



[0058] 上記の[化5]に示すような、炭素-炭素不飽和結合(-C=C)の他に-SiH基を部分置換して導入したかご型シルセスキオキサンの合成は、[化9]に示すように、オクタアニオンにアリルジメチルクロルシランの外にジメチルクロルシランを反応させることによって、同様に行なうことができる。ジメチルクロルシランとアリルジメチルクロルシランの配合比率を制御することによって、-SiH基の部分置換数を制御することができる。

。

[0059] [化9]



[0060] 上記の[化9]に挙げる—SiH基を2個持つヘキサアリルシルセスキオキサンの合成例について説明する。

[0061] 三口フラスコに滴下ロート、温度計、試薬注入弁を取り付けた器具を組み、三口フラスコにヘキサン376ml、アリルジメチルクロルシラン33.8ml、ジメチルクロルシラン4.3mlを投入した。次に三口フラスコ内の系全体を5°C以下になるように氷浴で冷却し、系内の温度が5°C以下になったことを確認した後、窒素気流下で滴下ロートからオクタアニオン140mlを1~2滴/秒の速さで滴下した。このとき、オクタアニオンの8つの反応サイトの全てにアリルジメチルクロルシランとジメチルクロルシランを置換させるために、アリルジメチルクロルシランとジメチルクロルシランの配合量はオクタアニオンに対して大過剰に設定する必要がある。

[0062] 滴下完了後、氷浴を外し、室温で6時間攪拌して[化9]のようにオクタアニオンとアリルジメチルクロルシラン及びジメチルクロルシランを反応させた。得られた反応溶液をヘキサンで3回抽出し、ヘキサン層を乾燥剤(硫酸ナトリウム)で乾燥させた後、吸引濾過した。得られたろ液をエバポレーターにかけてヘキサンを留去し、さらにヘキサンを除去して得られた反応生成物から未反応原料を真空ポンプで45°Cで加熱しながら除去して、精製することによって、—SiH基を2個持つヘキサアリルシルセスキオキサンを得た。

[0063] ここで、上記の[化8]のようにオクタアニオンにアリルジメチルクロルシランを反応させ、また[化9]のようにオクタアニオンにアリルジメチルクロルシランとジメチルクロルシランを反応させるにあたって、オクタアニオンに対するアリルジメチルクロルシランの配合モル比や、オクタアニオンに対するアリルジメチルクロルシランとジメチルクロル

シランの配合モル比を調整することによって、略6面体構造を構成するシリコン原子の一部に水酸基が結合したかご型シルセスキオキサン化合物を合成することができる。すなわち、オクタアニオンに対するアリルジメチルクロロシランやジメチルクロロシランの配合量の過剰度合いが少ない場合、オクタアニオンの8つの反応サイトの一部が置換されなくなり、非置換サイトが加水分解されて-OH基になるものである。従って、この過剰度合いを調整することによって、かご型シルセスキオキサンへの-OH基の導入数を制御することができる。

[0064] 例えば[化8]のようにオクタアニオンにアリルジメチルクロロシランを反応させるにあたって、表1に示すように、オクタアニオン1モルに対するアリルジメチルクロロシランの配合モル数を30モルに調整して、30倍モルで反応させたとき、-OH基の導入数は、かご型シルセスキオキサン化合物1分子に対して0.02個となり、同様に25倍モルで反応させたときの-OH基の導入数は0.7個、15倍モルで反応させたときの-OH基の導入数は0.9個、8倍モルで反応させたときの-OH基の導入数は2.0個となる。

[0065] [表1]

	試薬品	添加量(ml)	(mol)	かごへの-OH基導入数
30倍モル	アリルジメチルクロロシラン	28.35	0.1886 (×30)	0.02
25倍モル		23.628	0.157 (×25)	0.7
15倍モル		19.844	0.132 (×15)	0.9
8倍モル		10.584	0.0704 (×8)	2.0

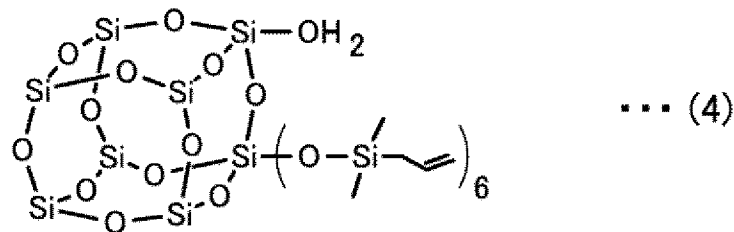
[0066] オクタアニオンにアリルジメチルクロロシランを8倍当量で反応させて、-OH基を2個持つヘキサアリルシルセスキオキサンを合成する例について説明する。

[0067] 三口フラスコに滴下ロート、温度計、試薬注入弁を取り付け、三口フラスコにヘキサシラン188ml、アリルジメチルクロロシラン10.6mlを投入した。次に系内全体を5°C以下になるように氷浴で冷却し、系内の温度が5°C以下になった時点で、滴下ロートから

オクタアニオン70mlを1～2滴/秒の速さで滴下した。

[0068] 滴下完了後、氷浴を外し、室温で6時間攪拌して反応させた。得られた反応溶液をヘキサン40mlで3回抽出し、ヘキサン層を乾燥剤(硫酸ナトリウム)で乾燥させた後、吸引濾過した。得られたろ液をエバポレーションしてヘキサンを留去し、さらにヘキサンを除去して得られた反応性生物から未反応原料を真空ポンプで65°Cで加熱しながら除去して、精製することによって、式(4)に示す、-OH基を2個持つヘキサアシルシルセスキオキサンを得た。

[0069] [化10]



[0070] 次に、上記のようにして合成したかご型シルセスキオキサンを用いた実施例を説明する。

[0071] (実施例1)

上記の[化8]で合成したオクタアシルシルセスキオキサン1.0gに、テトラメチルジシロキサン0.47gを配合し、さらに 3.0×10^{-3} 質量%濃度のPt(cts)トルエン溶液を、系全体の1ppm加え、均一に混合した後、空气中、120°Cで3時間加熱することによって硬化させ、無色透明な樹脂板を得た。

[0072] (実施例2)

上記の[化9]で合成した、-SiH基を2個持つヘキサアシルシルセスキオキサン1.0gに、テトラメチルジシロキサン0.24gを配合し、さらに 3.0×10^{-3} 質量%濃度のPt(cts)トルエン溶液を、系全体の1ppm加え、均一に混合した後、空气中、120°Cで3時間加熱することによって硬化させ、無色透明な樹脂板を得た。

[0073] (実施例3)

上記の式(4)のように合成した、 $-OH$ 基を2個持つヘキサアシルシルセスキオキサン1.0gに、テトラメチルジシロキサン0.50gを配合し、さらに 3.0×10^{-3} 質量%濃度のPt(cts)トルエン溶液を、系全体の1ppm加え、均一に混合した後、空气中、 $120^{\circ}C$ で3時間加熱することによって硬化させ、無色透明な樹脂板を得た。

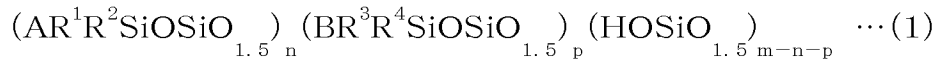
[0074] (比較例1)

上記の、[化9]の $-SiH$ 基を2個持つヘキサアシルシルセスキオキサンの合成例において、ヘキサン376mlに、アシルジメチルクロルシランを19.8ml、ジメチルクロルシランを14.6ml配合して、オクタアニオンを反応させるようにした他は、同様にして反応・精製することによって、上記の[化4]の $-SiH$ 基を4個持つテトラアシルシルセスキオキサンを合成した。そしてこの[化4]のテトラアシルシルセスキオキサンに 3.0×10^{-3} 質量%濃度のPt(cts)トルエン溶液を1ppm加え、均一に混合した後、空气中、 $120^{\circ}C$ で3時間加熱することによって硬化させ、無色透明な樹脂板を得た。

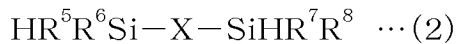
[0075] 上記の実施例1～3及び比較例1で得た樹脂板をアセトン溶液(RT)に浸漬し、浸漬中の樹脂板の割れの有無でストレスクラッキングを評価した。その結果、比較例1の樹脂板はアセトン溶液に浸漬することによって瞬時に割れが生じたが、各実施例の樹脂板には割れは生じなかった。

請求の範囲

- [1] 下記式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物、又はこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物の部分重合物と、下記式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物で、半導体発光素子又は半導体受光素子を封止して重合して成ることを特徴とする半導体光装置。



(式(1)中、Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基、Bは置換又は非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は各々独立に低級アルキル基、フェニル基、低級アリールアルキル基から選ばれる官能基を表し、 m は6, 8, 10, 12から選ばれた数、 n は2~ m の整数、 p は0~ $m-n$ の整数を表す)

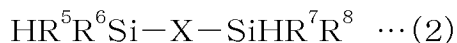


(式(2)中、Xは2価の官能基又は酸素原子を表し、 R^5 , R^6 , R^7 , R^8 は各々独立に炭素数1~3のアルキル基又は水素原子を表す)

- [2] 下記式(1)で表されるかご型シルセスキオキサン化合物、又はこの化合物が部分付加反応したかご型シルセスキオキサン化合物の部分重合物と、下記式(2)で表される化合物とを含有するケイ素化合物を、重合して成ることを特徴とする透明光学部材。

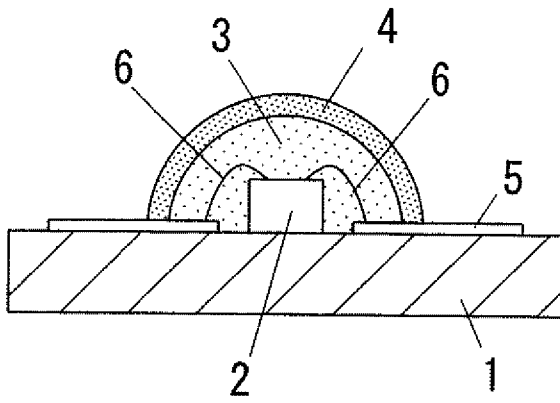


(式(1)中、Aは炭素-炭素不飽和結合を有する基、Bは置換又は非置換の飽和アルキル基もしくは水酸基あるいは水素原子、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は各々独立に低級アルキル基、フェニル基、低級アリールアルキル基から選ばれる官能基を表し、 m は6, 8, 10, 12から選ばれた数、 n は2~ m の整数、 p は0~ $m-n$ の整数を表す)



(式(2)中、Xは2価の官能基又は酸素原子を表し、 R^5 , R^6 , R^7 , R^8 は各々独立に炭素数1~3のアルキル基又は水素原子を表す)

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/072654

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L33/00(2006.01) i, H01L31/02(2006.01) i, C08L83/07(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)

C08L83/00-83/16, C08G77/00-77/62, H01L33/00, H01L31/02, G02B1/00-1/12

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	1996-2007
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2007	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2007

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

WPI/L, CASONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2006-299150 A (Asahi Kasei Corp.), 02 November, 2006 (02.11.06), Claims 1 to 5; [chemical formula 1]; Par. No. [0032] (Family: none)	1-2
X	JP 2004-359933 A (Nagase Chemtex Corp.), 24 December, 2004 (24.12.04), Claims 1 to 8 (particularly, Claim 4); Par. Nos. [0030], [0033] (Family: none)	1-2
P, X	JP 2007-251121 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 27 September, 2007 (27.09.07), Claims 1 to 6 (Family: none)	1-2

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search
27 December, 2007 (27.12.07)

Date of mailing of the international search report
15 January, 2008 (15.01.08)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/072654

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2007-251122 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 27 September, 2007 (27.09.07), Claims 1 to 6 (Family: none)	1-2
P,X	JP 2007-31619 A (Nagase Chemtex Corp.), 08 February, 2007 (08.02.07), Claims 1 to 7; Par. No. [0034] (Family: none)	1-2
P,X	WO 2007/119627 A1 (Ube Industries, Ltd.), 25 October, 2007 (25.10.07), Claims 1 to 39 (Family: none)	1-2
A	WO 2006/077667 A1 (GE Toshiba Silicones Co., Ltd.), 27 July, 2006 (27.07.06), Claims 1 to 11 (Family: none)	1-2
A	JP 2006-299149 A (Asahi Kasei Corp.), 02 November, 2006 (02.11.06), Claims 1 to 5 (Family: none)	1-2
A	JP 2000-198930 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 18 July, 2000 (18.07.00), Claims 1 to 5 (Family: none)	1-2
A	JP 2-67290 A (Akademie der Wissenschaften der DDR), 07 March, 1990 (07.03.90), Claims 1 to 13 & EP 348705 A2	1-2
A	JP 6-329687 A (Wacker Chemie GmbH.), 29 November, 1994 (29.11.94), Claims 1 to 5 & EP 624591 A1	1-2
A	JP 2006-22207 A (Chisso Corp., Chisso Petrochemical Corp.), 26 January, 2006 (26.01.06), Claims 1 to 12 (Family: none)	1-2
A	JP 2000-154252 A (Director General, Agency of Industrial Science and Technology), 06 June, 2000 (06.06.00), Claims 1 to 2 (Family: none)	1-2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/072654

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-290352 A (Asahi Kasei Corp.), 20 October, 2005 (20.10.05), Claim 1 (Family: none)	1-2
A	JP 11-71462 A (Toshiba Silicone Co., Ltd.), 16 March, 1999 (16.03.99), Claims 1 to 2 (Family: none)	1-2
A	JP 2000-265066 A (Dow Corning Asia Kabushiki Kaisha), 26 September, 2000 (26.09.00), Claims 1 to 2 & JP 2000-265065 A & EP 1036808 A2 & US 6252030 B1	1-2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H01L33/00(2006.01)i, H01L31/02(2006.01)i, C08L83/07(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 (IPC))
 Int.Cl. C08L83/00-83/16, C08G77/00-77/62, H01L33/00, H01L31/02, G02B1/00-1/12

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 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2007年
 日本国実用新案登録公報 1996-2007年
 日本国登録実用新案公報 1994-2007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)
 W P I / L
 C A S O N L I N E

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2006-299150 A (旭化成株式会社) 2006. 11. 02, 請求項1~5, [化1], 段落[0032] (ファミリーなし)	1-2
X	JP 2004-359933 A (ナガセケムテックス株式会社) 2004. 12. 24, 請求項1~8(特に請求項4), 段落[0030][0033] (ファミリーなし)	1-2
P X	JP 2007-251121 A (松下電工株式会社) 2007. 09. 27, 請求項1~6 (ファミリーなし)	1-2

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、一般的な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 27. 12. 2007	国際調査報告の発送日 15. 01. 2008
----------------------------	----------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 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) 前田 孝泰	4 J	9 4 5 6
	電話番号 03-3581-1101 内線 3457		

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P X	JP 2007-251122 A (松下電工株式会社) 2007. 09. 27, 請求項1~6 (ファミリーなし)	1-2
P X	JP 2007-31619 A (ナガセケムテックス株式会社) 2007. 02. 08, 請求項1~7, 段落[0034] (ファミリーなし)	1-2
P X	WO 2007/119627 A1 (宇部興産株式会社) 2007. 10. 25, 請求の範囲1~39 (ファミリーなし)	1-2
A	WO 2006/077667 A1 (ジーイー東芝シリコン株式会社) 2006. 07. 27, 請求の範囲1~11 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2006-299149 A (旭化成株式会社) 2006. 11. 02, 請求項1~5 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2000-198930 A (信越化学工業株式会社) 2000. 07. 18, 請求項1~5 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2-67290 A (アカデミー・テル・ウイッセンシャフテン・テル・デー・デー・エル) 1990. 03. 07, 請求項1~13 & EP 348705 A2	1-2
A	JP 6-329687 A (ワッカーケミー ゲゼルシャフト ミット ベシユレンクテル ハフツング) 1994. 11. 29, 請求項1~5 & EP 624591 A1	1-2
A	JP 2006-22207 A (チッソ株式会社、チッソ石油化学株式会社) 2006. 01. 26, 請求項1~12 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2000-154252 A (工業技術院長) 2000. 06. 06, 請求項1~2 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2005-290352 A (旭化成株式会社) 2005. 10. 20, 請求項1 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 11-71462 A (東芝シリコン株式会社) 1999. 03. 16, 請求項1~2 (ファミリーなし)	1-2
A	JP 2000-265066 A (タウ コーニング アジア株式会社) 2000. 09. 26, 請求項1~2 & JP 2000-265065 A & EP 1036808 A2 & US 6252030 B1	1-2