(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2017년03월28일
(11) 등록번호 10-1720822
(24) 등록일자 2017년03월22일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/04 (2006.01) *C08G 77/12* (2006.01)
C08G 77/20 (2006.01) *C08K 3/22* (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01) *C08K 5/56* (2006.01)
H01L 33/56 (2010.01)
(21) 출원번호 10-2012-7017410
(22) 출원일자(국제) 2010년12월22일
심사청구일자 2015년12월22일
(85) 번역문제출일자 2012년07월04일
(65) 공개번호 10-2012-0114290
(43) 공개일자 2012년10월16일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2010/073168
(87) 국제공개번호 WO 2011/078239
국제공개일자 2011년06월30일
(30) 우선권주장
JP-P-2009-291483 2009년12월22일 일본(JP)
JP-P-2010-104821 2010년04월30일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
JP2009221393 A*
JP2009256558 A
JP2008291203 A
JP2007039483 A
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 1쵸메 1방 1고
(72) 발명자
다카스 마유코
일본 후쿠오카켕 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사키시로이시 1방 1고 미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤 구로사키고죠 나이
오츠 다케시
일본 가나가와켕 요코하마시 아오바쿠 가모시다쵸 1000반치 미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤 요코하마리사치센타 나이
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 14 항 심사관 : 정명주

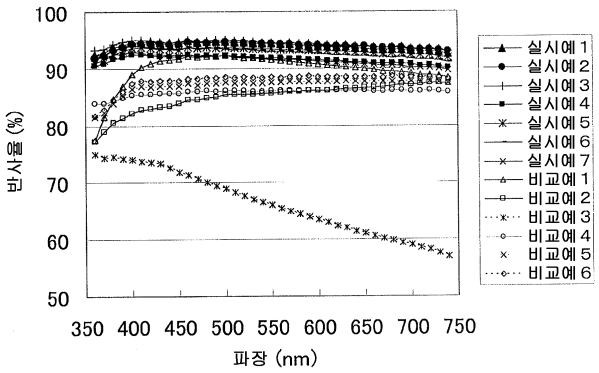
(54) 발명의 명칭 **반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료**

(57) 요 약

본 발명은, 내구성 (내광성, 내열성) 이 높고, 또한 우수한 반사율에 의해 LED 출력을 향상시키는 반도체 발광 장치용 수지 성형체로 할 수 있는 수지 성형체용 재료를 제공하는 것을 과제로 한다. 또한, 성형이 용이해지는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료를 제공하는 것을 과제로 한다. (A) 폴리오르가노실록산, (B) 백

(뒷면에 계속)

대 표 도 - 도4



색 안료, 및 (C) 경화 촉매를 함유하고, 상기 (B) 백색 안료가, 이하의 특성 (a) 및 (b) 를 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료로 한다.

(a) 1 차 입자의 애스펙트비가 1.2 이상 4.0 이하인 것

(b) 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 것

(72) 발명자

다키자와 겐이치

일본 후쿠오카켕 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사키시로이시 1방 1고 미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤 구로사키고죠 나이

모리 유타카

일본 후쿠오카켕 기타큐슈시 야하타니시쿠 구로사키시로이시 1방 1고 미쓰비시 가가꾸 가부시키가이샤 구로사키고죠 나이

명 세 서

청구범위

청구항 1

(A) 폴리오르가노실록산, (B) 백색 안료, 및 (C) 경화 촉매를 함유하고, 상기 (B) 백색 안료가, 이하의 특성 (a) 내지 (c) 를 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료.

(a) 1 차 입자의 애스펙트비가 1.2 이상 4.0 이하인 것

(b) 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 것

(c) 1 차 입자경 x 와 2 차 입자의 중심 입경 y 의 비 y/x 가 1 이상 10 이하인 것

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 (B) 백색 안료의 2 차 입자의 중심 입경이 0.2 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10 Pa·s 이상 10,000 Pa·s 이하인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 4

제 3 항에 있어서,

전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비가 15 이상인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 (B) 백색 안료가 알루미나인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 6

삭제

청구항 7

제 1 항에 있어서,

상기 (A) 폴리오르가노실록산이, 상온, 상압하에서 액체의 열경화성 폴리오르가노실록산인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 8

제 1 항에 있어서,

추가로 (D) 경화 속도 제어제를 함유하는, 수지 성형체용 재료.

청구항 9

제 1 항에 있어서,

추가로 (E) 유동성 조정제를 함유하는 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 10

제 9 항에 있어서,

상기 수지 성형체용 재료 전체에 대한, 상기 (B) 백색 안료 및 상기 (E) 유동성 조정제의 함유량의 합계가 50 중량% 이상인 것을 특징으로 하는 수지 성형체용 재료.

청구항 11

제 1 항 내지 제 5 항 및 제 7 항 내지 제 10 항 중 어느 한 항에 기재된 수지 성형체용 재료를 성형하여 이루어지는 반도체 발광 장치용 수지 성형체.

청구항 12

제 11 항에 있어서,

두께 0.4 ㎜ 에 있어서, 파장 400 ㎚ 에 있어서의 광 반사율이 60 % 이상인 것을 특징으로 하는 수지 성형체.

청구항 13

제 11 항에 있어서,

상기 수지 성형체가 액상 사출 성형에 의해 성형된 것을 특징으로 하는 수지 성형체.

청구항 14

제 1 항 내지 제 5 항 및 제 7 항 내지 제 10 항 중 어느 한 항에 기재된 수지 성형체용 재료를 조제하는 공정, 및 상기 조제된 수지 성형체용 재료를 사출 성형에 의해 성형하는 공정을 포함하는, 수지 성형체의 제조 방법.

청구항 15

제 11 항에 기재된 수지 성형체를 갖는, 반도체 발광 장치.

청구항 16

삭제

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 발광 다이오드 등의 발광 소자를 구비한 반도체 발광 장치에 사용되는 수지 성형체용 재료 및 그 성형체에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 반도체 발광 소자를 탑재하여 이루어지는 반도체 발광 장치는 도 1 에 나타내는 바와 같이 반도체 발광 소자 (1), 수지 성형체 (2), 본딩 와이어 (3), 봉지재 (4), 리드 프레임 (5) 등으로 구성된다. 또한, 리드 프레임 등의 도전성 금속 배선 및 절연성 수지 성형체로 이루어지는 구성을 패키지라고 칭한다.

[0003] 종래, 수지 성형체에 사용하는 절연성 재료로서 폴리아미드 등의 열가소성 수지에 백색 안료를 배합한 것이 일반적으로 이용되어 왔다 (예를 들어 특허문헌 1 참조). 발광에 지향성이 요구되는 반도체 발광 장치는, 반도체 발광 소자로부터 목적으로 하는 방향으로 발하여진 광뿐만 아니라, 목적과 상이한 방향으로 발하여진 광을 수지 성형체, 리드 프레임 등의 금속 배선, 및 반사재 등으로 목적으로 하는 방향으로 반사시켜 발광 효율을 높이고 있다. 폴리아미드 등의 열가소성 수지가 투광성이기 때문에, 수지 성형체로 광을 반사시킬 때는, 수지에 백색 안료를 배합함으로써 수지와 백색 안료의 굴절률의 차이를 이용하여 반도체 발광 소자로부터의 광을 반사시켜 반도체 발광 장치로서의 발광 효율을 높이고 있다.

[0004] 상기 특허문헌 1 에서는, 백색 안료를 사용한 경우라도 백색 안료의 종류에 따라서는 그 반사 효율이 충분하지 않고, 수지 성형체에 흡수되는 광선이나 수지 성형체를 투과하는 광선도 나오게 되기 때문에, 결과적으로 반도체 발광 소자로부터의 광을 목적으로 하는 방향으로 집중시킬 수 없어 반도체 발광 장치로서의 발광 효율이 떨어지게 되는 경우가 있었다.

[0005] 또, 폴리아미드를 사용한 패키지는, 폴리아미드가 열가소성 수지이고, 환경적인 문제 때문에 융점이 높은 납프리 땜납이 적극적으로 사용되어 리플로우 온도가 높아지는 경향이 있는 현상황에서는, 그 열에 의해 폴리아미드 수지가 연화되어 버리기 때문에 패키지의 내열성에 문제가 있다. 또, 폴리아미드는 자외선, 열에 의해 광열화, 열 열화가 일어나기 때문에, 최근 실용화가 진행되고 있는 청색 ~ 근자외선 반도체 발광 소자와 같은 에너지가 높은 파장 영역까지 발광역을 갖는 발광 소자를 사용한 경우, 광에 의한 열화가 특히 문제가 된다. 또, 보다 밝은 발광 소자가 요구되고 있는 현상황에서는, 반도체 발광 소자로부터 발하여지는 광속이 큰 광, 발열에 의해 열 열화, 광 열화의 문제가 보다 현재화된다.

[0006] 한편, 내열성이 요구되는 경우에는 소결된 알루미나를 배합한 세라믹이 절연 재료로서 사용된다 (예를 들어 특허문헌 2 참조). 세라믹을 사용한 패키지는 내열성이 양호하지만, 제조할 때 성형 후에 고온에서의 소결 공정이 필요하다. 소결 공정에서는 전기료 등의 비용면에서의 문제나, 소결에 의해 성형체의 크기, 형상이 변화되기 때문에 불량품이 나오기 쉬워 양산성에 문제가 있었다.

[0007] 이에 대해 최근, 수지에 오르가노폴리실록산을 사용하고, 백색 안료로서 산화티탄을 사용한 실리콘 수지 조성물을 성형한 케이스도 제안되어 있다 (예를 들어 특허문헌 3 참조). 수지에 오르가노폴리실록산을 사용함으로써, 폴리아미드를 사용한 것과 비교하여 내열성 향상이 도모된다.

선행기술문헌

특허문헌

[0008] (특허문헌 0001) 일본 공개특허공보 2002-283498호

(특허문헌 0002) 일본 공개특허공보 2004-288937호

(특허문헌 0003) 일본 공개특허공보 2009-155415호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0009] 수지에 폴리오르가노실록산을 사용하고 있는 상기 특허문헌 3 에 있어서는, 백색 안료에 산화티탄을 사용하고 있어 다음과 같은 문제가 생긴다.

[0010] 우선, 수지 조성물을 조제하는 공정에 있어서, 수지인 폴리오르가노실록산에 산화티탄을 첨가하여 혼합하는 경우에는, 산화티탄은 수지에 대한 분산성이 낮다는 문제가 있다. 이 때문에, 수지 조성물을 경화시킨 후의 수지 성형체에 있어서, 산화티탄이 균일하게 분산되어 있지 않아 수지 성형체 내에서의 반사율이 일정하지 않고, 그 결과 반도체 발광 장치로부터 발하여진 광선의 균일성면에서 문제가 있다.

[0011] 또, 산화티탄은 광 촉매성이 있기 때문에, 파장 470 ㎚ 정도 이하의 반도체 발광 소자를 사용하는 경우에는, 반도체 발광 소자가 발하는 광이나, 그 광에 의해 여기되는 형광체가 발하는 광에 의해, 산화티탄 입자 근방의 수지 성형체가 열화된다. 그 때문에, 청색 영역의 광을 발하는 반도체 발광 소자, 및 근자외 영역의 광을 발하는 반도체 발광 소자를 사용한 경우에, 수지 성형체의 내광성이 현저하게 손상된다.

[0012] 또한, 산화티탄은 근자외 영역에 흡수 파장을 가지기 때문에 색이 황색 빛깔을 띠고 있다. 그 때문에 반도체 발광 소자로부터의 발광 스펙트럼을 변화시켜, 반도체 발광 장치가 발하는 광의 백색성, 연색성에 문제를 일으킨다. 특히 현재 적극적으로 연구되고 있는 백색 반도체 발광 장치에서는 백색성, 연색성이 큰 요구 사항으로 되고 있어, 이 점에 있어서도 불리하다.

[0013] 본 발명은, 내구성 (내광성, 내열성) 이 높고, 또한 우수한 반사율에 의해 LED 출력을 향상시키는 반도체 발광 장치용 수지 성형체로 할 수 있는, 수지 성형체용 재료를 제공하는 것을 과제로 한다. 또한, 성형이 용이해

지는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료를 제공하는 것을 과제로 한다.

과제의 해결 수단

[0014] 그래서 본 발명자들은, 상기 목적을 달성하기 위하여 예의 검토한 결과, 폴리오르가노실록산, 백색 안료 및 경화 촉매를 함유하는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료에 있어서, 특정한 형상 특성을 갖는 백색 안료를 사용함으로써 상기 과제를 해결할 수 있음을 알아냈다.

[0015] 즉, 본 발명은 이하와 같다.

[0016] (1) (A) 폴리오르가노실록산, (B) 백색 안료, 및 (C) 경화 촉매를 함유하고, 상기 (B) 백색 안료가, 이하의 특성 (a) 및 (b) 를 갖는 것을 특징으로 하는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료.

[0017] (a) 1 차 입자의 애스펙트비가 1.2 이상 4.0 이하인 것

[0018] (b) 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 것

[0019] (2) 상기 (B) 백색 안료의 2 차 입자의 중심 입경이 0.2 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하인 것을 특징으로 하는 (1) 에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0020] (3) 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10 Pa·s 이상 10,000 Pa·s 이하인 것을 특징으로 하는 (1) 또는 (2) 에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0021] (4) 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비가 15 이상인 것을 특징으로 하는 (3) 에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0022] (5) 상기 (B) 백색 안료가 알루미나인 것을 특징으로 하는 (1) ~ (4) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0023] (6) 상기 (B) 백색 안료의 1 차 입자경 x 와 2 차 입자의 중심 입경 y 의 비 y/x 가 1 이상 10 이하인 것을 특징으로 하는 (1) ~ (5) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0024] (7) (A) 폴리오르가노실록산이, 상온, 상압하에서 액체의 열경화성 폴리오르가노실록산인 것을 특징으로 하는 (1) ~ (6) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0025] (8) 추가로 (D) 경화 속도 제어제를 함유하는 (1) ~ (7) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0026] (9) 추가로 (E) 유동성 조정제를 함유하는 것을 특징으로 하는 (1) ~ (8) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0027] (10) 수지 성형체용 재료 전체에 대한, (B) 백색 안료 및 (E) 유동성 조정제의 함유량의 합계가 50 중량% 이상인 것을 특징으로 하는 (9) 에 기재된 수지 성형체용 재료.

[0028] (11) (1) ~ (10) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료를 성형하여 이루어지는 반도체 발광 장치용 수지 성형체.

[0029] (12) 두께 0.4 ㎜ 에 있어서, 파장 400 ㎚ 에 있어서의 광 반사율이 60 % 이상인 것을 특징으로 하는 (11) 에 기재된 수지 성형체.

[0030] (13) 상기 수지 성형체가 액상 사출 성형에 의해 성형된 것을 특징으로 하는 (11) 또는 (12) 에 기재된 수지 성형체.

[0031] (14) (1) ~ (10) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체용 재료를 조제하는 공정, 및 상기 조제된 수지 성형체용 재료를 사출 성형에 의해 성형하는 공정을 포함하는 수지 성형체의 제조 방법.

[0032] (15) (11) ~ (13) 중 어느 하나에 기재된 수지 성형체를 갖는 반도체 발광 장치.

[0033] (16) (A) 폴리오르가노실록산, (B) 백색 안료, 및 (C) 경화 촉매를 함유하고,

[0034] 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10 Pa·s 이상 10,000 Pa·s 이하이며, 또한

[0035] 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비가 15 이상인 것을 특징으로 하는 반도

체 발광 장치용 수지 성형체용 재료.

발명의 효과

[0036] 본 발명의 수지 성형체용 재료를 이용하면, 내구성 (내광성, 내열성) 이 높고, 또한 우수한 반사율에 의해 LED 출력을 향상시키는 반도체 발광 장치용 수지 성형체를 얻을 수 있다. 또한, 본 발명에 의하면, 성형이 용이해지는 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0037] 도 1 은 반도체 발광 장치의 일 양태의 구성을 개략적으로 나타내는 단면도이다.

도 2 는 반도체 발광 장치의 다른 양태의 구성을 개략적으로 나타내는 단면도이다.

도 3 은 종래형 패키지를 구비한 반도체 발광 장치의 일 양태를 개략적으로 나타내는 단면도이다.

도 4 는 실시예 1 ~ 7 및 비교예 1 ~ 6 에 있어서의 각 시험편의 반사율 측정 결과를 나타내는 그래프이다.

도 5 는 실시예 8, 및 9, 그리고 비교예 7 에 있어서의 각 시험편의 반사율 측정 결과를 나타내는 그래프이다.

도 6 은 실시예 1 ~ 7, 그리고 비교예 2, 비교예 4, 및 비교예 5 에 있어서의 각 수지 성형체용 재료의 점도 측정 결과를 나타내는 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0038] 이하, 본 발명의 실시형태를 설명하는데, 본 발명은 이하의 실시형태에 한정되는 것은 아니며, 그 요지의 범위 내에서 다양하게 변형하여 실시할 수 있다.

[0039] <1. 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료>

[0040] 본 발명에 있어서 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료란, 반도체 발광 장치용 수지 성형체의 성형에 사용하는 재료이다. 구체적으로는, (A) 폴리오르가노실록산, (B) 백색 안료, 및 (C) 경화 촉매를 함유한다.

[0041] 여기서, 반도체 발광 장치용 수지 성형체란, 재료를 경화시킨 성형체로, 리드 프레임 등의 도전성 금속 배선과 함께 성형함으로써 반도체 발광 장치용 패키지가 된다. 또, 반도체 발광 장치란, 상기 반도체 발광 장치용 수지 성형체에 반도체 발광 소자를 포함하는 발광 장치이다. 반도체 발광 장치의 단면 약도를 도 1 에 나타낸다.

[0042] <1-1. (A) 폴리오르가노실록산>

[0043] 본 발명에 있어서의 폴리오르가노실록산이란, 규소 원자가 산소를 개재시켜 다른 규소 원자와 결합한 부분을 갖는 구조에 유기기가 부가되어 있는 고분자 물질을 가리킨다. 여기서 폴리오르가노실록산은, 상온 상압하에서 액체인 것이 바람직하다. 이것은, 반도체 발광 장치용 수지 성형체를 성형할 때, 재료의 취급이 용이해지기 때문이다. 또, 상온 상압하에서 고체의 폴리오르가노실록산은, 일반적으로 경화물로서의 경도는 비교적 높지만, 파괴에 필요로 하는 에너지가 작고 인성이 낮은 것이나, 내광성, 내열성이 불충분하여 광이나 열에 의해 변색되기 쉬운 것이 많은 경향이 있기 때문이다.

[0044] 또한, 상기 상온이란 20 ℃ ± 15 ℃ (5 ~ 35 ℃) 의 범위의 온도를 가리키며, 상압이란 대기압과 동등한 압력을 가리키고, 거의 1 기압이다. 또, 액체란 유동성이 있는 상태를 가리킨다.

[0045] 상기 폴리오르가노실록산은, 통상 실록산 결합을 주사슬로 하는 유기 중합체를 가리키며, 예를 들어 이하에 나타내는 일반 조성식 (1) 로 나타내는 화합물이나, 그 혼합물을 들 수 있다.

[0046] $(R^1R^2R^3SiO_{1/2})_M(R^4R^5SiO_{2/2})_D(R^6SiO_{3/2})_T(SiO_{4/2})_Q$ … (1)

[0047] 여기서, 상기 식 (1) 중, R^1 내지 R^6 은 독립적으로, 유기 관능기, 수산기, 수소 원자에서 선택된다. 또 M, D, T 및 Q 는 0 이상 1 미만이며, M+D+T+Q=1 을 만족시키는 수이다.

[0048] 주된 폴리오르가노실록산을 구성하는 단위는, 1 관능형 [$R_3SiO_{0.5}$] (트리오르가노실혜미옥산), 2 관능형 [R_2SiO] (디오르가노실록산), 3 관능형 [$RSiO_{1.5}$] (오르가노실세스키옥산), 4 관능형 [SiO_2] (실리케이트) 이며, 이들 4

종 단위의 구성 비율을 변경함으로써 폴리오르가노실록산의 성상의 차이가 생기게 되므로, 원하는 특성이 얻어지도록 적절히 선택하여 폴리오르가노실록산의 합성을 실시한다.

[0049] 상기 구성 단위가 1 ~ 3 관능형인 폴리오르가노실록산은, 오르가노클로로실란 (일반식 R_nSiCl_{4-n} (n=1 ~ 3)) 이라고 불리는 일련의 유기 규소 화합물을 기초로 하여 합성할 수 있다. 예를 들어, 메틸클로로실란은 염화메틸과 규소 Si 를 Cu 촉매하 고온에서 직접 반응시켜 합성할 수 있고, 또 비닐기 등의 유기기를 갖는 실란류는, 일반적인 유기 합성 화학의 수법에 의해 합성할 수 있다.

[0050] 단리된 오르가노클로로실란을, 단독으로 혹은 임의의 비율로 혼합하고, 물에 의해 가수분해를 실시하면 실란올이 생성되고, 이 실란올이 탈수 축합되면 실리콘의 기본 골격인 폴리오르가노실록산이 합성된다.

[0051] 폴리오르가노실록산은, 경화 촉매의 존재하에서, 열 에너지나 광 에너지 등을 부여함으로써 경화시킬 수 있다. 여기서 경화란, 유동성을 나타내는 상태에서 유동성을 나타내지 않는 상태로 변화하는 것을 가리키며, 예를 들어 대상물을 수평으로부터 45 도 기울인 상태로 30 분간 정치 (靜置) 해도 유동성이 있는 상태를 미경화 상태라고 하고, 전혀 유동성이 없는 상태를 경화 상태로서 판단할 수 있다.

[0052] 폴리오르가노실록산은, 경화의 메커니즘에 의해 분류하면, 통상 부가 중합 경화 타입, 축중합 경화 타입, 자외선 경화 타입, 퍼옥사이드 가황 타입 등의 폴리오르가노실록산을 들 수 있다. 이들 중에서는, 부가 중합 경화 타입 (부가형 폴리오르가노실록산), 및 축합 경화 타입 (축합형 폴리오르가노실록산) 이 바람직하다. 그 중에서도, 부생성물의 발생이 없고, 또 반응이 가역성이 아닌 하이드로실릴화 (부가 중합) 에 의해 경화되는 폴리오르가노실록산 타입이 보다 바람직하다. 이것은, 성형 가공시에 부생성물이 발생하면, 성형 용기 내의 압을 상승시키거나, 경화 재료 중에 기포로서 잔존하거나 하는 경향이 있기 때문이다.

[0053] 이하, 부가형 폴리오르가노실록산, 및 축합형 폴리오르가노실록산에 대하여 설명한다.

[0054] <1-1-1. 부가형 폴리오르가노실록산>

[0055] 부가형 폴리오르가노실록산이란, 폴리오르가노실록산 사슬이 유기 부가 결합에 의해 가교된 것을 가리킨다. 대표적인 것으로는, 예를 들어 비닐실란 등의 (C1) 알케닐기를 갖는 규소 함유 화합물과, 예를 들어 하이드로실란 등의 (C2) 하이드로실릴기를 함유하는 규소 화합물을 총 하이드로실릴기량이 0.5 배 이상, 2.0 배 이하가 되는 양비로 혼합하고, (C3) Pt 촉매 등의 부가 축합 촉매의 존재하 반응시켜 얻어지는 Si-C-C-Si 결합을 가교점에 갖는 화합물 등을 들 수 있다.

[0056] (C1) 알케닐기를 갖는 규소 함유 화합물로는, 하기 일반식 (2)

[0057] $R_nSiO_{[(4-n)/2]}$ … (2)

[0058] 로 나타내는, 1 분자 중에 규소 원자에 결합된 알케닐기를 적어도 2 개 갖는 폴리오르가노실록산을 들 수 있다.

[0059] 단, 식 (2) 중, R 은 동일 또는 이종의 치환 또는 비치환의 1 가 탄화수소기, 알콕시기, 또는 수산기이며, n 은 $1 \leq n < 2$ 를 만족시키는 정 (正) 의 수이다.

[0060] 상기 (C1) 알케닐기를 갖는 규소 함유 화합물에 있어서 알케닐기란, 비닐기, 알릴기, 부테닐기, 펜테닐기 등의 탄소수 2 ~ 8 의 알케닐기인 것이 바람직하다. R 이 탄화수소기인 경우는, 메틸기, 에틸기 등의 알킬기, 비닐기, 페닐기 등의 탄소수 1 ~ 20 의 1 가 탄화수소기에서 선택된다. 바람직하게는 메틸기, 에틸기, 페닐기이다.

[0061] 각각은 상이해도 되지만, 내 UV 성이 요구되는 경우에는, 상기 식 중 R 중의 65 % 정도가 메틸기인 것이 바람직하고 (요컨대, Si 의 개수 (㏖ 수) 에 대하여 메틸기 이외의 관능기의 함유수로서 0.35 개 (㏖) 이하인 것이 바람직하다), 상기 식 중 R 중의 80 % 이상이 메틸기인 것이 보다 바람직하다. R 은 탄소수 1 ~ 8 의 알콕시기나 수산기여도 되지만, 알콕시기나 수산기의 함유율은, (C1) 알케닐기를 갖는 규소 함유 화합물의 10 중량% 이하인 것이 바람직하다. 또, n 은 $1 \leq n < 2$ 를 만족시키는 정의 수인데, 이 값이 2 이상이면 수지 성형체용 재료와 리드 프레임 등의 도전체의 접착에 충분한 강도를 얻을 수 없게 되고, 1 미만이면 이 폴리오르가노실록산의 합성이 곤란해진다.

[0062] 상기 (C1) 알케닐기를 갖는 규소 함유 화합물로는, 예를 들어 비닐실란, 비닐기 함유 폴리오르가노실록산을 들 수 있으며, 이들을 1 종 단독으로 또는 2 종 이상을 임의의 비율 및 조합으로 사용할 수 있다. 상기 중에서도 분자 내에 2 개 이상의 비닐기를 갖는 비닐기 함유 폴리오르가노실록산이 바람직하다.

[0063] 분자 내에 2 개 이상의 비닐기를 갖는 비닐기 함유 폴리오르가노실록산으로서 구체적으로는 이하의 것을 들 수 있다.

[0064] 양 말단 비닐폴리디메틸실록산

[0065] DMS-V00, DMS-V03, DMS-V05, DMS-V21, DMS-V22, DMS-V25, DMS-V31, DMS-V33, DMS-V35, DMS-V41, DMS-V42, DMS-V46, DMS-V52 (모두 Gelest 사 제조)

[0066] 양 말단 비닐디메틸실록산-디페닐실록산 코폴리머

[0067] PDV-0325, PDV-0331, PDV-0341, PDV-0346, PDV-0525, PDV-0541, PDV-1625, PDV-1631, PDV-1635, PDV-1641, PDV-2331, PDV-2335 (모두 Gelest 사 제조)

[0068] 양 말단 비닐페닐메틸실록산

[0069] PMV-9925 (Gelest 사 제조)

[0070] 트리메틸실릴기 봉쇄 비닐메틸실록산-디메틸실록산 코폴리머

[0071] VDT-123, VDT-127, VDT-131, VDT-153, VDT-431, VDT-731, VDT-954 (모두 Gelest 사 제조)

[0072] 비닐 T-구조 폴리머

[0073] VTT-106, MTV-124 (모두 Gelest 사 제조)

[0074] 또, (C2) 하이드로실릴기를 갖는 규소 함유 화합물로는, 예를 들어 하이드로실란, 하이드로실릴기 함유 폴리오르가노실록산을 들 수 있으며, 이들을 1 종 단독으로 또는 2 종 이상을 임의의 비율 및 조합으로 사용할 수 있다. 상기 중에서도 분자 내에 2 개 이상의 하이드로실릴기를 갖는 하이드로실릴기 함유 폴리오르가노실록산이 바람직하다.

[0075] 분자 중에 2 개 이상의 하이드로실릴기를 함유하는 폴리오르가노실록산으로서 구체적으로는 이하의 것을 들 수 있다.

[0076] 양 말단 하이드로실릴폴리디메틸실록산

[0077] DMS-H03, DMS-H11, DMS-H21, DMS-H25, DMS-H31, DMS-H41 (모두 Gelest 사 제조)

[0078] 양 말단 트리메틸실릴 봉쇄 메틸하이드로실록산-디메틸실록산 코폴리머

[0079] HMS-013, HMS-031, HMS-064, HMS-071, HMS-082, HMS-151, HMS-301, HMS-501 (모두 Gelest 사 제조)

[0080] 본 발명에 있어서의 상기 (C1) 알케닐기를 갖는 규소 화합물 및 (C2) 하이드로실릴기를 갖는 규소 화합물의 사용량은, (C1) 알케닐기를 갖는 규소 화합물 1 ㏖ (알케닐기의 몰수) 에 대하여, (C2) 하이드로실릴기를 갖는 규소 화합물 (하이드로실릴기의 몰수) 이 통상 0.5 ㏖ 이상이며, 바람직하게는 0.7 ㏖ 이상, 보다 바람직하게는 0.8 ㏖ 이상이고, 또 통상 2.0 ㏖ 이하, 바람직하게는 1.8 ㏖ 이하, 보다 바람직하게는 1.5 ㏖ 이하이다. 알케닐기에 대한 하이드로실릴기의 몰수를 컨트롤함으로써 경화 후의 미반응 말단기의 잔존량을 저감시켜, 점등 사용시의 착색이나 박리 등의 시간 경과적 변화가 적은 경화물을 얻을 수 있다.

[0081] 또, 하이드로실릴화를 일으키는 반응점 (가교점) 의 함유량은, 알케닐기 및 하이드로실릴기 모두 백색 안료를 함유하지 않는 수지 자체 중에 있어서 0.1 ㎜ol/g 이상, 20 ㎜ol/g 이하인 것이 바람직하다. 더욱 바람직하게는 0.2 ㎜ol/g 이상, 10 ㎜ol/g 이하이다.

[0082] 또, 백색 안료 첨가 전 수지의 점도로는, 취급하기 용이함에서, 통상 100,000 cp 이하, 바람직하게는 20,000 cp 이하, 더욱 바람직하게는 10,000 cp 이하이다. 하한은 특별하게는 제한되지 않지만, 휘발도 (비점) 와의 관계상 일반적으로는 15 cp 이상이다.

[0083] 또한, 수지의 폴리스티렌을 표준 물질로 하여 측정한 겔 퍼미에이션 크로마토그래피에서의 평균 분자량 측정치로서, 수지의 중량 평균 분자량은 500 이상, 100,000 이하인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 700 이상 50,000 이하이다. 또한, 휘발 성분을 줄일 (타부재와의 접착성을 유지하기 위해) 목적에서 1,000 이상, 또 성형 전 재료의 취급이 용이한 점에서 25,000 이하인 것이 보다 바람직하다. 가장 바람직하게는 20,000 이하이다.

[0084] <1-1-2. 축합형 폴리오르가노실록산>

[0085] 축합형 폴리오르가노실록산으로는, 예를 들어 알킬알콕시실란의 가수분해·중축합으로 얻어지는 Si-O-Si 결합을 가교점에 갖는 화합물을 들 수 있다. 구체적으로는, 하기 일반식 (3) 및/혹은 (4) 로 나타내는 화합물, 그리고/또는 그 올리고머를 가수분해·중축합하여 얻어지는 중축합물을 들 수 있다.

[0086] $M^{m+}X_nY^1_{m-n}$ … (3)

[0087] 식 (3) 중, M 은, 규소를 나타내고, X 는, 가수분해성기를 나타내고, Y^1 은, 1 가의 유기기를 나타내고, m 은, M 의 가수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고, n 은, X 기의 수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타낸다. 단, m≥n 이다.

[0088] $(M^{s+}X_tY^1_{s-t-1})_uY^2$ … (4)

[0089] 식 (4) 중, M 은, 규소를 나타내고, X 는, 가수분해성기를 나타내고, Y^1 은, 1 가의 유기기를 나타내고, Y^2 는, u 가의 유기기를 나타내고, s 는, M 의 가수를 나타내는 1 이상의 정수를 나타내고, t 는, 1 이상, s-1 이하의 정수를 나타내고, u 는, 2 이상의 정수를 나타낸다.

[0090] 축합형 폴리오르가노실록산은 공지된 것을 사용할 수 있고, 예를 들어 일본 공개특허공보 2006-77234호, 일본 공개특허공보 2006-291018호, 일본 공개특허공보 2006-316264호, 일본 공개특허공보 2006-336010호, 일본 공개특허공보 2006-348284호, 및 국제 공개 2006/090804호 팜플렛에 기재된 반도체 발광 디바이스용 부재가 바람직하다.

[0091] <1-1-2-1. 특히 바람직한 축합형 폴리오르가노실록산>

[0092] 축합형 폴리오르가노실록산 중에서, 특히 바람직한 재료에 대하여 이하에 설명한다.

[0093] 폴리오르가노실록산은, 일반적으로 반도체 발광 장치에 사용한 경우, 반도체 발광 소자나 반도체 발광 소자를 배치하는 기판이나, 수지 성형체 등과의 접착성이 약한 경우가 있는데, 이들과 밀착성이 높은 폴리오르가노실록산으로 하기 위해, 특히 이하의 [1] 및 [2] 중 하나 이상의 특징을 갖는 축합형 폴리오르가노실록산이 바람직하다.

[0094] [1] 규소 함유율이 20 중량% 이상이다.

[0095] [2] 측정한 고체 Si-핵 자기 공명 (NMR) 스펙트럼에 있어서, 하기 (a) 및/또는 (b) 의 Si 에서 유래하는 피크를 적어도 1 개 갖는다.

[0096] (a) 피크 탑의 위치가 디메틸실리콘 고무의 디메틸실록시규소를 기준으로 하여 케미컬 시프트 -40 ppm 이상, 0 ppm 이하의 영역에 있고, 피크의 반치폭이 0.3 ppm 이상, 3.0 ppm 이하인 피크.

[0097] (b) 피크 탑의 위치가 디메틸실리콘 고무의 디메틸실록시규소를 기준으로 하여 케미컬 시프트 -80 ppm 이상, -40 ppm 미만의 영역에 있고, 피크의 반치폭이 0.3 ppm 이상 5.0 ppm 이하인 피크.

[0098] 본 발명에 있어서는, 상기의 특징 [1] 및 [2] 중, 특징 [1] 을 갖는 축합형 폴리오르가노실록산이 바람직하다. 더욱 바람직하게는, 상기의 특징 [1] 및 [2] 를 갖는 축합형 폴리오르가노실록산이 바람직하다.

[0099] 또한, 축합형 폴리오르가노실록산에 있어서는, 축합 반응의 진행에 수반하여 탈리 성분이 발생하는데, 성형 가공 방법에 의해 그 성분의 성형 가공성에 대한 영향이 크지 않은 경우에 사용할 수 있다. 그 경우에는, 특히 축합형 폴리오르가노실록산 중의 실란올 함유율이 0.01 중량% 이상, 10 중량% 이하인 것이 바람직하다.

[0100] <1-2. (B) 백색 안료>

[0101] 본 발명에 있어서 백색 안료는, 수지의 경화를 저해하지 않는 공지된 안료를 적절히 선택할 수 있다. 백색 안료로는 무기 및/또는 유기의 재료를 사용할 수 있다. 여기서 백색이란, 무색이며 투명하지 않은 것을 가리킨다. 즉 가시광 영역에 특이한 흡수 파장을 갖지 않는 물질에 의해 입사광을 난반사시킬 수 있는 색을 가리킨다.

[0102] 백색 안료로서 사용할 수 있는 무기 입자로는, 알루미나 (이하, 「알루미나 미분」, 또는 「산화알루미늄」이라고 칭하는 경우가 있다), 산화규소, 산화티탄 (티타니아), 산화아연, 산화마그네슘 등의 금속 산화물 ; 탄산칼슘, 탄산바륨, 탄산마그네슘, 황산바륨, 수산화알루미늄, 수산화칼슘, 수산화마그네슘 등의 금속염 ; 질화붕소,

알루미나 화이트, 콜로이달 실리카, 규산알루미늄, 규산지르코늄, 붕산알루미늄, 클레이, 탤크, 카올린, 운모, 합성 운모 등을 들 수 있다.

[0103] 또, 백색 안료로서 사용할 수 있는 유기 미립자로는, 불소 수지 입자, 구아나민 수지 입자, 멜라민 수지 입자, 아크릴 수지 입자, 실리콘 수지 입자 등의 수지 입자 등을 들 수 있는데, 어느 것도 이들에 한정되는 것은 아니다. 그 중에서도 백색도가 높아 소량으로도 광 반사 효과가 높고 잘 변질되지 않는 점에서는, 알루미나, 산화티탄, 산화아연 등이 특히 바람직하다. 또, 재료 경화시의 열전도율 향상면에서는 알루미나, 질화붕소 등이 특히 바람직하다. 또, 근자외선의 광 반사 효과가 높고, 근자외선에 의한 변질이 작은 관점에서도 알루미나는 특히 바람직하다.

[0104] 이들은, 단독 혹은 2 종 이상 혼합하여 사용할 수 있다.

[0105] 산화티탄을 사용하는 경우에는, 광 촉매성, 분산성, 백색성 등의 문제가 생기지 않을 정도로 함유할 수 있다.

[0106] 산화티탄으로는 구체적으로는 후지 티탄 공업사 제조의 TA 시리즈, TR 시리즈, 이시하라 산업 (주) 제조의 TTO 시리즈, MC 시리즈, CR-EL 시리즈, PT 시리즈, ST 시리즈, FTL 시리즈 등을 들 수 있으며, 알루미나로는 구체적으로는 니혼 경금속사 제조 A30 시리즈, AN 시리즈, A40 시리즈, MM 시리즈, LS 시리즈, AHP 시리즈, 아도마텍스사 제조 「Admafine Alumina」 AO-5 타입, AO-8 타입, 니혼 바이코우스키사 제조 CR 시리즈, 다이메이 화학 공업사 제조 타이미크론, Aldrich 사 제조 10 μm^2 직경 알루미나 분말, 쇼와 전공사 제조 A-42 시리즈, A-43 시리즈, A-50 시리즈, AS 시리즈, AL-43 시리즈, AL-47 시리즈, AL-160SG 시리즈, A-170 시리즈, AL-170 시리즈, 스미토모 화학사 제조 AM 시리즈, AL 시리즈, AMS 시리즈, AES 시리즈, AKP 시리즈, AA 시리즈 등을 들 수 있고, 지르코니아로는 구체적으로는 다이이치 희원소 화학 공업사 제조 UEP-100 등을 들 수 있으며, 산화아연으로는 구체적으로는 하쿠스이테크사 제조 산화아연 2 종 등을 들 수 있다.

[0107] (A) 폴리오르가노실록산의 굴절률과 (B) 백색 안료의 굴절률차가 클수록 소량의 백색 안료 첨가로도 백색도가 보다 높고, 반사·산란 효율이 양호한 반도체 발광 장치용 수지 성형체를 얻을 수 있다. (A) 폴리오르가노실록산은 굴절률이 1.41 정도인 것이 바람직하고, 굴절률이 1.76 인 알루미나 입자를 (B) 백색 안료로서 바람직하게 사용할 수 있다. (A) 폴리오르가노실록산의 굴절률은, 수지의 경도 관점에서 1.40 이상이 바람직하며, 알루미나와의 굴절률차가 작아져 반사율이 내려가는 경향이 있고, 내열성이 내려가는 경향이 있는 등의 이유에 의해 1.50 이하가 바람직하다.

[0108] 본 발명에 있어서 백색 안료는 근자외선의 광 반사 효과가 높고, 근자외선에 의한 변질이 작은 점에서 알루미나인 것이 바람직하다. 알루미나는 자외선의 흡수능이 낮기 때문에, 특히 자외 ~ 근자외 발광의 발광 소자와 함께 사용하는 경우에 바람직하게 사용할 수 있다. 본 발명에 있어서 알루미나는 알루미늄의 산화물을 가리키며, 그 결정 형태는 상관하지 않지만, 화학적으로 안정, 융점이 높고, 기계적 강도가 크고, 경도가 높고, 전기 절연 저항이 큰 등의 특성을 갖는 α 알루미나를 바람직하게 사용할 수 있다.

[0109] 또, 본 발명에 있어서 백색 안료에 알루미나를 사용하는 경우, 알루미나 결정의 결정자 사이즈가 500 Å 이상 2,000 Å 이하인 것이 바람직하고, 700 Å 이상 1,500 Å 이하인 것이 보다 바람직하고, 900 Å 이상 1,300 Å 이하인 것이 특히 바람직하다. 결정자란, 단결정으로 간주할 수 있는 최대의 집합체를 가리킨다.

[0110] 알루미나의 1 차 입자경이 상기의 범위이며, 또한 알루미나 결정의 결정자 사이즈가 상기의 범위라는 것은, 1 차 입자의 사이즈와 결정자의 사이즈가 상이한 것, 즉 1 차 입자가 복수의 결정자에 의해 구성되는 것을 의미한다.

[0111] 알루미나 결정의 결정자 사이즈가 상기 범위인 경우에는, 성형시에 배관, 스크루, 금형 등의 마모가 적어, 마모에 의한 불순물이 잘 혼입되지 않는 점에서 바람직하다.

[0112] 상기 결정자 사이즈는 X 선 회절 측정에 의해 확인할 수 있다. X 선 회절 측정에서는, 알루미나가 결정성을 가지고 있는 경우, 결정형에 따라 정해진 위치에 피크가 나온다. 그리고, 이 피크의 반치폭으로부터 Scherrer 의 식에 따라 결정자 직경 (결정자 사이즈) 을 계산할 수 있다.

[0113] 또, 알루미나 중에 알루미늄, 산소 이외의 원소를 불순물로서 함유하면 가시광 영역에 흡수를 가지기 때문에 착색되어 바람직하지 않다. 예를 들면 약간이라도 크롬을 함유하면 일반적으로 루비로 불리며 적색을 띠고, 철이나 티탄을 불순물로서 함유하면 일반적으로 사파이어로 불리며 청색을 띤다. 본 발명에 있어서의 알루미나는, 크롬, 철, 티탄의 함유량이 각각 0.02 중량% 이하, 바람직하게는 0.01 중량% 이하인 것을 사용하는 것이 바람직하다.

[0114] 본 발명의 수지 성형체용 재료의 경화시의 열전도율은, 전술한 바와 같이 높은 쪽이 바람직한데, 열전도율을 높이기 위해서는, 순도가 98 % 이상인 알루미나를 사용하는 것이 바람직하고, 순도 99 % 이상의 알루미나를 사용하는 것이 보다 바람직하고, 특히 저소다 알루미나를 사용하는 것이 바람직하다. 또, 열전도율을 높이기 위해서는, 질화붕소를 사용하는 것도 바람직하고, 순도가 99 % 이상인 질화붕소를 사용하는 것이 특히 바람직하다.

[0115] 또, 특히 발광 피크 파장이 420 ㎚ 이상인 발광 소자를 사용하는 반도체 발광 장치에서는, 백색 안료로서 산화티탄도 바람직하게 사용할 수 있다. 산화티탄 (티타니아) 은 자외선 흡수능을 갖는데, 굴절률이 크고 광 산란성이 강하기 때문에, 420 ㎚ 이상의 파장의 광의 반사율이 높고, 적은 첨가량으로도 고반사를 발현시키기 쉽다. 본 발명의 백색 안료로는, 자외선 흡수능이나 광 촉매능이 크고 고온에서 불안정한 아나타제형보다, 고온에서 안정적이고, 굴절률이 높고, 비교적 내광성이 높은 루틸형이 바람직하고, 광 활성을 억제할 목적에서 표면에 실리카나 알루미나의 박막 코트가 실시된 루틸형이 특히 바람직하다.

[0116] 산화티탄은 굴절률이 높고, 폴리오르가노실록산과의 굴절률차가 크기 때문에 적은 첨가량으로도 고반사가 되기 쉬운 점에서 알루미나와 산화티탄을 병용해도 된다. 예를 들어, 알루미나에 대한 산화티탄의 중량비 (알루미나 : 산화티탄) 가 50 : 50 ~ 95 : 5 가 되는 비율로 혼합할 수 있다. 알루미나에 산화티탄을 소량 첨가함으로써, 알루미나를 단독으로 사용한 경우보다 420 ㎚ 이상의 파장의 광의 반사율이 높아질 가능성이 있으며, 또한 재료 중의 백색 안료의 비율이 작은 경우나, 재료의 두께가 얇은 경우에도 반사율이 잘 내려가지 않는 경향이 있다. 티타니아의 병용에 의해 재료 중의 백색 안료의 비율을 작게 할 수 있기 때문에, 재료 조성의 자유도가 높아지고, 백색 안료 이외의 성분의 충전량을 올릴 수 있다. 또, 얇은 재료의 반사율이 높은 것은, 수지 성형체의 형상의 자유도가 높아지는 점에서 매우 유리하다. 또, 두께를 크게 할 수 없는 얇은 수지 성형체나 미세한 구조의 수지 성형체라도 재료의 반사율이 높음으로써, 반도체 발광 장치의 밝기를 증가시키는 효과를 기대할 수 있다.

[0117] 또한, 백색 안료를 실란 커플링제 등으로 표면 처리를 실시해도 된다. 실란 커플링제로 표면 처리한 백색 안료를 사용하면, 수지 성형체용 재료 전체의 경도를 향상시킬 수 있다.

[0118] <1-2-1. (B) 백색 안료의 바람직한 형상>

[0119] 본 발명에 있어서의 (B) 백색 안료의 1 차 입자의 애스펙트비는 1.2 이상 4.0 이하인 것을 특징으로 하고 있다.

[0120] 상기 (B) 백색 안료의 애스펙트비는 1.25 이상인 것이 바람직하고, 1.3 이상인 것이 보다 바람직하고, 1.4 이상인 것이 더욱 바람직하다. 한편, 상한은, 3.0 이하인 것이 바람직하고, 2.5 이하인 것이 보다 바람직하고, 2.2 이하인 것이 더욱 바람직하고, 2.0 이하인 것이 특히 바람직하고, 1.8 이하인 것이 가장 바람직하다.

[0121] 애스펙트비가 상기 범위인 경우에는, 산란에 의해 고반사율을 발현시키기 쉽고, 특히 근자외 영역의 단파장의 광의 반사가 크다. 이로써, 이러한 수지 성형체를 사용한 반도체 발광 장치에 있어서 LED 출력을 향상시킬 수 있다.

[0122] 또, 애스펙트비가 상기 범위인 백색 안료를 사용하는 것은, 금형의 마모가 적은 등 성형성의 관점에서도 바람직하다. 애스펙트비가 상기 범위보다 큰 경우, 안료 입자의 모서리부와의 접촉에 의해 금형의 마모가 심해지는 경우가 있고, 반대로 애스펙트비가 작은 백색 안료를 사용하는 경우에도 재료 중의 안료의 충전 밀도가 높아지기 때문에 금형과 안료의 접촉 빈도가 높아져 금형이 마모되기 쉬운 경향이 된다. 또한, 애스펙트비가 상기 범위인 백색 안료를 사용하면, 재료 점도의 조정이 용이해져, 성형에 적합한 점도로 조정함으로써 성형 사이클을 단축시킬 수 있거나, 버를 억제할 수 있어 성형성이 우수한 재료가 된다.

[0123] 특히 애스펙트비가 4.0 보다 큰 경우에는, 고반사가 되기 어렵고, 또 성형시에 배관, 스크루, 금형 등의 마모가 발생하기 쉬워, 마모에 의한 불순물의 혼입에 의해 성형한 수지 성형체의 반사율 저하나 절연 파괴가 일어나기 쉬운 경향이 있다.

[0124] 애스펙트비는, 입자 등의 형상을 정량적으로 표현하는 간편한 방법으로서 일반적으로 이용되고 있으며, 본 발명에서는 SEM 등의 전자 현미경 관찰에 의해 계측한 입자의 장축 길이 (최대 장경) 를 단축 길이 (장경에 수직 방향에서 가장 긴 부분의 길이) 로 나누어 구하는 것으로 한다. 축 길이에 편차가 있는 경우에는, 복수 점 (예를 들어 10 점) 을 SEM 으로 계측하고, 그 평균치로부터 산출할 수 있다. 혹은, 30 점, 100 점을 계측해도 동일한 산출 결과를 얻을 수 있다.

[0125] 애스펙트비는, 입자의 형상이 섬유상이나 봉상인지 혹은 구상인지의 지표가 되고, 입자가 섬유상인 경우에는 애

스펙트비가 커지고, 입자가 구상인 경우에는 1.0 이 된다.

[0126] 본 발명에서는, 애스펙트비가 상기 범위임으로써, (B) 백색 안료의 바람직한 형상으로부터 구상, 진구상으로 형성된 것은 제외된다. 또, 지나치게 가늘고 긴 형상인 것도 오히려 반사율을 저하시키기 때문에, 본 발명에 관련된 (B) 백색 안료로부터는 제외된다. 애스펙트비가 상기 범위인 경우, 백색 안료가 금형의 간극에 막히기 쉬워 버가 잘 발생하지 않는데, 구상에서는 금형의 간극을 그냥 통과시켜 버가 발생하기 쉬운 경향이 있다.

[0127] 본 발명에서는, 애스펙트비가 상기 범위에 포함되는 입자가 (B) 백색 안료 전체의 60 체적% 이상, 보다 바람직하게는 70 체적% 이상, 특히 바람직하게는 80 체적% 이상을 차지하는 것이 바람직하고, 반드시 모든 (B) 백색 안료가 상기 애스펙트비의 범위를 만족시켜야 하는 것은 아님은 당업자가 당연히 이해할 수 있는 사항이다.

[0128] 애스펙트비를 상기 범위로 하기 위해서는, 백색 안료의 표면 처리를 하거나 연마하거나 하는 등의 일반적인 방법을 채택해도 된다. 또, 백색 안료를 파쇄 (분쇄) 하여 미세화하는 것이나, 백색 안료를 소성에 의해 생성함으로써 달성할 수도 있다.

[0129] 본 발명에 있어서의 (B) 백색 안료란, 화학 조성으로는 상기 1-2. 에서 예시한 무기 미립자·유기 미립자를 포함하는 것이다. 아울러, 형상이 (c) 파쇄 형상인 것이 바람직하다.

[0130] 여기서 (c) 파쇄 형상이란, 주로 백색 안료를 파쇄 (분쇄) 에 의해 미세화한 형상을 가리키며, 파쇄 후의 처리에 의해 결정의 각 (角) 이 적은 둥그스름해진 형상으로 된 것, 소성 등에 의해 생성된 구상이 아닌 안료의 형상도 포함된다. 즉, 제조 공정의 성격상, 구상, 진구상으로 형성된 것을 제외한 취지이다. 파쇄 형상의 백색 안료를 사용한 재료에서는, 구상의 백색 안료를 사용한 재료에 비해 산란에 의해 고반사율을 발현시키기 쉽고, 특히 근자외 영역의 단파장의 광 (특히, 파장 360 ㎚ ~ 460 ㎚ 의 광) 의 반사가 크다. 또, 구상의 안료에 비해 경제적인 면으로도 유리한 경우가 있다. 이로써, 이러한 수지 성형체를 사용한 반도체 발광 장치에 있어서 LED 출력을 향상시킬 수 있다.

[0131] 또, 본 발명에 있어서의 (B) 백색 안료의 1 차 입자경은, 0.1 ㎛ 이상 2 ㎛ 이하인 것이 바람직하다. 하한치에 대해서는 바람직하게는 0.15 ㎛ 이상, 보다 바람직하게는 0.2 ㎛ 이상, 특히 바람직하게는 0.25 ㎛ 이상이며, 상한치에 대해서는 바람직하게는 1 ㎛ 이하, 더욱 바람직하게는 0.8 ㎛ 이하, 특히 바람직하게는 0.5 ㎛ 이하이다.

[0132] 1 차 입자경이 상기 범위인 경우에는, 후방 산란 경향과 산란 광 강도를 겸비함으로써 재료가 고반사율을 발현시키기 쉽고, 특히 근자외 영역 등의 단파장의 광에 대한 반사가 커져 바람직하다.

[0133] 백색 안료는, 1 차 입자경이 지나치게 작으면 산란 광 강도가 작기 때문에 반사율은 낮아지는 경향이 있고, 1 차 입자경이 지나치게 크면 산란 광 강도는 커지지만, 전방 산란 경향이 되기 때문에 반사율은 작아지는 경향이 있다.

[0134] 또, 1 차 입자경이 상기 범위인 경우에는, 성형에 적합한 점도로의 조정이 용이하고, 금형의 마모가 적은 등 성형성의 관점에서도 바람직하다. 1 차 입자경이 상기 범위보다 큰 경우, 안료 입자와의 접촉에 의한 금형에 대한 충격이 크고 금형의 마모가 심해지는 경향이 있고, 1 차 입자경이 상기 범위보다 작은 백색 안료를 사용하는 경우에는, 재료가 고점도가 되기 쉬워 백색 안료의 충전량을 올릴 수 없기 때문에, 고반사 등의 재료 특성과 성형성의 양립이 어려워지는 경향이 있다.

[0135] 특히, 액상 사출 성형에 바람직하게 사용할 수 있는 재료로 하기 위해서는 재료에 어느 정도 이상의 틱소트로피성을 갖게 하는 것이 필요하다. 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 백색 안료를 조성물 중에 첨가하면 틱소트로피성 부여 효과가 크고, 버나 쇼트가 적어 성형하기 쉬운 조성물로 하기 때문에, 점도와 틱소트로피성을 용이하게 조정할 수 있다.

[0136] 또한, 수지 조성물 중의 백색 안료의 충전율을 올리는 등의 목적에서, 1 차 입자경이 2 ㎛ 보다 큰 백색 안료를 병용할 수도 있다.

[0137] 본 발명에 있어서의 1 차 입자란 분체를 구성하고 있는 입자 중, 다른 것과 명확하게 분리할 수 있는 최소 단위의 개체를 가리키며, 1 차 입자경은 SEM 등의 전자 현미경 관찰에 의해 계측한 1 차 입자의 입자경을 가리킨다.
한편, 1 차 입자가 응집되어 생기는 응집 입자를 2 차 입자라고 하고, 2 차 입자의 중심 입경은 분체를 적당한 분산매 (예를 들어 알루미나의 경우에는 물) 에 분산시켜 입도 분석계 등으로 측정한 입경을 가리킨다. 1 차 입자경에 편차가 있는 경우에는, 여러 점 (예를 들어 10 점) 을 SEM 관찰하고, 그 평균치를 입자경으로서 구할 수 있다. 또, 측정시, 개개의 입자경이 구상이 아닌 경우에는 가장 긴, 즉 장축의 길이를 입자경으로

한다.

[0138] 백색 안료의 애스펙트비와 1 차 입자경은 성형 후 (경화 후) 라도 측정할 수 있다. SEM 등의 전자 현미경에 의해 성형품의 단면을 관찰하여, 단면에 노출된 백색 안료의 1 차 입자경과 애스펙트비를 계측하면 된다.

[0139] 본 발명에서는 SEM 등의 전자 현미경 관찰에 의해 계측한 입자의 장축 길이 (최대 장경) 를 단축 길이 (장경에 수직 방향에서 가장 긴 부분의 길이) 로 나누어 구하는 것으로 한다. 축 길이에 편차가 있는 경우에는, 복수 점 (예를 들어 10 점) 을 SEM 으로 계측하고, 그 평균치로부터 산출할 수 있다. 혹은, 30 점, 100 점을 계측해도 동일한 산출 결과를 얻을 수 있다.

[0140] 한편, 상기 백색 안료는 2 차 입자의 중심 입경 (이하, 「2 차 입경」이라고 칭하는 경우가 있다) 이 0.2 ㎛ 이상인 것이 바람직하고, 0.3 ㎛ 이상인 것이 보다 바람직하다. 상한은 10 ㎛ 이하인 것이 바람직하고, 5 ㎛ 이하인 것이 보다 바람직하고, 2 ㎛ 이하인 것이 더욱 바람직하다.

[0141] 2 차 입경이 상기 범위인 경우에는, 성형성의 관점에서 바람직한 재료를 얻기 쉽다. 또, 성형에 적합한 점도로의 조정이 용이하고, 금형의 마모가 적다. 아울러, 백색 안료가 금형의 간극을 통과하기 어렵기 때문에 버가 잘 발생하지 않고, 또한 금형의 게이트에 잘 막히지 않기 때문에 성형시의 트러블이 잘 일어나지 않는다. 2 차 입경이 상기 범위보다 큰 경우에는, 백색 안료의 침강에 의해 재료가 불균일해지는 경향이 있고, 금형의 마모나 게이트의 막힘에 의해 성형성이 손상되거나, 재료의 반사 균일성이 손상되거나 하는 경우가 있다.

[0142] 또한, 수지 조성물 중의 백색 안료의 충전율을 올리는 등의 목적에서, 2 차 입경이 10 ㎛ 보다 큰 백색 안료를 병용할 수도 있다. 또한, 중심 입경이란 적산% 의 체적 기준 입도 분포 곡선이 50 % 인 횡축과 교차하는 포인트의 입자경을 가리키며, 일반적으로 50 % 입자경 (D_{50}), 메디안 직경이라고 불리는 것을 가리킨다.

[0143] 또, 본 발명에 있어서의 (B) 백색 안료의 1 차 입자경 x 와 2 차 입자의 중심 입경 y 의 비 y/x 는, 통상 1 이상, 바람직하게는 1 보다 크고, 특히 바람직하게는 1.2 이상이며, 또 통상 10 이하, 바람직하게는 5 이하이다.

[0144] 여기서, 1 차 입자경 x 와 2 차 입자의 중심 입경 y 의 비 y/x 가 상기 범위임으로써, (B) 백색 안료의 바람직한 형상으로부터 구상, 진구상으로 형성된 것 (즉, 1 차 입자가 거의 응집되어 있지 않고, 1 차 입자경과 2 차 입자의 중심 입경이 거의 동등한 것) 은 제외된다.

[0145] 1 차 입자경 x 와 2 차 입자의 중심 입경 y 의 비 y/x 가 상기 범위인 경우에는, 산란에 의해 고반사율을 발현시키기 쉽고, 특히 근자외 영역의 단파장의 광의 반사가 크다. 이로써, 이러한 수지 성형체를 사용한 반도체 발광 장치에 있어서 LED 출력을 향상시킬 수 있다. 또, 성형에 적합한 재료 점도로의 조정도 용이하다.

[0146] <1-2-2. (B) 백색 안료의 첨가량>

[0147] 본 발명에 있어서 반도체 발광 장치용 수지 성형체 재료 중의 (B) 백색 안료의 함유량은, 사용하는 안료의 입경이나 종류, 폴리오르가노실록산과 안료의 굴절률차에 의해 적절히 선택된다. (A) 폴리오르가노실록산 100 중량부에 대하여 통상 20 중량부 이상, 바람직하게는 50 중량부 이상, 더욱 바람직하게는 100 중량부 이상이며, 통상 900 중량부 이하, 바람직하게는 600 중량부 이하, 더욱 바람직하게는 400 중량부 이하이다.

[0148] 상기 범위 내이면 반사율, 성형성 등이 양호하다. 상기 하한 미만인 경우에는 광선이 투과되어 버려 반도체 발광 장치의 반사 효율이 저하되는 경향이 있고, 상한보다 큰 경우에는 재료의 유동성이 악화됨으로써 성형성이 저하되는 경향이 있다.

[0149] 특히, 액상 사출 성형에 바람직하게 사용할 수 있는 재료로 하기 위해서는 재료에 어느 정도 이상의 틱소트로피성을 갖게 하는 것이 필요하다. 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 백색 안료를 조성물 중에 배합하면 현저한 증점이 일어나 틱소트로피성 부여 효과가 크지만, 그러한 형상의 백색 안료를 조성물 전체의 30 중량 % 이상 함유시킴으로써, 버나 쇼트가 적어 성형하기 쉬운 재료로 할 수 있어, 더욱 점도와 틱소트로피성을 조정하는 것이 용이해진다.

[0150] 또, 후술하는 수지 성형체용 재료의 열전도율을 0.4 이상 3.0 이하의 범위로 제어하기 위해서는, (B) 백색 안료로서 알루미나를 수지 성형체용 재료 전체량에 대하여 40 중량부 이상 90 중량부 이하 첨가하는 것이 바람직하다. 혹은, (B) 백색 안료로서 질화붕소를 수지 성형체용 재료 전체량에 대하여 30 중량부 이상 90 중량부 이하 첨가하는 것이 바람직하다. 또한, 알루미나와 질화붕소를 병용해도 된다.

[0151] <1-3. (C) 경화 촉매>

[0152] 본 발명에 있어서의 (C) 경화 촉매란, (A) 의 폴리오르가노실록산을 경화시키는 촉매이다. 폴리오르가노실록산은 촉매에 의해 중합 반응이 빨라져 경화된다. 이 촉매는 폴리오르가노실록산의 경화 기구에 의해 부가 중합용 촉매, 축합 중합용 촉매가 있다.

[0153] 부가 중합용 촉매로는, (C1) 성분 중의 알케닐기와 (C2) 성분 중의 하이드로실릴기의 하이드로실릴화 부가 반응을 촉진시키기 위한 촉매로, 이 부가 중합 촉매의 예로는, 백금흑, 염화제2백금, 염화백금산, 염화백금산과 1가 알코올의 반응물, 염화백금산과 올레핀류의 착물, 백금비스아세토아세테이트 등의 백금계 촉매, 팔라듐계 촉매, 로듐계 촉매 등의 백금족 금속 촉매를 들 수 있다. 또한, 이 (C3) 부가 중합 촉매의 배합량은 촉매량으로 할 수 있는데, 통상 백금족 금속으로서 (C1) 및 (C2) 성분의 합계 중량에 대하여 통상 1 ppm 이상, 바람직하게는 2 ppm 이상이며, 통상 100 ppm 이하, 바람직하게는 50 ppm 이하, 더욱 바람직하게는 20 ppm 이하이다. 이로써 촉매 활성을 높은 것으로 할 수 있다.

[0154] 축합 중합용 촉매로는, 염산, 질산, 황산, 유기산 등의 산, 암모니아, 아민류 등의 알칼리, 금속 킬레이트 화합물 등을 사용할 수 있으며, 바람직한 것으로서 Ti, Ta, Zr, Al, Hf, Zn, Sn, Pt 중 어느 1 이상을 함유하는 금속 킬레이트 화합물을 사용할 수 있다. 그 중에서도, 금속 킬레이트 화합물은, Ti, Al, Zn, Zr 중 어느 1 이상을 함유하는 것이 바람직하고, Zr 을 함유하는 것이 더욱 바람직하게 사용된다.

[0155] 이들 촉매는 반도체 발광 장치용 수지 성형체 재료로서 배합했을 때의 안정성, 피막의 경도, 무황변성, 경화성 등을 고려하여 선택된다.

[0156] 축합 중합용 촉매의 배합량은, 상기 식 (3) 및/또는 (4) 로 나타내지는 성분의 합계 중량에 대하여 통상 0.01 중량% 이상, 바람직하게는 0.05 중량% 이상, 한편 상한은 통상 10 중량% 이하, 바람직하게는 6 중량% 이하이다.

[0157] 첨가량이 상기 범위이면 반도체 발광 장치용 수지 성형체 재료의 경화성, 보존 안정성이 양호하고, 아울러 성형한 수지 성형체의 품질이 양호하다. 첨가량이 상한치를 초과하면 수지 성형체 재료의 보존 안정성에 문제가 생기는 경우가 있으며, 하한치 미만에서는 경화 시간이 길어져 수지 성형체의 생산성이 저하되고, 미경화 성분에 의해 수지 성형체의 품질이 저하되는 경향이 있다.

[0158] <1-4. (D) 경화 속도 제어제>

[0159] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료는, 추가로 (D) 경화 속도 제어제를 함유하는 것이 바람직하다. 여기서 경화 속도 제어제란, 수지 성형체용 재료를 성형할 때, 그 성형 효율을 향상시키기 위해서 경화 속도를 제어하기 위한 것으로, 경화 지연제 또는 경화 촉진제를 들 수 있다.

[0160] 경화 지연제로는, 지방족 불포화 결합을 함유하는 화합물, 유기 인 화합물, 유기 황 화합물, 질소 함유 화합물, 주석계 화합물, 유기 과산화물 등을 들 수 있으며, 이들을 병용해도 상관없다.

[0161] 지방족 불포화 결합을 함유하는 화합물로는, 3-하이드록시-3-메틸-1-부틴, 3-하이드록시-3-페닐-1-부틴, 1-에티닐-1-시클로헥사놀 등의 프로파르길알콜류, 엔-인 화합물류, 디메틸말레이트 등의 말레산에스테르류 등이 예시된다. 지방족 불포화 결합을 함유하는 화합물 중에서도 삼중 결합을 갖는 화합물이 바람직하다. 유기 인 화합물로는, 트리오르가노포스핀류, 디오르가노포스핀류, 오르가노포스폰류, 트리오르가노포스파이트류 등이 예시된다. 유기 황 화합물로는, 오르가노메르캅탄류, 디오르가노술파이드류, 황화수소, 벤조티아졸, 티아졸, 벤조티아졸디술파이드 등이 예시된다. 질소 함유 화합물로는, 암모니아, 1 ~ 3 급 알킬아민류, 아릴아민류, 우레아, 히드라진 등이 예시된다. 주석계 화합물로는, 할로겐화 제1주석2수화물, 카르복실산제1주석 등이 예시된다. 유기 과산화물로는, 디-t-부틸퍼옥사이드, 디쿠밀퍼옥사이드, 벤조일퍼옥사이드, 과벤조산t-부틸 등이 예시된다.

[0162] 이들 경화 지연제 중, 지연 활성이 양호하고 원료 입수성이 양호하다는 관점에서는, 벤조티아졸, 티아졸, 디메틸말레이트, 3-하이드록시-3-메틸-1-부틴, 1-에티닐-1-시클로헥사놀이 바람직하다.

[0163] 경화 지연제의 첨가량은 다양하게 설정할 수 있는데, 사용하는 (C) 경화 촉매 1 ㏖ 에 대한 바람직한 첨가량의 하한은 10^{-1} ㏖ 이상, 보다 바람직하게는 1 ㏖ 이상이며, 바람직한 첨가량의 상한은 10^{3} ㏖ 이하, 보다 바람직하게는 50 ㏖ 이하이다. 또, 이들 경화 지연제는 단독으로 사용해도 되고, 2 종 이상 병용해도 된다.

[0164] 경화 촉진제로는, 열경화성 수지를 경화시키는 것이면 특별히 제한은 없으며, 예를 들어 이미다졸류, 디시안디아미드 유도체, 디카르복실산디히드라지드, 트리페닐포스핀, 테트라페닐포스포늄테트라페닐보레이트, 2-에틸-4-

메틸이미다졸테트라페닐보레이트, 1,8-디아자비시클로 [5.4.0] 운데센-7-테트라페닐보레이트 등을 들 수 있으며, 그 중에서도 높은 반응 촉진성을 나타내는 점에서 이미다졸류를 사용하는 것이 바람직하다.

[0165] 상기 이미다졸류로는, 예를 들어 2-메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-페닐이미다졸, 1-시아노에틸-2-페닐이미다졸륨트리멜리테이트 등을 들 수 있으며, 상품명으로는 2E4MZ, 2PZ-CN, 2PZ-CNS (시코쿠 화성 공업 주식회사) 등이 있다. 경화 촉진제의 첨가량은, (A) 폴리오르가노실록산 열경화성 수지와 (C) 경화 촉매의 합계 100 중량부에 대하여, 0.1 중량부 이상 10 중량부 이하의 범위에서 첨가하는 것이 바람직하다.

[0166] 경화 속도 제어제의 종류나 배합량을 상기와 같이 설정함으로써, 수지 성형체용 재료의 성형이 용이해진다. 예를 들어, 금형에 대한 충전율이 높아지거나, 사출 성형에 의한 성형시에 금형으로부터 새어나오지 않아 버가 잘 발생하지 않게 되거나 하는 장점을 얻을 수 있다.

[0167] <1-5. 그 밖의 성분>

[0168] 반도체 장치용 수지 성형체용 재료 중에는, 상기 (A) 폴리오르가노실록산, (B) 백색 안료, (C) 경화 촉매, (D) 경화 속도 제어제 이외에, 본 발명의 요지를 저해하지 않는 한, 필요에 따라 다른 성분을 1 종, 또는 2 종 이상을 임의의 비율 및 조합으로 함유시킬 수 있다.

[0169] 예를 들어, 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료의 유동성 컨트롤이나 백색 안료의 침강 억제의 목적에서, 고체 입자를 유동성 조정제 (E) 로서 함유시킬 수 있다. 유동성 조정제 (E) 로는, 함유시킴으로써 수지 성형체용 재료의 점도가 높아지는 상온으로부터 성형 온도 부근에서 고체 입자이면 특별히 한정되지 않지만, 발광 소자로부터의 광이나 형광체에 의해 파장 변환된 광을 흡수하는 성질이 없거나 매우 작고, 재료의 반사율을 지나치게 저하시키지 않는 것으로, 광이나 열에 의한 변색, 변질이 작고 내구성이 높은 것이 바람직하다. 구체적으로는, 실리카 미립자, 석영 비즈, 유리 비즈, 유리 섬유 등의 무기물 섬유, 질화붕소, 질화알루미늄 등을 들 수 있다. 또, 예를 들어 섬유상 알루미나와 같이, 이하의 특성 (a) 및 (b) 중 어느 일방, 혹은 양방을 만족시키지 않는 백색 안료를 전술한 백색 안료와는 별도로 함유시킬 수 있다.

[0170] (a) 1 차 입자의 애스펙트비가 1.2 이상 4.0 이하인 것

[0171] (b) 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 것

[0172] 그 중에서도 틱소트로피성 부여 효과가 큰 실리카 미립자는, 조성물의 점도나 틱소트로피성을 컨트롤하기 쉬워 바람직하게 사용할 수 있다. 석영 비즈, 유리 비즈, 유리 섬유 등은, 유동성 조정제로서의 효과뿐만 아니라, 재료의 열경화 후의 강도, 인성 (靭性) 을 높이는 효과나 재료의 선팽창 계수를 낮추는 효과도 기대할 수 있기 때문에 바람직하고, 실리카 미립자와 병용하거나 단독으로 사용해도 된다.

[0173] 본 발명에 사용하는 실리카 미립자는 특별히 한정되는 것은 아니지만, BET 법에 의한 비표면적이 통상 50 ㎡/g 이상, 바람직하게는 80 ㎡/g 이상, 더욱 바람직하게는 100 ㎡/g 이상이다. 또, 통상 300 ㎡/g 이하, 바람직하게는 200 ㎡/g 이하이다. 비표면적이 지나치게 작으면 실리카 미립자의 첨가 효과가 관찰되지 않고, 지나치게 크면 수지 중으로의 분산 처리가 곤란해진다. 실리카 미립자는, 예를 들어 친수성 실리카 미립자의 표면에 존재하는 실란올기와 표면 개질제를 반응시킴으로써 표면을 소수화한 것을 사용해도 된다.

[0174] 표면 개질제로는, 알킬실란류의 화합물을 들 수 있으며, 구체예로서 디메틸디클로로실란, 헥사메틸디실라잔, 옥틸실란, 디메틸실리콘오일 등을 들 수 있다.

[0175] 실리카 미립자로는, 예를 들어 퓸드 실리카를 들 수 있다. 퓸드 실리카는, H_2 와 O_2 의 혼합 가스를 연소시킨 1100 ~ 1400 ℃ 의 불꽃으로 $SiCl_4$ 가스를 산화, 가수분해시킴으로써 제작된다. 퓸드 실리카의 1 차 입자는, 평균 입경이 5 ~ 50 ㎚ 정도인 비정질의 이산화규소 (SiO_2) 를 주성분으로 하는 구상의 초미립자로, 이 1 차 입자가 각각 응집되어 입경이 수백 ㎚ 인 2 차 입자를 형성한다. 퓸드 실리카는, 초미립자임과 함께 급랭에 의해 제작되기 때문에, 표면의 구조가 화학적으로 활성인 상태로 되어 있다.

[0176] 구체적으로는, 예를 들어 일본 아에로질 주식회사 제조 「아에로질」(등록상표) 을 들 수 있으며, 친수성 아에로질 (등록상표) 의 예로는, 「90」, 「130」, 「150」, 「200」, 「300」, 소수성 아에로질 (등록상표) 의 예로는, 「R8200」, 「R972」, 「R972V」, 「R972CF」, 「R974」, 「R202」, 「R805」, 「R812」, 「R812S」, 「RY200」, 「RY200S」 「RX200」을 들 수 있다.

[0177] 또, 수지 성형체용 재료의 점도를 조정하기 위해, 액상 증점제로서의 효과를 갖는 폴리오르가노실록산을 (A) 폴리오르가노실록산에 일부 배합할 수 있다. 액상 증점제로는, 25 ℃ 에 있어서의 점도가, 통상 0.001 Pa·s

이상 3 Pa·s 이하, 바람직하게는 0.001 Pa·s 이상 1 Pa·s 이하, 보다 바람직하게는 0.001 Pa·s 이상 0.7 Pa·s 이하이며, 하이드록실가가, 통상 1.0×10^{-2} ~ 7.7×10^{-5} ㏖/g, 바람직하게는 1.0×10^{-2} ~ 9.5×10^{-5} ㏖/g, 보다 바람직하게는 1.0×10^{-2} ~ 10.3×10^{-5} ㏖/g 이며, 1 분자 중에 적어도 1 개의 규소 원자에 결합된 하이드록실기 (즉, 실란올기) 를 함유하는 직사슬상 오르가노폴리실록산을 배합할 수 있다.

[0178] 이 액상 증점제로서의 하이드록실기 함유 직사슬상 오르가노폴리실록산은, 분자 중에 알케닐기 및/또는 SiH 기 등의 하이드로실릴화 부가 반응에 관여하는 관능성기를 함유하지 않는 것으로, 분자 중의 하이드록실기는 분자 사슬 말단의 규소 원자에 결합된 것이거나, 분자 사슬 비말단 (분자 사슬 도중) 의 규소 원자에 결합된 것이거나, 이들의 양방에 결합된 것이어도 되지만, 바람직하게는 분자 사슬 양 말단의 규소 원자에 결합된 하이드록실기를 함유하는 직사슬상 오르가노폴리실록산 (즉, α,ω-디하이드록시디오르가노폴리실록산) 인 것이 바람직하다.

[0179] 이 규소 원자에 결합된 유기기로는 메틸, 에틸, 프로필 등의 알킬기나 페닐기 등의 알릴기 등의 원자가 1 가 탄화수소기를 들 수 있으며, 그 오르가노폴리실록산의 주사슬을 구성하는 디오르가노실록산 반복 단위로는 디메틸실록산 단위, 디페닐실록산 단위, 메틸페닐실록산 단위 등의 1 종 또는 2 종 이상의 조합인 것이 바람직하다.

구체적으로는, α,ω-디하이드록시디메틸폴리실록산, α,ω-디하이드록시디페닐폴리실록산, α,ω-디하이드록시메틸페닐폴리실록산, α,ω-디하이드록시(디메틸실록산·디페닐실록산) 공중합체, α,ω-디하이드록시(디메틸실록산·메틸페닐실록산) 공중합체 등을 들 수 있다.

[0180] 액상 증점제로서의 폴리오르가노실록산의 배합량은 (A) 폴리오르가노실록산 전체를 100 중량부로 했을 때, 통상 0 ~ 10 중량부, 바람직하게는 0.1 ~ 5 중량부, 보다 바람직하게는 0.5 ~ 3 중량부 정도로 할 수 있다.

[0181] 또, 재료의 열경화 후의 강도, 인성을 높일 목적에서, 유리 섬유 등의 무기물 섬유를 함유시켜도 되고, 또 열전도성을 높이기 위해 열전도율이 높은 질화붕소, 질화알루미늄, 섬유상 알루미나 등을 전술한 백색 안료와는 별도로 함유시킬 수 있다. 그 외에 경화물의 선팽창 계수를 낮출 목적에서, 석영 비즈, 유리 비즈 등을 함유시킬 수 있다.

[0182] 이들을 첨가하는 경우의 함유량은, 지나치게 적으면 목적으로 하는 효과가 얻어지지 않고, 지나치게 많으면 반도체 장치용 수지 성형체용 재료의 점도가 올라가 가공성에 영향을 미치므로, 충분한 효과가 발현되고, 재료의 가공성을 저해하지 않는 범위에서 적절히 선택할 수 있다. 통상, 폴리오르가노실록산 100 중량부에 대하여 500 중량부 이하, 바람직하게는 200 중량부 이하이다.

[0183] 또, 상기 수지 성형체용 재료 중에는, 그 외에 이온 마이그레이션 (일렉트로 케미컬 마이그레이션) 방지제, 노화 방지제, 라디칼 금지제, 자외선 흡수제, 접착성 개량제, 난연제, 계면활성제, 보존 안정 개량제, 오존 열화 방지제, 광 안정제, 증점제, 가소제, 커플링제, 산화 방지제, 열안정제, 도전성 부여제, 대전 방지제, 방사선 차단제, 핵제, 인계 과산화물 분해제, 활제, 안료, 금속 불활성화제, 물성 조정제 등을 본 발명의 목적 및 효과를 저해하지 않는 범위에서 함유시킬 수 있다.

[0184] 또한, 커플링제로는 예를 들어 실란 커플링제를 들 수 있다. 실란 커플링제로는, 분자 중에 유기기와 반응성이 있는 관능기와 가수분해성의 규소기를 각각 적어도 1 개 갖는 화합물이면 특별히 한정되지 않는다. 유기기와 반응성이 있는 기로는, 취급성면에서 에폭시기, 메타크릴기, 아크릴기, 이소시아네이트기, 이소시아누레이트기, 비닐기, 카르바메이트기에서 선택되는 적어도 1 개의 관능기가 바람직하고, 경화성 및 접착성면에서 에폭시기, 메타크릴기, 아크릴기가 특히 바람직하다. 가수분해성의 규소기로는 취급성면에서 알콕시실릴기가 바람직하고, 반응성면에서 메톡시실릴기, 에톡시실릴기가 특히 바람직하다.

[0185] 바람직한 실란 커플링제로는, 3-글리시독시프로필트리메톡시실란, 3-글리시독시프로필트리에톡시실란, 2-(3,4-에폭시시클로헥실)에틸트리메톡시실란, 2-(3,4-에폭시시클로헥실)에틸트리에톡시실란 등의 에폭시 관능기를 갖는 알콕시실란류 ; 3-메타크릴록시프로필트리메톡시실란, 3-메타크릴록시프로필트리에톡시실란, 3-아크릴록시프로필트리메톡시실란, 3-아크릴록시프로필트리에톡시실란, 메타크릴록시메틸트리메톡시실란, 메타크릴록시메틸트리에톡시실란, 아크릴록시메틸트리메톡시실란, 아크릴록시메틸트리에톡시실란 등의 메타크릴기 혹은 아크릴기를 갖는 알콕시실란류를 예시할 수 있다.

[0186] 상기 (A) 내지 (E) 성분의, 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료 중의 바람직한 함유량은 이하와 같다.

[0187] 본 발명의 수지 성형체용 재료 중에 있어서의 (A) 폴리오르가노실록산의 함유량은, 통상 수지 성형체용 재료로

서 사용할 수 있는 범위이면 한정되지 않지만, 통상 재료 전체의 15 중량% 이상, 50 중량% 이하이며, 바람직하게는 20 중량% 이상, 40 중량% 이하이고, 보다 바람직하게는 25 중량% 이상, 35 중량% 이하이다. 또한, 재료 중에 함유되는 (D) 경화 속도 제어제나 기타 성분인 액상 증점제가 폴리오르가노실록산인 경우는 상기 (A) 의 함유량에 포함되는 것으로 한다.

[0188] 본 발명의 수지 성형체용 재료 중에 있어서의 (B) 백색 안료의 함유량은, 통상 수지 성형체용 재료로서 사용할 수 있는 범위이면 한정되지 않지만, 통상 재료 전체의 30 중량% 이상, 85 중량% 이하이며, 바람직하게는 40 중량% 이상 80 중량% 이하이고, 보다 바람직하게는 45 중량% 이상, 70 중량% 이하이다.

[0189] 본 발명의 수지 성형체용 재료 중에 있어서의 (E) 유동성 조정제의 함유량은, 본 발명의 효과를 저해하지 않는 범위이면 한정되지 않지만, 통상 재료 전체의 55 중량% 이하이며, 바람직하게는 2 중량% 이상 50 중량% 이하이고, 보다 바람직하게는 5 중량% 이상, 45 중량% 이하이다.

[0190] 또, 수지 성형체용 재료 전체에 대한, (B) 백색 안료 및 (E) 유동성 조정제의 합계량의 비가 50 중량% 이상인 것이 바람직하고, 60 중량% 이상인 것이 보다 바람직하고, 65 중량% 이상인 것이 특히 바람직하고, 또 85 중량% 이하인 것이 바람직하고, 80 중량% 이하인 것이 보다 바람직하다.

[0191] <1-6. 수지 성형체용 재료의 점도>

[0192] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료는, 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10 Pa·s 이상 10,000 Pa·s 이하인 것이 바람직하다. 상기 점도는, 반도체 장치용 수지 성형체를 성형할 때의 성형 효율의 관점에서, 50 Pa·s 이상 5,000 Pa·s 이하인 것이 보다 바람직하고, 100 Pa·s 이상 2,000 Pa·s 이하인 것이 더욱 바람직하고, 150 Pa·s 이상 1,000 Pa·s 이하인 것이 특히 바람직하다.

[0193] 아울러, 후술하는 바와 같이 틱소트로피성의 관점에서, 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료는 25 ℃ 에서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 25 ℃ 에서의 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비 (1 s^{-1}/100 s^{-1}) 가 15 이상인 것이 바람직하고, 20 이상인 것이 보다 바람직하고, 30 이상인 것이 특히 바람직하다. 한편, 상한은 500 이하인 것이 바람직하고, 300 이하인 것이 보다 바람직하다.

[0194] 또, 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료의 점도로는, 특히 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 1,000 Pa·s 이하이며, 또한 25 ℃ 에서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 25 ℃ 에서의 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비 (1 s^{-1}/100 s^{-1}) 가 15 이상인 것이 바람직하다.

[0195] 성형성이 양호한 재료로 하기 위해서는, 재료에 일정 이상의 틱소트로피성을 갖게 하는 것이 필요한데, 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10 Pa·s 이상 10,000 Pa·s 이하이며, 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비가 15 이상인 경우, 버나 쇼트 몰드 (미충전) 의 발생이 적고, 성형시의 재료의 계량 시간이나 성형 사이클을 단축시킬 수 있고, 성형도 안정되기 쉬워 성형 효율이 높은 재료가 된다.

[0196] 특히 액상 수지 재료를 사용한 LIM 성형에서는, 금형의 미소 간극으로부터 재료가 스며나오는 것에서 기인하는 버가 발생하기 쉬워, 버를 제거하는 후처리 공정이 필요하였다. 한편, 버의 발생을 억제하기 위해서 금형의 간극을 작게 하면 쇼트 몰드 (미충전) 가 발생하기 쉬워지는 등의 문제가 있었다. 수지 성형체용 재료의 점도가 상기 범위에 있는 경우, 이러한 문제를 해결할 수 있어 수지 성형체의 LIM 성형을 용이하게, 성형성 양호하게 실시할 수 있다. 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도가 10,000 Pa·s 보다 크면, 수지의 흐름이 나쁘기 때문에 금형으로의 충전이 불충분해지거나, 사출 성형을 실시할 때에 재료 공급에 시간이 걸리기 때문에 성형 사이클이 길어지거나 하여 성형 효율이 저하되는 경향이 있다. 또, 상기 점도가 10 Pa·s 보다 작으면, 금형의 간극으로부터 재료가 새어나와 버가 발생하거나, 금형의 간극으로 사출 압력이 빠져나가기 쉬워지기 때문에 성형이 안정되기 어려워지거나 하여 역시 성형 효율이 저하되는 경향이 있다. 특히 성형체가 작은 경우에는 버를 제거하기 위한 후처리도 곤란해지기 때문에, 버의 발생을 억제하는 것은 성형성에는 중요하다.

[0197] 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도에 대한 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도의 비가 15 미만인 경우, 요컨대 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도가 비교적 작은 경우에는, 성형기나 금형의 간극으로도 재료가 비집고 들어가기 쉬워지거나, 버가 매우 발생하기 쉬워지거나, 노즐부에서 액이 늘어져 처지기 쉬워지거

나, 사출 압력이 재료에 잘 전달되지 않아 성형이 안정되기 어려워지거나 하는 등, 성형의 컨트롤이 어려워지는 경우가 있다. LIM 성형에서는 스프루부의 퍼팅 라인의 수지가 새어나오는 것이 문제가 되기 쉬운데, 본 발명의 점도 범위로 조정하는 것은 수지가 새어나오는 것을 억제하는 효과도 있다.

[0198] 이들 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 100 s^{-1} 에서의 점도와 전단 속도 1 s^{-1} 에서의 점도는, 예를 들어 ARES-G2-변형 제어형 레오미터 (티 · 에이 · 인스트루먼트 · 재팬 주식회사 제조) 를 이용하여 측정할 수 있다.

[0199] 상기 점도를 제어하고, 액상 사출 성형 (LIM 성형) 에 바람직하게 사용할 수 있는 재료로 하기 위해서는 재료에 일정 이상의 틱소트로피성을 갖게 하는 것이 필요하다. 미세 영역 (1 차 입경 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하) 의 미립자를 재료 중에 배합하면 현저한 증점이 일어나 틱소트로피성 부여 효과가 크다. 그 때문에, 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 (B) 백색 안료나, 비표면적이 큰 퓸드 실리카와 같은 미세 영역의 (E) 유동성 조정제를 사용하면, 조성물의 틱소트로피성을 컨트롤하기 쉽다. 구체적으로는, 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 이상 2.0 ㎛ 이하인 (B) 백색 안료를 30 중량% 이상 함유시키는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 (B) 백색 안료와 퓸드 실리카나 석영 비즈와 같은 백색 안료 이외의 (E) 유동성 조정제를 조합 합계로 50 ~ 85 중량% 함유시킴으로써, 재료의 점도를 상기 범위로 제어할 수 있다.

[0200] 2 차 입자의 중심 입경이 2 ㎛ 보다 큰 백색 안료를 사용하는 경우, 특히 중심 입경이 5 ㎛ 이상인 것을 사용하는 경우에는, 틱소트로피성 부여 효과가 큰 미세 영역의 유동성 조정제를 병용하는 것이 바람직하지만, (B) 백색 안료 자체의 1 차 입경이 충분히 작은 경우에는, 유동성 조정제와 병용하지 않고 백색 안료만으로도 사용할 수 있으며, 또한 중심 입경이 비교적 큰 수 ㎛ 정도 이상의 유동성 조정제와 조합해도 된다.

[0201] <1-7. 수지 성형체용 재료의 열전도율>

[0202] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료는, 경화시의 열전도율이 0.4 이상 3.0 이하인 것이 바람직하고, 0.6 이상 2.0 이하인 것이 보다 바람직하다. 경화시의 열전도율은, 예를 들어 아이페이즈 · 모바일 (아이페이즈사 제조) 을 이용하여 측정할 수 있다.

[0203] 여기서 경화시란, 180 ℃ 에서 4 분간 열경화시켰을 때를 가리킨다.

[0204] 반도체 발광 장치에 있어서는, 반도체 발광 소자로부터 발하여지는 광에 의해 발열이 생기고, 특히 그 소자의 출력이 큰 경우에는 발열량이 보다 커진다. 이 경우, 발열에 의해 수지 성형체에 인접하는 형광체층의 열화가 생겨, 그 장치의 내구성을 저하시켜 버린다.

[0205] 이러한 문제에 대하여, 본 발명자들은 경화시의, 즉 성형에 의해 수지 성형체로 했을 때의 열전도율이 상기 범위임으로써, 수지 성형체 및 그것을 이용하여 구성한 반도체 발광 장치에 있어서 반도체 발광 소자로부터 발하여지는 광에 의한 발열에 대한 방열성이 향상되기 때문에, 그 장치의 내구성이 향상되는 것을 알아냈다.

[0206] 상기 열전도율이 0.4 보다 작으면, 그 장치에 있어서 반도체 발광 소자로부터 발하여지는 광에 의한 발열에 의해 그 장치에 포함되는 형광체층이 열 열화되는 경향이 있다.

[0207] 상기 열전도율은, 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료에 함유시키는 (B) 백색 안료로서 알루미나나 질화붕소를 사용함으로써 상기 범위로 제어할 수 있다.

[0208] <1-8. 수지 성형체의 반사율>

[0209] 또, 본 발명의 수지 성형체용 재료를 사용한 수지 성형체는, 가시광에 대하여 고반사율을 유지할 수 있는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 460 ㎚ 의 광의 반사율이 80 % 이상인 것이 바람직하고, 90 % 이상인 것이 보다 바람직하다. 또, 파장 400 ㎚ 의 광의 반사율이 60 % 이상인 것이 바람직하고, 80 % 이상인 것이 보다 바람직하고, 90 % 이상인 것이 더욱 바람직하다.

[0210] 여기서, 수지 성형체의 반사율은, 본 발명의 수지 성형체용 재료를 열경화시켜, 두께 0.4 ㎜ 로 성형한 성형체를 측정한 경우의 반사율을 가리킨다. 상기 열경화는, 예를 들어 10 ㎏/㎠ 의 압력하, 180 ℃ 에서 4 분간, 경화시킴으로써 실시할 수 있다.

[0211] 수지 성형체의 반사율은, 수지의 종류 (예를 들어, 수지의 굴절률을 바꿈으로써 반사율을 제어할 수 있다) 나 필러의 종류, 필러의 입경이나 함유량 등에 의해 제어할 수 있다.

[0212] <2. 반도체 발광 장치용 수지 성형체의 성형 방법>

[0213] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체의 성형 방법으로서 압축 성형법, 트랜스퍼 성형법, 및 사출 성형법

을 예시할 수 있다. 이들 중 바람직한 성형 방법으로는, 쓸데없는 경화물이 발생되지 않아 2 차 가공이 불필요한 (즉 버가 잘 발생하지 않는) 점에서, 수지 성형체의 성형 공정의 자동화, 성형 사이클의 단축화, 성형품의 비용 삭감이 가능해지는 등 큰 장점이 있는 사출 성형법, 특히 액상 사출 성형법 (LIM 성형) 을 들 수 있다.

LIM 성형과 트랜스퍼 성형을 비교하면, LIM 성형은, 성형 형상의 자유도가 높고, 성형기 및 금형이 비교적 저렴하다는 장점이 있다.

[0214] 사출 성형법에서는 사출 성형기를 이용하여 실시할 수 있다. 실린더 설정 온도는 재료에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 100 ℃ 이하, 바람직하게는 80 ℃ 이하, 더욱 바람직하게는 60 ℃ 이하이다. 금형 온도는 80 ℃ 이상, 300 ℃ 이하, 바람직하게는 100 ℃ 이상, 250 ℃ 이하, 더욱 바람직하게는 120 ℃ 이상, 200 ℃ 이하이다. 사출 시간은 재료에 따라 바뀌는데, 통상 수 초 혹은 1 초 이하이다. 성형 시간은 재료의 겔화 속도나 경화 속도에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 3 초 이상, 600 초 이하, 바람직하게는 5 초 이상, 200 초 이하, 더욱 바람직하게는 10 초 이상, 60 초 이하이다.

[0215] 액상 사출 성형 (LIM 성형) 으로 수지를 성형할 때는, 차가워진 수지를 뜨거운 금형에 보내어 화학 반응을 수반하여 점도를 올려 가기 때문에, 통상은 점도 상승이 불충분한 상태로 금형에 도달한다. 즉, 온도 조건에 대한 점도 상승에 지연이 발생하기 때문에, 수지의 점도 제어와 더불어 금형 사이나 리드 프레임과 금형의 간극의 정밀도가 높을 것도 요구된다. 수지가 금형에 도달할 때의 점도 상승이 불충분한 경우에는, 수지가 금형의 간극이나 리드 프레임과 금형의 간극으로부터 새어나오는 경우가 있어 버가 발생하기 쉽다. 통상은 10 ㎛ 이하, 바람직하게는 5 ㎛ 이하, 더욱 바람직하게는 3 ㎛ 이하의 금형 간극 정밀도가 요구된다. 금형에 넣기 전에 리드 프레임을 예열하는 것도 리드에 따른 버의 발생을 억제하는 데에 효과가 있다.

[0216] 또, 수지의 성형시, 금형을 진공 분위기하에 둠으로써, 좁은 공간으로의 재료의 침투가 촉진되어 성형품 내에에어 보이드의 발생을 방지할 수 있다.

[0217] 액상 사출 성형 (LIM 성형) 에 있어서의 경화 시간에 대해서는, 경화도를 그래프로 나타냈을 때, 그래프의 형태가 S 자로 상승하면 된다. 초기 경화의 상승이 지나치게 빠르면 금형으로의 미충전이 발생하는 경우가 있다. 버의 발생을 억제하고, 또한 금형으로의 미충전을 방지하려면, 재료의 경화 속도의 컨트롤과 점도 조정이 매우 중요하다. 금형에 수지 재료가 충전된 후에는, 성형 사이클을 단축시킬 수 있고, 경화 수축에 의해 이형성이 상승되므로, 경화는 빠를수록 좋다.

[0218] 경화 종료까지의 시간은 통상 60 초 이내, 바람직하게는 30 초 이내, 더욱 바람직하게는 10 초 이내이다. 필요에 따라 포스트큐어를 실시해도 된다. 경화 속도는 백금 촉매종의 선택, 촉매량, 경화 속도 제어제의 사용, 폴리오르가노실록산의 가교도 외에, 금형 온도, 충전 속도, 사출 압력 등의 성형 조건에 따라 조절할 수도 있다.

[0219] 압축 성형법에서는 컴프레션 성형기를 이용하여 실시할 수 있다. 성형 온도는 재료에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 80 ℃ 이상, 300 ℃ 이하, 바람직하게는 100 ℃ 이상, 250 ℃ 이하, 더욱 바람직하게는 120 ℃ 이상, 200 ℃ 이하이다. 성형 시간은 재료의 경화 속도에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 3 초 이상, 1200 초 이하, 바람직하게는 5 초 이상, 900 초 이하, 더욱 바람직하게는 10 초 이상, 600 초 이하이다.

[0220] 트랜스퍼 성형법에서는 트랜스퍼 성형기를 이용하여 실시할 수 있다. 성형 온도는 재료에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 80 ℃ 이상, 300 ℃ 이하, 바람직하게는 100 ℃ 이상, 250 ℃ 이하, 더욱 바람직하게는 120 ℃ 이상, 200 ℃ 이하이다. 성형 시간은 재료의 겔화 속도나 경화 속도에 따라 적절히 선택하면 되는데, 통상 3 초 이상, 1200 초 이하, 바람직하게는 5 초 이상, 900 초 이하, 더욱 바람직하게는 10 초 이상, 600 초 이하이다.

[0221] 어느 성형법에서도 필요에 따라 후경화를 실시할 수 있으며, 후경화 온도는 100 ℃ 이상, 300 ℃ 이하, 바람직하게는 150 ℃ 이상, 250 ℃ 이하, 더욱 바람직하게는 170 ℃ 이상, 200 ℃ 이하이다. 후경화 시간은 통상 3 분간 이상, 24 시간 이하, 바람직하게는 5 분 이상, 10 시간 이하, 더욱 바람직하게는 10 분간 이상, 5 시간 이하이다.

[0222] <3. 반도체 발광 장치 패키지, 및 반도체 발광 장치>

[0223] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체는, 통상 반도체 발광 소자를 탑재하여 반도체 발광 장치로서 사용된다. 반도체 발광 장치는, 예를 들어 도 1 에 나타내는 바와 같이, 반도체 발광 소자 (1), 수지 성형체 (2), 본딩 와이어 (3), 봉지재 (4), 리드 프레임 (5) 등으로 구성된다. 이 경우, 리드 프레임 (5) 등의 도전성

재료와 절연성 수지 성형체로 이루어지는 것을 패키지라고 칭한다.

[0224] 반도체 발광 소자 (1) 는, 근자외 영역의 파장을 갖는 광을 발하는 근자외 반도체 발광 소자, 보라색 영역의 파장의 광을 발하는 보라색 반도체 발광 소자, 청색 영역의 파장의 광을 발하는 청색 반도체 발광 소자 등을 사용할 수 있으며, 350 ㎚ 이상 520 ㎚ 이하의 파장을 갖는 광을 발한다. 도 1 에 있어서는 반도체 발광 소자가 1 개만 탑재되어 있지만, 후술하는 도 2 와 같이 복수 개의 반도체 발광 소자를 선상으로 혹은 평면상으로 배치할 수도 있다. 반도체 발광 소자 (1) 를 평면상으로 배치함으로써 면 조명으로 할 수 있고, 이와 같은 실시 형태는 보다 출력을 강하게 하고자 하는 경우에 바람직하다.

[0225] 패키지를 구성하는 수지 성형체 (2) 는, 리드 프레임 (5) 과 함께 성형된다. 패키지의 형상은 특별 한정되지 않으며, 평면형이거나 컵형이어도 된다. 수지 성형체 (2) 는, 그 전부가 본 발명의 수지 성형체 재료로 이루어지는 것이어도 되고, 그 일부가 본 발명의 수지 성형체 재료로 이루어지는 것이어도 된다. 수지 성형체 (2) 의 일부가 본 발명의 수지 성형체 재료로 이루어지는 것인 경우의 구체예로는, 후술하는 도 2 와 같이, 리플렉터부 (102) 의 수지 성형체를 본 발명의 수지 성형체 재료로 성형하는 양태를 들 수 있다.

[0226] 리드 프레임 (5) 은 도전성 금속으로 이루어지고, 반도체 발광 장치 밖으로부터 전원을 공급하여 반도체 발광 소자 (1) 에 통전하는 역할을 한다.

[0227] 본딩 와이어 (3) 는, 반도체 발광 소자 (1) 를 패키지에 고정시키는 역할을 갖는다. 또, 반도체 발광 소자 (1) 가 전극이 되는 리드 프레임과 접촉하고 있지 않는 경우에는, 도전성 본딩 와이어 (3) 가 반도체 발광 소자 (1) 로의 전원 공급의 역할을 담당한다. 본딩 와이어 (3) 는, 리드 프레임 (5) 에 압착하여 열 및 초음파의 진동을 부여함으로써 접착시킨다.

[0228] 본 발명의 수지 성형체용 재료로 이루어지는 수지 성형체 (2) 는, 리드 프레임 (5) 의 노출 면적을 매우 작게 할 수 있다. 본 발명의 수지 성형체 재료를 성형한 수지 성형체는, 리드 프레임의 재료 (예를 들어 은 등) 와 반사율이 동등 내지는 높은 경향이 있기 때문에, 수지 성형체의 노출 면적을 크게 해도 패키지의 높은 반사율을 유지할 수 있다. 그 때문에, 본 발명의 수지 성형체용 재료로 이루어지는 패키지를 사용함으로써, 종래형 패키지와는 상이한 구성의 반도체 발광 장치를 얻을 수도 있다. 예를 들어, 도 3 에는 종래형 패키지를 구비한 반도체 발광 장치 (200) 를 나타낸다. 도 3 의 반도체 발광 장치는, 리드 프레임 (204) 의 노출 면적이 크다. 이것은, 수지 성형체 (201) 의 반사율이 리드 프레임 (204) 과 비교하여 낮기 때문에, 반도체 발광 장치가 고휘도를 실현시키기 위해서는, 반사율이 높은 재료를 이용하고 있는 리드 프레임 (204) 의 표면적을 크게 할 필요가 있었다. 이와 같은 리드 프레임 (204) 의 노출 면적이 큰 경우에는, 패키지를 발광 장치에 구비하여 사용한 경우에 리드 프레임의 변색이 발생하여 발광 효율이 저하되는 경우가 있는데, 도 1 과 같이, 리드 프레임 (5) 의 노출 면적을 작게 함으로써, 이러한 리드 프레임의 변색에서 기인하는 발광 효율의 저하를 방지할 수 있다.

[0229] 패키지를 구성하는 수지 성형체 (2) 는, 반도체 발광 소자 (1) 가 탑재되고, 형광체를 혼합한 봉지재 (4) 에 의해 봉지되어 있다. 봉지재 (4) 는 바인더 수지에 형광체를 혼합한 혼합물이며, 형광체는 반도체 발광 소자 (1) 로부터의 여기광을 변환시켜 여기광과 파장이 상이한 형광을 발한다. 본 실시 형태에 있어서는, 봉지재가 형광체층의 역할을 겸하고 있다. 봉지재 (4) 에 함유되는 형광체는, 반도체 발광 소자 (1) 의 여기광의 파장에 따라 적절히 선택된다. 백색 광을 발하는 반도체 발광 장치 (백색 LED) 에 있어서, 청색 광을 발하는 반도체 발광 소자를 여기 광원으로 하는 경우에는, 녹색 및 적색의 형광체를 형광체층에 함유시킴으로써 백색 광을 생성할 수 있다. 보라색 광을 발하는 반도체 발광 소자의 경우에는, 청색 및 황색의 형광체를 형광체층에 함유시키거나, 또는 청색, 녹색 및 적색의 형광체를 형광체층에 함유시킴으로써 백색 광을 생성할 수 있다.

[0230] 봉지재 (4) 에 함유되는 바인더 수지는, 통상 봉지재에 사용되는 것으로 알려져 있는 투광성 수지를 적절히 선택하면 된다. 구체적으로는 에폭시 수지, 실리콘 수지, 아크릴 수지, 폴리카보네이트 수지 등을 들 수 있고, 실리콘 수지를 사용하는 것이 바람직하다.

[0231] 본 발명의 반도체 발광 장치의 다른 양태를 도 2 를 이용하여 설명한다.

[0232] 본 실시 형태의 반도체 발광 장치 (1C) 는, 창부를 갖는 케이싱 (101), 리플렉터부 (102), 광원부 (103), 히트싱크 (104) 로 구성되어 있다. 광원부 (103) 는 배선 기판 위에 발광부 (105) 를 구비하고 있고, 배선 기판 (106) 에 직접 반도체 발광 소자가 실장된 COB (Chip on Board) 형식, 도 1 과 같은 반도체 발광 장치가 표면 실장된 형식 중 어느 것이어도 된다. 광원부 (103) 가 COB 형식인 경우는, 반도체 발광 소자는 돔상 또는

평판상으로 성형된 봉지 수지에 의해 프레임재를 사용하지 않고 봉지되어 있어도 된다. 또, 배선 기판 (106) 위에 실장되는 반도체 발광 소자는 1 개이거나 복수 개여도 된다. 리플렉터부 (102) 및 히트 싱크 (104) 는 케이싱 (101) 과 일체형이거나 별도형이어도 되며, 필요에 따라 사용할 수 있다. 방열의 관점에서 광원부 (103), 케이싱 (101), 히트 싱크 (104) 는 일체 구조 혹은 고열전도성 시트나 그리스 등을 개재시켜 간극없이 접해 있는 것이 바람직하다. 창부 (107) 는 공지된 투명 수지나 광학 유리 등을 사용할 수 있으며, 평판상이거나 곡면을 가지고 있어도 된다.

[0233] 형광체부를 형성하여 백색 LED 로 하는 경우에는 형광체부를 광원부 (103) 에 형성해도 되고 창부 (107) 에 형성해도 되는데, 창부 (107) 에 형성하면 발광 소자로부터 떨어진 위치에 형광체를 배치할 수 있고, 열이나 광에 의해 열화되기 쉬운 형광체의 열화를 억제하여, 장기에 걸쳐 균일하고 고휘도인 백색 광을 얻을 수 있는 장점이 있다.

[0234] 창부 (107) 에 형광체층을 형성하는 경우에는, 투명한 창재 위 (도시 생략) 에 형광체층을 스크린 인쇄나 다이 코팅, 스프레이 도포 등의 방법으로 제조할 수 있다. 이와 같은 양태의 경우, 반도체 발광 소자와 형광체층이 거리를 두고 배치되어 있기 때문에, 형광체층이 반도체 발광 소자로부터의 광의 에너지에 의해 열화되는 것을 방지할 수 있고, 또 발광 장치의 출력도 향상시킬 수 있다. 반도체 발광 소자와 창부 (107) 의 형광체층의 거리는 5 ~ 50 ㎜ 인 것이 바람직하다. 도 2 에 있어서의 형광체층은, 형광의 자기 재흡수와 RGB 각 색 형광체 사이의 재흡수를 저감시키기 위해, 사용하는 형광체 각 색마다 분리하여 도포한 다층 구조로 하거나, 스트라이프상, 혹은 도트상 등의 패턴을 형성하거나 해도 된다.

[0235] 상기 반도체 발광 장치 (1C) 의 각 부분의 형상은 도면에 나타내는 것에 한정되지 않으며, 곡면부를 가지고 있거나 필요에 따라 조광 장치나 회로 보호 장치 등 부속 장치가 달려 있어도 된다.

[0236] 이상 설명한 본 발명의 반도체 발광 장치에 있어서, 본 발명에 관련된 수지 성형체 (이하, 간단히 「광학 부재」라고 칭한다) 를 적용하는 지점은, 이미 설명한 바와 같이 특별히 제한되지 않는다. 예를 들어 도 2 에서 나타내는 반도체 발광 장치 (1C) 에 있어서는, 케이싱 (101), 리플렉터부 (102), 광원부 (103), 발광부 (105), 배선 기판 (106) 의 각 부재에 사용할 수 있다. 본 발명에 관련된 수지 성형체는 자외 ~ 가시광의 반사율이 높고 내열성, 내광성이 우수하기 때문에, 필요한 반도체 발광 소자의 개수를 억제하여 저렴하고 고휘도, 고내구인 조명 장치를 제공할 수 있다. 특히 본 발명의 수지 성형체는 자외 ~ 청색 광의 반사율이 높음으로써 형광체에 의해 파장 변환되기 전의 반도체 발광 소자로부터 발하여지는 광을 유효하게 반사시킬 수 있게 되어, 형광체층을 광원부로부터 떨어진 위치에 설치하는 실시양태에 적합하다. 반도체 발광 소자의 발광색이 자외 ~ 근자외인 경우에는 반사재 필러는 알루미나를 주성분으로 하는 것이 바람직하고, 청색인 경우에는 알루미나 및/또는 티타니아를 주성분으로 하는 것이 바람직하다.

[0237] 본 발명의 반도체 발광 장치용 수지 성형체용 재료를 이용하여 형성된 반도체 발광 장치용 수지 성형체는, 바람직한 것으로서 이하의 특징을 갖는다.

[0238] <3-1. 반도체 발광 장치 패키지의 반사율>

[0239] 본 발명의 반도체 발광 장치 패키지는, 가시광뿐만 아니라 보라색보다 짧은 파장의 근자외광, 자외광에 대해서도 고반사율을 유지할 수 있는 것이 특징이다. 파장 360, 400 및 460 ㎚ 의 광의 반사율이, 각각 통상 60 % 이상, 바람직하게는 80 % 이상, 더욱 바람직하게는 90 % 이상이다. 자외광 영역에서 가시광 영역까지 고반사율을 갖는 본 발명의 수지 성형체를 구비한 반도체 발광 장치 패키지는, 종래의 반도체 발광 장치 패키지에서 관찰되지 않는 매우 우수한 특성을 갖는다. 특히 폴리실록산 등의 수지제 반도체 발광 장치 패키지에 있어서는, 지금까지 당업자가 용이하게 상도 (想到) 할 수 없었던 특성으로, 기술적 의의가 매우 높다.

[0240] <3-2. 반도체 발광 장치 패키지의 두께>

[0241] 본 발명의 반도체 발광 장치 패키지는, 통상적으로 칩 장착면과 상기 칩 장착면과 반대측에 저면을 갖는다. 이 경우, 상기 칩 장착면과 저면 사이의 거리, 즉 반도체 발광 장치 패키지의 두께는, 통상 100 ㎛ 이상, 바람직하게는 200 ㎛ 이상이다. 또, 통상 3000 ㎛ 이하이며 바람직하게는 2000 ㎛ 이하이다. 두께가 지나치게 얇으면 저면에 광이 투과되어 반사율이 저하되고, 패키지의 강도가 불충분하여 취급상 변형되는 등의 문제가 생길 우려가 있으며, 지나치게 두꺼우면 패키지 자체도 두껍고 부피가 커지기 때문에, 반도체 발광 장치의 적용 용도가 한정된다.

[0242] 실시예

[0243] 이하에 실시예를 들어 본 발명을 더욱 상세하게 설명하는데, 본 발명은 이들 실시예에 의해 조금도 한정되는 것은 아니다.

[0244] <실시예 1>

[0245] [폴리오르가노실록산 (1) 의 합성]

[0246] 비닐기 함유 폴리디메틸실록산 (비닐기 : 1.2 mmol/g 함유, 실리카 미립자를 첨가하여 점도를 1000 mPa·s 로 조정한 것. 또, 백금 착물 촉매 6.8 ppm 을 함유) 과 하이드로실릴기 함유 폴리디메틸실록산 (비닐기 : 0.3 mmol/g 함유, 하이드로실릴기 : 1.8 mmol/g 함유, 실리카 미립자를 첨가하여 점도를 2100 mPa·s 로 조정한 것) 을 1 : 1 로 혼합하여, 점도 1500 mPa·s, 백금 농도 3.4 ppm 의 액상 열경화성 폴리오르가노실록산 (1) 을 얻었다.

[0247] 또한, 실리카 미립자는 (E) 유동성 조정제에 상당하고, 상기 점도가 되도록 폴리오르가노실록산 : 실리카 미립자 (중량비) 가, 80 : 20 내지 89.5 : 10.5 가 되도록 첨가하였다.

[0248] [폴리오르가노실록산 (2) 의 합성]

[0249] 비닐기 함유 폴리디메틸실록산 (비닐기 : 0.3 mmol/g 함유, 점도 3500 mPa·s. 백금 착물 촉매 8 ppm 함유) 과, 하이드로실릴기 함유 폴리디메틸실록산 (비닐기 : 0.1 mmol/g 함유, 하이드로실릴기 : 4.6 mmol/g 함유, 점도 600 mPa·s) 과, 경화 지연 성분 ((D) 경화 속도 제어제) 함유 폴리디메틸실록산 (비닐기 : 0.2 mmol/g 함유, 하이드로실릴기 : 0.1 mmol/g 함유, 알키닐기 : 0.2 mmol/g 함유, 500 mPa·s) 을 100 : 10 : 5 로 혼합하여, 백금 농도 7 ppm 의 액상 열경화성 폴리오르가노실록산 (2) 을 얻었다.

[0250] 또한, 이 액상 열경화성 폴리오르가노실록산 (2) 의 굴절률은 1.41 이었다.

[0251] [수지 성형체용 재료의 조제, 시험편의 제작]

[0252] (A) 상기에서 얻어진 액상 열경화성 폴리오르가노실록산 (1), (B) 백색 안료 (뒤에 게재하는 표 1 참조), (E) 유동성 조정제로서 실리카 미립자 「AEROSIL RX200」(비표면적 140 ㎡/g) 을 표 2 에 나타내는 중량비로 배합하고, 교반에 의해 백색 안료와 실리카 미립자를 상기 (1) 에 분산시켜 백색의 수지 성형체용 재료를 얻었다. 이들 재료를 열프레스기로 180 ℃, 10 kg/㎠, 경화 시간 240 초의 조건으로 경화시켜 직경 13 ㎜ 의 원형 시험편 (테스트 피스) 을 얻었다. 또한, 각 시험편의 두께는 표 2 에 기재된 바와 같다.

[0253] [백색 안료의 1 차 입자경, 및 1 차 입자의 애스펙트비의 측정]

[0254] 실시예에서 사용한 백색 안료 (알루미나 분체) 의 SEM 관찰에 의해 1 차 입자경을 계측하였다. 입자경에 편차가 있는 경우에는, 여러 점 (예를 들어 10 점) 을 SEM 관찰하고, 그 평균치를 입자경으로서 구하였다. 특히 편차가 크고, 예를 들어 극미량 함유되는 미소 입자나 조대 입자를 제외하고, 소입경과 대입경의 차이가 5 배 정도 이상인 경우에는, 그 최대치 및 최소치를 기록하였다. 또, 장축 길이 (최대 장경) 와 단축 길이 (장경에 수직 방향에서 가장 긴 부분의 길이) 도 계측하여, 1 차 입자경에 대해서는 장축의 길이를 채용하고, 장축 길이 (최대 장경) 를 단축 길이 (장경에 수직 방향에서 가장 긴 부분의 길이) 로 나눈 값을 애스펙트비로 하였다. 결과를 표 1 에 나타낸다.

[0255] [백색 안료의 2 차 입자의 중심 입경 D_{50} 의 측정]

[0256] 10 ~ 20 ㎎ 의 백색 안료 (알루미나 분체) 에 0.2 % 의 폴리인산나트륨 수용액 10 g 을 첨가하여, 초음파 진동으로 알루미나를 분산시켰다. 이 분산액을 이용하여 백색 안료의 2 차 입자의 체적 기준의 중심 입경 D_{50} 을 닛키소 주식회사 제조 마이크로 트럭 MT3000II 로 측정하였다. 또한, 중심 입경 D_{50} 은, 적산% 의 체적 기준 입도 분포 곡선이 50 % 인 횡축과 교차하는 포인트의 입자경을 가리킨다. 결과를 표 1 에 나타낸다.

[0257] [백색 안료의 결정자 사이즈의 측정]

[0258] PANalytical 사 제조 X′Pert Pro MPD 로 알루미나 분체의 X 선 회절 측정을 실시하여 결정계를 구하였다. 또한, α-알루미나에 대해서는 (113) 결정자 사이즈를 Scherrer 의 식에 의해 산출하였다.

[0259] <실시예 2 ~ 9 및 비교예 1 ~ 7>

[0260] 백색 안료로서 표 2 에 기재된 것을 이용하고, (A) 액상 열경화성 폴리오르가노실록산 (1) 또는 (2), (B) 백색 안료, (E) 유동성 조정제로서 실리카 미립자 「AEROSIL RX200」의 배합을 표 2 에 나타내는 중량비로 배합한 것

이외에는, 실시예 1 과 동일한 조건으로 표 2 에 기재된 두께의 시험편을 얻었다.

[0261] 또한, 표 2 에 있어서 백색 안료 A ~ J 는 표 1 에 기재된 것이다.

표 1

백색 안료	종류	형상	1차 입자경 x(μm)	2차 입자의 중심 입경	y/x	애스펙트비	결정계	113 결정자 사이즈(Å)	순도
A	알루미나	파쇄상	0.3	1.2	4	1.48	α	1020	99.1
B	알루미나	파쇄상	0.2~1	1.4	1.4~7	1.63	α	1010	99.4
C	알루미나	파쇄상	0.3	0.49	1.6	1.59	α	650	99.6
D	알루미나	파쇄상	0.014	0.4	28.6	—	γ	-	>99.99
E	알루미나	파쇄상	3~5	3.6	1	1.58	α	1260	99.9
F	알루미나	구상	0.1~0.8	0.46	1	1.08	비 α	-	>99.8
G	알루미나	구상	3	3	1	1.04	비 α	-	>99.0
H	알루미나	파쇄상	3.2	5.8	1.8	—	α	-	99.5
I	티타니아	파쇄상	0.28	-	-	1.45	루틸	-	90
J	티타니아	파쇄상	0.03~0.05	-	-	-	루틸	-	93~98

[0262]

[0263] 백색 안료 I 의 티타니아는 표면에 실리카와 알루미나의 박막 코트가 실시된 것이다.

[0264] 또한, 표 중에서 「-」은 미측정인 것을 나타낸다.

표 2

	수지 (폴리오르가노실록산)	백색 안료	유동성 조정제	배합비 : 수지/백색 안료/실리카 미립자(단, 실리카 미립자의 수치는 수지 중에 포함되는 것을 제외한 수치)
실시예1	(1)	C	실리카 미립자	40/60/0
실시예2	(1)	A	실리카 미립자	40/60/0
실시예3	(1)	A	실리카 미립자	35/60/5
실시예4	(1)	B	실리카 미립자	40/60/0
실시예5	(1)	B	실리카 미립자	25/70/5
실시예6	(2)	A	실리카 미립자 + 입경4μm구상 실리카	30.6/52/4.4 (기타 구상 실리카를 13 포함)
실시예7	(2)	A	실리카 미립자	56.9/35/8.1
실시예8	(2)	I	0	40/60/0
실시예9	(2)	A, I	0	40/60(A:I=48:12)/0
비교예1	(1)	F	실리카 미립자	40/60/0
비교예2	(1)	G	실리카 미립자	40/60/0
비교예3	(1)	D	실리카 미립자	51/49/0
비교예4	(1)	E	실리카 미립자	40/60/0
비교예5	(2)	H	실리카 미립자	35/60/5
비교예6	(2)	H	0	20/80/0
비교예7	(2)	J	0	40/60/0

[0265]

[0266] 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 미만인 알루미나를 사용한 비교예 3 의 재료에서는, 점도가 올라가 백색 안료의 분산이 곤란하여, 49 % 밖에 알루미나를 충전시킬 수 없었다.

[0267] [시험편의 반사율 측정]

[0268] 상기 실시예 1 ~ 9 및 비교예 1 ~ 7 의 각 시험편에 대하여, 코니카 미놀타사 제조 SPECTROPHOTOMETER CM-2600d 를 이용하여 측정 직경 6 ㎜ 에서 360 ㎚ 내지 740 ㎚ 의 파장에 있어서의 반사율을 측정하였다. 결과를 표 3, 및 도 4 에 나타낸다. 또한, 실시예 2, 실시예 9 및 비교예 5 의 각 시험편에 대해서는, 시험편이 지극히 얇은 경우의 반사율도 아울러 측정하였다.

표 3

[0269]

	400nm광의 반사율	460nm광의 반사율	시험편 두께(μm)
실시예1	94.6	94.9	400
실시예2	94.4	94.8	420
실시예3	95.1	95.1	410
실시예4	92.4	92.5	360
실시예5	93.7	93.8	370
실시예6	94.1	93.8	340
실시예7	93.0	92.6	420
실시예8	40.6	97.5	320
실시예9	44.6	97.1	290
비교예1	89.0	92.2	360
비교예2	82.2	84.5	520
비교예3	74.0	71.4	1000
비교예4	85.4	86.0	370
비교예5	86.5	87.4	520
비교예6	87.4	88.3	470
비교예7	41.4	91.6	370
실시예2	88.0	86.9	120
실시예9	44.6	95.2	120
비교예5	70.9	70.3	120

[0270] 표 3 에 의하면, 구상이 아니고, 1 차 입자경 및 애스펙트비가 특정 값인 백색 안료를 사용한 실시예 1 ~ 9 에서는, 460 ㎚ 에서의 반사율이 매우 높은 것으로 판명되었다. 아울러 도 3 에 의하면, 백색 안료가 알루미나인 경우에는, 자외 영역에서 가시광 영역까지의 넓은 범위에서 높은 반사율을 유지하였다. 한편, 구상의 백색 안료를 사용한 비교예 1, 2 에서는, 460 ㎚ 에서의 반사율이 약간 낮아지는 것으로 판명되었다. 또, 백색 안료가 알루미나인 경우라도, 400 ㎚ 에서의 반사율에서는 저하의 정도가 현저하게 나타나는 것으로 판명되었다. 한편, 1 차 입자경이 0.1 ㎛ 미만인 알루미나를 사용한 비교예 3, 7 및 1 차 입경이 2 ㎛ 를 초과하는 알루미나를 사용한 비교예 4, 5, 6 은 모두 반사율이 낮았다.

[0271] 또, 시험편의 두께 120 ㎛ 에서의 460 ㎚ 광의 반사율은, 실시예 2, 9 에서는 비교예 5 에 비해 높아 얇은 재료라도 비교적 높은 반사율을 유지하였다. 특히 알루미나에 티타니아를 배합한 실시예 9 에서는, 시험편의 두께를 얇게 했을 때의 반사율 저하가 작은 것으로 판명되었다.

[0272] [수지 성형체용 재료의 점도 측정]

[0273] 실시예 1 ~ 7, 비교예 2, 비교예 4, 비교예 5, 및 비교예 6 의 각 수지 성형체용 재료에 대하여, 레오메트릭스사 제조 RMS-800 으로 패럴렐 플레이트를 이용하여, 측정 온도 25 ℃ 에서 점도 측정을 실시하였다.

[0274] 그 결과를 표 4 및 도 6 에 나타낸다. 실시예 1 ~ 7 중 어느 재료나 25 ℃ 에 있어서의 전단 속도 1 s^{-1} 및 100 s^{-1} 에서의 점도, 그리고 그 기울기가 수지 성형체의 성형에 적합함을 알 수 있다. 한편 비교예에서는 점도의 값이 실시예와 크게 다른 것을 알 수 있다. 또한, 비교예 6 에서는 점도가 지나치게 높고, 패럴렐 플레이트와 샘플 사이에 미끄러짐이 발생하여 정확한 측정을 할 수 없었다.

표 4

[0275]

	점도($1s^{-1}$) (Pa·s)	점도($100s^{-1}$) (Pa·s)	점도비 ($1s^{-1}/100s^{-1}$)
실시예1	1617.1	30.3	53.4
실시예2	4859.5	41.9	116.0
실시예3	24290.2	701.5	34.6
실시예4	1099.6	26.1	42.2
실시예5	80644.9	1827.3	44.1
실시예6	19506.1	198.3	98.4
실시예7	641.9	56.5	11.4
비교예2	27.2	4.8	5.7
비교예4	35.6	7.1	5.0
비교예5	334.0	88.6	3.8
비교예6	측정 불가	측정 불가	측정 불가

[0276] [실시예 10]

[0277] 실시예 3 의 재료를 이용하여, 전면 은 도금한 구리 리드 프레임과 함께 액상 사출 성형에 의해 반도체 발광 장치용 패키지를 성형하였다. 그 패키지는, 수지부가 세로 3.2 ㎜ × 가로 2.7 ㎜ × 높이 1.4 ㎜, 개구부의 직경 2.4 ㎜ 의 오목부를 갖는 컵상의 표면 실장형 패키지였다. 성형은 금형 온도 170 ℃, 경화 시간 20 초의 조건으로 실시하였다. 성형한 패키지를 관찰한 결과, 버의 발생은 없고, 쇼트 몰드가 없는 패키지였다.

[0278] [실시예 11]

[0279] 실시예 3 의 재료를 이용하여, 전면 은 도금한 구리 리드 프레임과 함께 액상 사출 성형에 의해 반도체 발광 장치용 패키지를 성형하였다. 그 패키지는, 세로 5 ㎜ × 가로 5 ㎜ × 높이 1.5 ㎜, 개구부의 직경 3.6 ㎜ 의 오목부를 갖는 컵상의 표면 실장형 패키지였다. 성형은 금형 150 ℃, 경화 시간 180 초의 조건으로 실시하였다. 성형한 패키지를 액체 질소로 동결시킨 상태에서 마이크로톰에 의해 절삭하여, 패키지 단면의 SEM 관찰을 실시하였다. 단면에 노출된 알루미나의 1 차 입자경은 0.3 ㎛, 1 차 입자의 애스펙트비는 1.42 였다.

부호의 설명

[0280] 1 반도체 발광 소자

2 수지 성형체

3 본딩 와이어

4 봉지재

5 리드 프레임

1C 반도체 발광 장치

101 케이싱

102 리플렉터부

103 광원부

104 히트 싱크

105 발광부

106 배선 기판

107 창부

200 종래형 반도체 발광 장치

201 수지 성형체

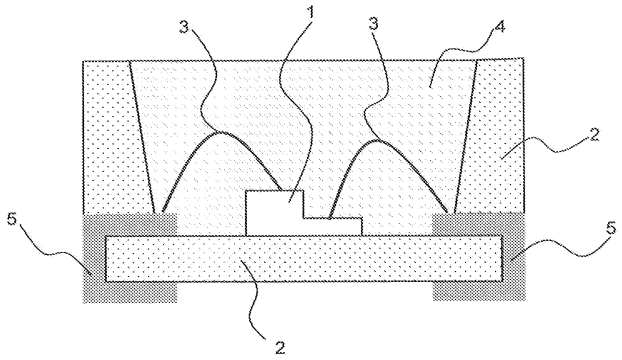
202 반도체 발광 소자

203 봉지재

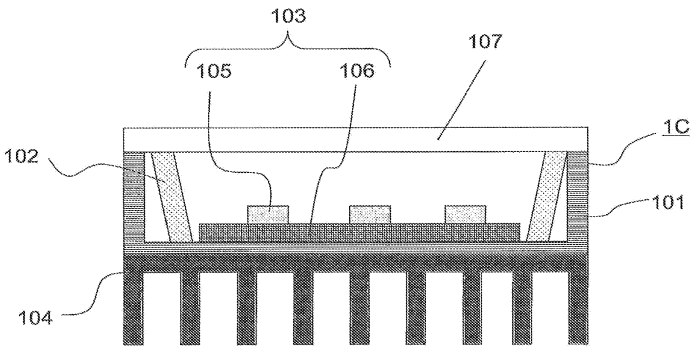
204 리드 프레임

도면

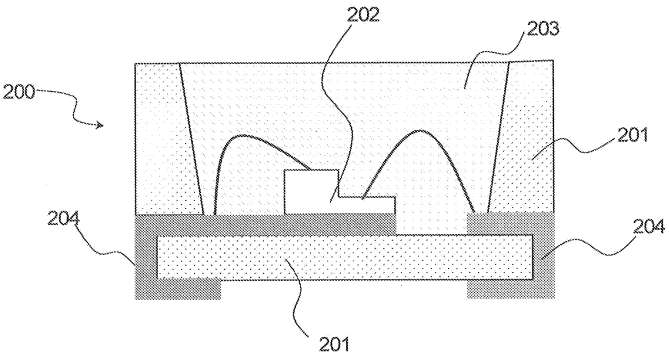
도면1



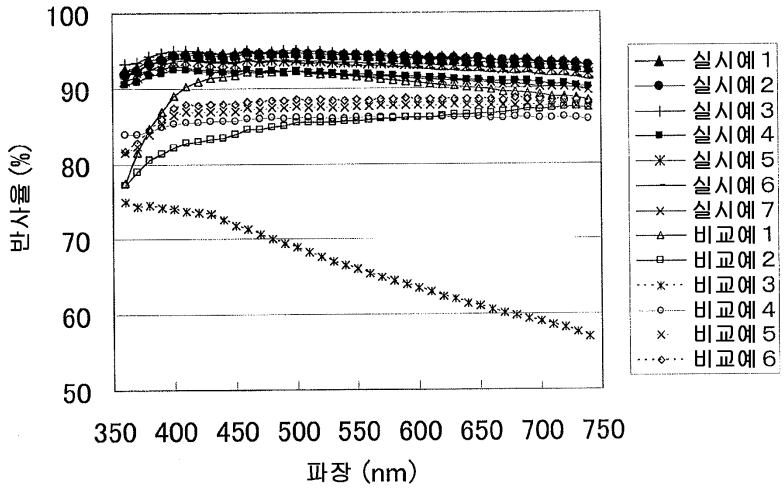
도면2



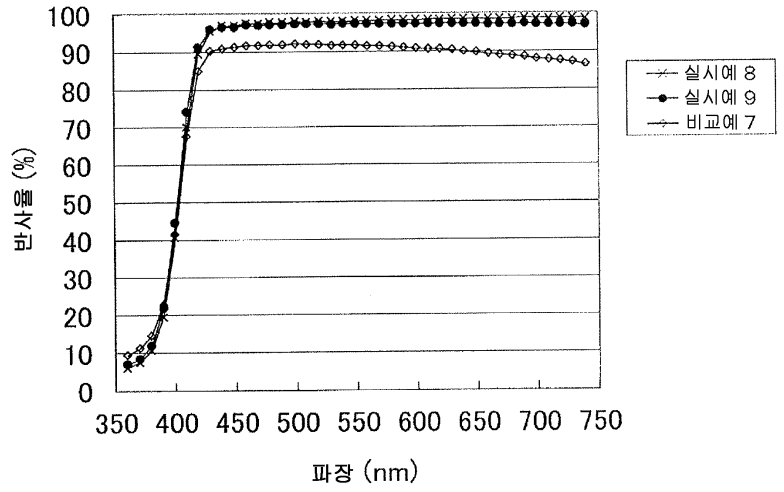
도면3



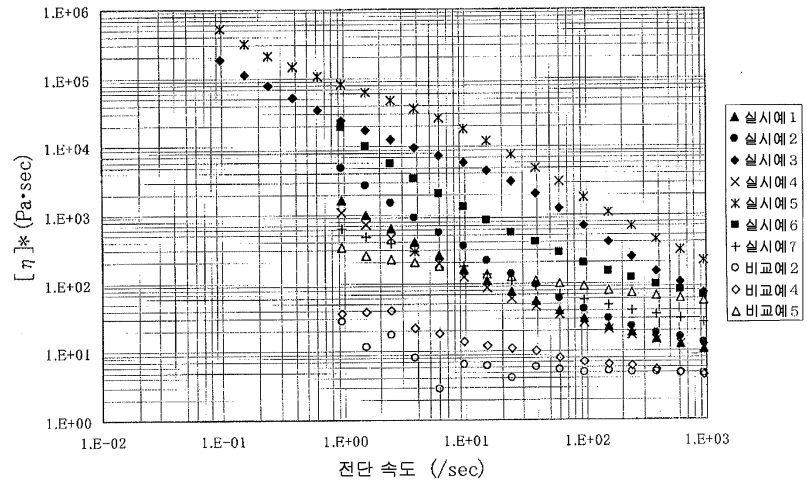
도면4


100
90
80
70
60
50
반사율 (%)
350 400 450 500 550 600 650 700 750
파장 (nm)
실시예 1
실시예 2
실시예 3
실시예 4
실시예 5
실시예 6
실시예 7
비교예 1
비교예 2
비교예 3
비교예 4
비교예 5
비교예 6

도면5


100
90
80
70
60
50
40
30
20
10
0
반사율 (%)
350 400 450 500 550 600 650 700 750
파장 (nm)
실시예 8
실시예 9
비교예 7

도면6


1.E+06
1.E+05
1.E+04
1.E+03
1.E+02
1.E+01
1.E+00
[η]* (Pa·sec)
1.E-02
1.E-01
1.E+00
1.E+01
1.E+02
1.E+03
전단 속도 (/sec)
실시예 1
실시예 2
실시예 3
실시예 4
실시예 5
실시예 6
실시예 7
비교예 2
비교예 4
비교예 5