

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006年2月16日 (16.02.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/016507 A1

- (51) 国際特許分類⁷: G02F 1/1339, C08G 59/62, (74) 代理人: 川口 義雄, 外(KAWAGUCHI, Yoshio et al.);
C08K 3/22, C08L 63/00, C09K 3/10 〒1600022 東京都新宿区新宿 1 丁目 1 番 1 1 号 友泉
新宿御苑ビル 川口国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/014198
- (22) 国際出願日: 2005 年 8 月 3 日 (03.08.2005)
- (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2004-234049 2004 年 8 月 11 日 (11.08.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本
化薬株式会社 (NIPPON KAYAKU KABUSHIKI
KAISHA) [JP/JP]; 〒1028172 東京都千代田区富士見
一丁目 1 1 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 並木 務 (NAMIKI,
Tsutomu) [JP/JP]; 〒1150042 東京都北区志茂 3 -
2 9 - 1 5 Tokyo (JP). 林原 昌一 (HAYASIBARA,
Syouchi) [JP/JP]; 〒3380002 埼玉県さいたま市中
央区下落合 6 - 1 6 - 1 5 Saitama (JP). 坂野 常俊
(SAKANO, Tsunetoshi) [JP/JP]; 〒2160004 神奈川県川
崎市宮前区鷺沼 1 - 1 5 - 1 4 Kanagawa (JP). 森直
美 (MORI, Naomi) [JP/JP]; 〒1150042 東京都北区志
茂 3 - 3 3 - 5 Tokyo (JP). 刀祢田 直樹 (TONEDA,
Naoki) [JP/JP]; 〒1150042 東京都北区志茂 3 - 3 3 -
5 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,
BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR,
HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU,
SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT,
TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, 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
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: LIQUID CRYSTAL SEALANT AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY CELL UTILIZING THE SAME

(54) 発明の名称: 液晶シール剤およびそれを用いた液晶表示セル

(57) Abstract: [PROBLEMS] To provide a liquid crystal sealant that exhibits high bonding strength at high temperatures even at a cell gap as narrow as $\leq 3 \mu\text{m}$, being able to provide a liquid crystal display cell of high reliability, and that with respect to the production process, is applicable to both of the conventional thermosetting sheet-fed process and jig press process. [MEANS FOR SOLVING PROBLEMS] There is provided a liquid crystal sealant comprising as essential components (a) epoxy resin, (b) curing agent containing at least one type of each of novolak resin and polyfunctional hydrazide compound, and (c) inorganic filler.

(57) 要約: 【課題】 セルギャップが $3 \mu\text{m}$ 以下の狭ギャップでも高温時に強い接着力があり、信頼性に優れた液晶表示セルを提供でき、その製造プロセスは従来の熱硬化型枚葉プロセスおよび治具プレスプロセスの何れにも適用可能である。【解決手段】 (a) エポキシ樹脂、(b) ノボラック樹脂と多官能ヒドラジド化合物の少なくともそれぞれ 1 種類を含む硬化剤、及び (c) 無機充填材を必須成分として含有する液晶シール剤。

WO 2006/016507 A1

明 細 書

液晶シール剤およびそれを用いた液晶表示セル

技術分野

- [0001] 本発明は、フラットパネルディスプレイである液晶表示セルの貼り合せに使用される、優れた接着性、耐熱性、耐湿性、耐液晶汚染性、生産性を有する液晶シール剤及びそれを用いて製造される液晶表示セルに関するものである。

背景技術

- [0002] 近年の液晶表示セルの大型化に伴い、液晶表示セルの製造法として、より量産性の高い、いわゆる液晶滴下工法が提案され、液晶滴下工法用のシール剤も様々なかたちで提案されている(特許文献1参照)。一方、小型表示セル、特に携帯電話用途では動画機能も加わり、より高精彩、高速応答性が求められてきている。特に日本国内では差別化商品として携帯電話向けのものが多く、大型マザーガラスでの多面取りでの製造がなされている。そして高速応答性に対応させるため、液晶やセルの間隔を狭ギャップにする等の工夫がなされている。液晶はより敏感なものとなり従来の液晶にくらべ不純物に汚染されやすくなり、より高純度のシール剤が求められている。また、セルギャップは、従来4～5 μm あったものが、3 μm 以下に設計されたパネルも製造され始めている。従来のシール剤では、シールの厚さで緩衝作用があり問題とならなかったが、3 μm 以下の厚みでは高温時の応力緩衝が十分ではなくシール剥がれの問題が起きている。応力緩和目的としては従来からポリマー微粒子の添加なども提案されているが(特許文献2参照)、高温時での接着強度については十分ではない。

- [0003] 特許文献1:特許第3162179号公報

特許文献2:特開2000-347203

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] 本発明は、液晶表示セル製造において3 μm 以下の狭ギャップでもシール剥がれのない接着強度、耐湿信頼性があり、且つ作業性に優れる液晶シール剤組成物を

提供することを目的としている。また、この液晶シール剤組成物を用いた液晶表示セルの製造方法および液晶表示素子を提供することである。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは前記した課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、特定の組成を有する樹脂組成物が前記課題を満たすものであることを見出し、本発明を完成させたものである。即ち本発明は、次の(1)～(9)に関するものである。

(1) (a) エポキシ樹脂、(b) ノボラック樹脂と多官能ヒドロジド化合物の少なくともそれぞれ1種類を含む硬化剤、及び(c) 無機充填剤を含有することを特徴とする液晶シール剤。

(2) ノボラック樹脂の割合が硬化剤(b)中の5～90重量%である(1)に記載の液晶シール剤。

[0006] (3) 無機充填剤(c)がアルミナ及び／又はシリカである(1)乃至(2)のいずれか一項に記載の液晶シール剤。

(4) 無機充填剤(c)の平均粒径が2000nm以下であることを特徴とする(1)乃至(3)のいずれか一項に記載の液晶シール剤。

[0007] (5) カップリング剤を更に含有することを特徴とする(1)乃至(4)のいずれか一項に記載の液晶シール剤。

(6) カップリング剤がイミダゾールシラン系カップリング剤である(5)に記載の液晶シール剤。

[0008] (7) 硬化促進剤を更に含有することを特徴とする(1)乃至(6)のいずれか一項に記載の液晶シール剤。

(8) 硬化促進剤が潜在性硬化促進剤である(7)に記載の液晶シール剤。

(9) (1)乃至(8)のいずれか一項に記載の液晶シール剤でシールされた液晶表示セル。

発明の効果

[0009] 本発明の液晶シール剤はセルギャップが3 μ m以下の狭ギャップでも又高温時にも強い接着力があり、信頼性に優れた液晶表示セルを提供でき、その製造プロセスは従来の熱硬化型枚葉プロセスおよび治具プレスプロセスの何れにも適用可能である

。

発明を実施するための最良の形態

[0010] 以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の液晶シール剤であるエポキシ樹脂組成物は、(a)エポキシ樹脂、(b)ノボラック樹脂と多官能ヒドラジド化合物の少なくともそれぞれ1種類を含む硬化剤、及び(c)無機充填剤、を必須成分として含有する。

[0011] 本発明の液晶シール剤で用いられるエポキシ樹脂(a)は特に限定されるものではなく、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS、4, 4'-ビフェニルフェノール、2, 2', 6, 6'-テトラメチル-4, 4'-ビフェニルフェノール、2, 2'-メチレン-ビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、トリスヒドロキシフェニルメタン、ピロガロール、ジイソプロピリデン骨格を有するフェノール類、1, 1-ジ-4-ヒドロキシフェニルフルオレン等のフルオレン骨格を有するフェノール類、フェノール化ポリブタジエン等のポリフェノール化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ樹脂、フェノール、クレゾール類、エチルフェノール類、ブチルフェノール類、オクチルフェノール類、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ナフトール類等の各種フェノールを原料とするノボラック樹脂、キシリレン骨格含有フェノールノボラック樹脂、ジシクロペンタジエン骨格含有フェノールノボラック樹脂、フルオレン骨格含有フェノールノボラック樹脂等の各種ノボラック樹脂のグリシジルエーテル化物、シクロヘキサン等の脂肪族骨格を有する脂環式エポキシ樹脂、イソシアヌル環、ヒダントイン環等の複素環を有する複素環式エポキシ樹脂、ブROM化ビスフェノールA、ブROM化ビスフェノールF、ブROM化ビスフェノールS、ブROM化フェノールノボラック、ブROM化クレゾールノボラック等のブROM化フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂、N, N-ジグリシジル-*o*-トリレイジン、N, N-ジグリシジルアニリン、フェニルグリシジルエーテル、レゾルシノールジグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、(3, 4-3', 4'-エポキシシクロ)ヘキシルメチルヘキサンカルボキシレート、ヘキサヒドロ無水フタル酸ジグリシジルエステル等の公知公用のエポキシ樹脂が挙げられる。

エポキシ樹脂の使用量は得られた液晶シール剤の作業性、物性に影響を与えない範囲で用いられ、通常、液晶シール剤中の25～60重量%程度であり、好ましくは25～50重量%である。

これらのエポキシ樹脂は、2種以上を混合して用いても良い。

[0012] 本発明の液晶シール剤で用いられる硬化剤(b)は、ノボラック樹脂と多官能ヒドラジド化合物の少なくともそれぞれ1種類以上を含むもので、そのノボラック樹脂の硬化剤中の割合は5～90重量%、好ましくは15～80重量%、更に好ましくは20～70重量%である。硬化剤のうちノボラック樹脂が90重量%よりも多い場合は、耐湿信頼性や液晶汚染性などのパネルの信頼性は良好であるものの3 μ m以下の狭ギャップでは十分な強度および耐熱性が得られず、製造時にパネルが剥がれる傾向がある。また、5重量%よりも少ない場合は、応力緩和が十分ではなく、十分な接着強度が得られない場合がある。

[0013] ここで使用しうるノボラック樹脂としては、例えばビスフェノールA、テトラブROMビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、4, 4'-ビフェニルフェノール、2, 2', 6, 6'-テトラメチル-4, 4'-ビフェニルフェノール、2, 2'-メチレン-ビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、トリスヒドロキシフェニルメタン、ピロガロール、ジイソプロピリデン骨格を有するフェノール類、1, 1'-ジ-4-ヒドロキシフェニルフルオレン等のフルオレン骨格を有するフェノール類、フェノール化ポリブタジエン等のポリフェノール化合物、フェノール、クレゾール類、エチルフェノール類、ブチルフェノール類、オクチルフェノール類、ビスフェノールA、ブROM化ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ナフトール類等の各種フェノールを原料とするノボラック樹脂、キシリレン骨格含有フェノールノボラック樹脂、ジシクロペンタジエン骨格含有フェノールノボラック樹脂、フルオレン骨格含有フェノールノボラック樹脂等のフェノール系ノボラック樹脂が挙げられ、好ましくはフェノール、クレゾール類、エチルフェノール類、ブチルフェノール類、オクチルフェノール類、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ナフトール類等の各種フェノールを原料とするノボラック樹脂、キシリレン骨格含有フェノールノボラック樹脂、ジシクロペンタジエン骨格含有フェノールノボラック樹脂、フルオレン骨格含有フェノールノボラック樹脂等の各種ノボラック

樹脂であり、更に好ましくはフェノール、クレゾール類、オクチルフェノール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ナフトール類等の各種フェノール類を原料とするノボラック樹脂等の各種ノボラック樹脂であり、特に好ましくはフェノールを原料とするフェノールノボラック樹脂、クレゾール類を原料とするクレゾールノボラック樹脂である。これらのノボラック樹脂は単独で又は2種以上を混合して使用される。

- [0014] 本発明において、多官能ヒドラジド化合物とは、分子中に2個以上のヒドラジド基を有するものを指し、その具体例としては、例えば、カルボヒドラジド、シュウ酸ジヒドラジド、マロン酸ジヒドラジド、コハク酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、ピメリン酸ジヒドラジド、スベリン酸ジヒドラジド、アゼライン酸ジヒドラジド、セバシン酸ジヒドラジド、ドデカンジオジヒドラジド、ヘキサデカンジオヒドラジド、マレイン酸ジヒドラジド、フマル酸ジヒドラジド、ジグリコール酸ジヒドラジド、酒石酸ジヒドラジド、リンゴ酸ジヒドラジド、イソフタル酸ジヒドラジド、テレフタル酸ジヒドラジド、2, 6-ナフトエ酸ジヒドラジド、4, 4-ビスベンゼンジヒドラジド、1, 4-ナフトエ酸ジヒドラジド、2, 6-ピリジンジヒドラジド、1, 2, 4-ベンゼントリヒドラジド、ピロメリット酸テトラヒドラジド、1, 4, 5, 8-ナフトエ酸テトラヒドラジド、1, 3-ビス(ヒドラジノカルボノエチル)-5-イソプロピルヒダントイン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらのうちイソフタル酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、テレフタル酸ジヒドラジド、2, 6-ナフトエ酸ジヒドラジド、4, 4-ビスベンゼンジヒドラジド、1, 4-ナフトエ酸ジヒドラジド、2, 6-ピリジンジヒドラジド、1, 2, 4-ベンゼントリヒドラジド、ピロメリット酸テトラヒドラジド、1, 4, 5, 8-ナフトエ酸テトラヒドラジド等の芳香族多官能ヒドラジド類及び1, 3-ビス(ヒドラジノカルボノエチル)-5-イソプロピルヒダントインが、融点が高い故に潜在性に優れ、硬化物のガラス転移点が高く、液晶に対する溶解性が少ない等の理由から好ましく、イソフタル酸ジヒドラジドが特に好ましい。

- [0015] 又、本発明で用いられる硬化剤の使用量は、液晶シール剤中のエポキシ樹脂のエポキシ当量に対して、ノボラック樹脂中の水酸基の当量と多官能ヒドラジド化合物の活性アミノ基の当量の和が0. 6~1. 4化学当量、好ましくは0. 7~1. 1化学当量である。

- [0016] 本発明の液晶シール剤で使用する無機充填剤(c)の具体例としては、アルミナ、シ

リカ、酸化チタン、酸化コバルト、酸化マグネシウム、酸化ニッケル、酸化鉄、酸化亜鉛、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、タルク、クレー、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、珪酸ジルコニウム、チタン酸バリウム等が挙げられ、好ましくはアルミナ、シリカである。これらの無機充填剤は必要により疎水処理やカップリング処理をしたものを用いてもよい。これら無機充填剤は単独で用いても、もしくは2種以上を混合して用いても良い。

- [0017] 本発明で用いられる無機充填剤の平均粒径はレーザー法や比表面積から算出する方法などの測定で2000nm以下が好ましい。2000nmより無機充填剤の平均粒径が大きいと、液晶セル製造時の上下基板貼り合わせ後の熱プレス時に、無機充填剤の比表面積が小さいことから無機充填剤と液晶シール剤の樹脂成分の分離が生じやすい傾向があり、しみだしが発生してしまう傾向がある。そして、硬化後の接着強度及び吸湿後の接着強度が低下してしまう傾向がある。無機充填剤の平均粒径の下限については特に定めはないが、通常その下限は平均粒径として3nm程度である。
- [0018] 本発明で使用される無機充填剤の液晶シール剤中の含有量は、全液晶シール剤中5～45重量%、より好ましくは15～35重量%である。無機充填剤の含有量が5重量%より少ない場合、低粘度になり、液晶セル作成時の加熱プレス時に液晶シール剤のしみだしが発生してしまう傾向がある。又、無機充填剤の含有量が45重量%より多い場合、液晶セル作成のプレスの際つぶれにくく、液晶セルのギャップ形成ができなくなってしまう場合がある。
- [0019] 本発明の液晶シール剤には、液晶シール剤の特性に影響を与えない範囲で更に有機充填剤を添加しても良い。有機充填剤としては、ポリマービーズ、コアシェルタイプのゴムフィラー等があげられる。これら充填剤は単独で用いても、もしくは2種以上を混合して用いても良い。
- [0020] 添加できる有機充填剤の平均粒径は、3 μ m以下であり、好ましくは2 μ m以下が望ましい。平均粒径が3 μ mより大きい場合は、セルギャップの形成が難しくなってしまうことがある。また、添加できる有機充填剤の添加量は、通常、無機充填剤の重量の50重量%以下である。50重量%より多い場合では粘度が高くなりセルギャップの

形成が難しくなってしまう傾向がある。

- [0021] 本発明の液晶シール剤には必要に応じて硬化促進剤を添加しても良い。硬化促進剤としては、例えばイミダゾール類、イミダゾール類とフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、ナフタレンジカルボン酸、マレイン酸、蔞酸等の多価カルボン酸との塩類、ジシアンジアミド等のアミド類及び該アミド類とフェノール類、前記多価カルボン酸類、又はホスフィン酸類との塩類、1, 8-ジアザ-ビシクロ(5. 4. 0)ウンデセン-7等のジアザ化合物及び該ジアザ化合物とフェノール類、前記多価カルボン酸類、又はホスフィン酸類との塩類、トリフェニルホスフィン、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート等のホスフィン類、2, 4, 6-トリスアミノメチルフェノール等のフェノール類、アミンアダクト等があげられる。
- [0022] イミダゾール類としては、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、2, 4-ジアミノ-6(2'-メチルイミダゾール(1'))エチル-s-トリアジン、2, 4-ジアミノ-6(2'-ウンデシルイミダゾール(1'))エチル-s-トリアジン、2, 4-ジアミノ-6(2'-エチル, 4-メチルイミダゾール(1'))エチル-s-トリアジン、2, 4-ジアミノ-6(2'-メチルイミダゾール(1'))エチル-s-トリアジン・イソシアヌル酸付加物、2-メチルイミダゾールイソシアヌル酸の2:3付加物、2-フェニルイミダゾールイソシアヌル酸付加物、2-フェニル-3, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-ヒドロキシメチル-5-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニル-3, 5-ジシアノエトキシメチルイミダゾール等があげられる。
- [0023] これら硬化促進剤のうち好ましいものとしては、例えば2, 4-ジアミノ-6(2'-メチルイミダゾール(1'))エチル-s-トリアジン・イソシアヌル酸付加物、2-メチルイミダゾールイソシアヌル酸の2:3付加物、2-フェニルイミダゾールイソシアヌル酸付加物、イミダゾール類とフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、ナフタレンジカルボン酸、マレイン酸、蔞酸等の多価カルボン酸との塩類、アミンアダ

クト等があげられる。硬化促進剤の添加量は、液晶シール剤中のエポキシ樹脂100重量部に対して0.1～25重量部、好ましくは0.3～20重量部であり、更に好ましくは、0.5～15重量部である。

[0024] これら硬化促進剤は、潜在性硬化促進剤の形式で使用した方が、作業性の向上（ポットライフ時間の延長）等のメリットがあり、好ましい。潜在性硬化促進剤とは、室温では固体で、加熱されることによって溶解し、初めて硬化促進剤として反応するという性質を有するもので、例えばこれら硬化促進剤をマイクロカプセルにしたマイクロカプセル型硬化促進剤や溶剤やエポキシ樹脂に溶解しにくい固体分散型の硬化促進剤（例えばイミダゾール類）、アミンアダクト等が挙げられる。中でも、エポキシ樹脂と混合した際の1液保存安定性と加熱時の反応性の高さからアミンアダクトを硬化促進剤として使用することが特に好ましい。

[0025] これら硬化促進剤のうち、固体分散型の潜在性硬化促進剤の平均粒径はレーザー法の測定で6 μ m以下、好ましくは4 μ m以下、より好ましくは3 μ m以下程度である。平均粒径が6 μ mより大きい潜在性硬化促進剤を使用すると、ディスペンサー塗布が難しく、また、塗布後の形状も均一でなく、そのため、シール後のシール形状も均一でなくなる傾向がある。そして、平均粒径が6 μ mより大きい硬化促進剤を使用した液晶シール剤は、シールの硬化が不均一になり、シール部に充填剤の荒い粗密が確認され、しみだしも発生しやすい傾向がある。また、潜在性硬化促進剤の平均粒径については、特に下限はないが、通常1.5～2.5 μ m程度のものが用いられる。

[0026] 本発明の液晶シール剤には、必要によりカップリング剤を加えることが出来る。カップリング剤としては、例えば、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピルメチルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、N-(2-(ビニルベンジルアミノ)エチル)3-アミノプロピルトリメトキシシラン塩酸塩、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-クロプロピルメチルジ

メキシシラン、3-クロロプロピルトリメキシシラン、N-イミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-メチルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-エチルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-iso-プロピルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-エチル-4-メチルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-ウンデシルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-2-ヘプタデシルイミダゾールメチルトリメキシシラン、N-イミダゾールメチルトリエトキシシラン、N-2-メチルイミダゾールエチルトリメキシシラン、N-2-エチルイミダゾールメチルトリエトキシシラン、N-2-iso-プロピルイミダゾールメチルトリエトキシシラン、N-2-エチル-4-メチルイミダゾールメチルトリエトキシシラン、N-2-ウンデシルイミダゾールメチルトリエトキシシラン、N-2-ヘプタデシルイミダゾールメチルトリエトキシシラン、2-(N-イミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-メチルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-エチルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-iso-プロピルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-エチル-4-メチルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-ウンデシルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-2-ヘプタデシルイミダゾール)エチルトリメキシシラン、2-(N-イミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-メチルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-エチルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-iso-プロピルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-エチル-4-メチルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-ウンデシルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、2-(N-2-ヘプタデシルイミダゾール)エチルトリエトキシシラン、3-(N-イミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-メチルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-エチルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-iso-プロピルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-エチル-4-メチルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-ウンデシルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-2-ヘプタデシルイミダゾール)プロピルトリメキシシラン、3-(N-イミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-メチルイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-エチルイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-iso-プロピルイミ

ダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-エチル-4-メチルイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-ウンデシルイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、3-(N-2-ヘプタデシルイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン、1Hイミダゾール-1-エタノール、 α ((3-(トリメトキシシリル)プロポキシ)メチル)等のシラン系カップリング剤(アミノシラン系カップリング剤およびイミダゾールシラン系カップリング剤を含む)、イソプロピル(N-エチルアミノエチルアミノ)チタネート、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、チタニウムジ(ジオクチルピロフォスフェート)オキシアセテート、テトライソプロピルジ(ジオクチルフォスファイト)チタネート、ネオアルコキシトリ(p-N-(β -アミノエチル)アミノフェニル)チタネート等のチタン系カップリング剤、Zr-アセチルアセトネート、Zr-メタクリレート、Zr-プロピオネート、ネオアルコキシジルコネート、ネオアルコキシトリスネオデカノイルジルコネート、ネオアルコキシトリス(ドデカノイル)ベンゼンスルフォニルジルコネート、ネオアルコキシトリス(エチレンジアミノエチル)ジルコネート、ネオアルコキシトリス(m-アミノフェニル)ジルコネート、アンモニウムジルコニウムカーボネート、Al-アセチルアセトネート、Al-メタクリレート、Al-プロピオネート等のジルコニウム系、或いはアルミニウム系カップリング剤が挙げられる。

本発明では、好ましくはシラン系カップリング剤、更に好ましくはアミノシラン系カップリング剤、特に好ましくはイミダゾールシラン系カップリング剤が用いられる。カップリング剤を使用する事により耐湿信頼性が優れ、吸湿後の接着強度の低下が少ない液晶シール剤が得られる。

カップリング剤を加える場合、その使用量は、液晶シール剤中に0.1~15重量%程度である。

[0027] 本発明の液晶シール剤は、基板への塗布作業性を向上させるため、液晶シール剤の塗布時の粘度を低粘度化するために溶剤を添加しても良い。使用しうる溶剤としては、例えばアルコール系溶剤、エーテル系溶剤、アセテート系、塩基酸エステル塩系溶剤があげられ、これらは1種又は、2種以上を、単独で又は混合して、任意の比率で用いることができる。

[0028] アルコール系溶剤としては、例えばエタノール、イソプロピルアルコール等のアルキ

ルアルコール類、3-メチル-3-メトキシブタノール、3-メチル-3-エトキシブタノール、3-メチル-3-n-プロポキシブタノール、3-メチル-3-イソプロポキシブタノール、3-メチル-3-n-ブトキシブタノール、3-メチル-3-イソブトキシブタノール、3-メチル-3-sec-ブトキシブタノール、3-メチル-3-tert-ブトキシブタノール等のアルコキシアアルコール類があげられる。

[0029] エーテル系溶剤としては、例えば1価アルコールエーテル系溶剤、アルキレングリコールモノアルキルエーテル系溶剤、アルキレングリコールジアルキルエーテル系溶剤、ジアルキレングリコールアルキルエーテル系溶剤、トリアルキレングリコールアルキルエーテル系溶剤等があげられる。

[0030] 1価アルコールエーテル系溶剤としては、例えば3-メチル-3-メトキシブタノールメチルエーテル、3-メチル-3-エトキシブタノールエチルエーテル、3-メチル-3-n-ブトキシブタノールエチルエーテル、3-メチル-3-イソブトキシブタノールプロピルエーテル、3-メチル-3-sec-ブトキシブタノール-イソプロピルエーテル、3-メチル-3-tert-ブトキシブタノール-n-ブチルエーテル等があげられる。

[0031] アルキレングリコールモノアルキルエーテル系溶剤としては、例えばプロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、プロピレングリコールモノイソプロピルエーテル、プロピレングリコールモノ-n-ブチルエーテル、プロピレングリコールモノイソブチルエーテル、プロピレングリコールモノ-sec-ブチルエーテル、プロピレングリコールモノ-tert-ブチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノプロピルエーテル、エチレングリコールモノイソプロピルエーテル、エチレングリコールモノ-n-ブチルエーテル、エチレングリコールモノイソブチルエーテル、エチレングリコールモノ-sec-ブチルエーテル、エチレングリコールモノ-tert-ブチルエーテル等があげられる。

[0032] アルキレングリコールジアルキルエーテル系溶剤としては、例えばプロピレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコールジエチルエーテル、プロピレングリコールジプロピルエーテル、プロピレングリコールジイソプロピルエーテル、プロピレングリ

コールジ-*n*-ブチルエーテル、プロピレングリコールジイソブチルエーテル、プロピレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、プロピレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールジプロピルエーテル、エチレングリコールジイソプロピルエーテル、エチレングリコールジ-*n*-ブチルエーテル、エチレングリコールジイソブチルエーテル、エチレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、エチレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル等があげられる。

[0033] ジアルキレングリコールアルキルエーテル系溶剤としては、例えばジプロピレングリコールメチルエーテル、ジプロピレングリコールエチルエーテル、ジプロピレングリコールジプロピルエーテル、ジプロピレングリコールジイソプロピルエーテル、ジプロピレングリコールジ-*n*-ブチルエーテル、ジプロピレングリコールジイソブチルエーテル、ジプロピレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、ジプロピレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル(ジグリム)、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジプロピルエーテル、ジエチレングリコールジイソプロピルエーテル、ジエチレングリコールジ-*n*-ブチルエーテル、ジエチレングリコールジイソブチルエーテル、ジエチレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、ジエチレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル等があげられる。

[0034] トリアルキレングリコールアルキルエーテル系溶剤としては、例えばトリプロピレングリコールジメチルエーテル、トリプロピレングリコールジエチルエーテル、トリプロピレングリコールジプロピルエーテル、トリプロピレングリコールジイソプロピルエーテル、トリプロピレングリコールジ-*n*-ブチルエーテル、トリプロピレングリコールジイソブチルエーテル、トリプロピレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、トリプロピレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジエチルエーテル、トリエチレングリコールジプロピルエーテル、トリエチレングリコールジイソプロピルエーテル、トリエチレングリコールジ-*n*-ブチルエーテル、トリエチレングリコールジイソブチルエーテル、トリエチレングリコールジ-*sec*-ブチルエーテル、トリエチレングリコールジ-*tert*-ブチルエーテル等のアルキレングリコールジアルキルエーテル類等があげられる。

[0035] アセテート系溶剤としては、例えばエチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノプロピルエーテルアセテート、エチレングリコールモノイソプロピルエーテルアセテート、エチレングリコールモノ-*n*-ブチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノ-*sec*-ブチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノイソブチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノ-*tert*-ブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノイソプロピルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノプロピルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノ-*n*-ブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノ-*sec*-ブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノイソブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノ-*tert*-ブチルエーテルアセテート、3-メチル-3-メトキシブチルアセテート、3-メチル-3-エトキシブチルアセテート、3-メチル-3-プロポキシブチルアセテート、3-メチル-3-イソプロポキシブチルアセテート、3-メチル-3-*n*-ブトキシエチルアセテート、3-メチル-3-イソブトキシブチルアセテート、3-メチル-3-*sec*-ブトキシブチルアセテート、3-メチル-3-*tert*-ブトキシブチルアセテート等のアルキレングリコールモノアルキルエーテルアセテート類、エチレングリコールジアセテート、ジエチレングリコールジアセテート、トリエチレングリコールジアセテート、プロピレングリコールジアセテート、ジプロピレングリコールジアセテート、トリプロピレングリコールジアセテート、等が挙げられる。

塩基酸エステル系溶剤としては、酢酸ブチル、酢酸エチル等の一塩基酸エステル系溶剤、アジピン酸ジメチル、コハク酸ジメチル、グルタル酸ジメチル、フタル酸ジオクチル等の二塩基酸エステル系溶剤があげられる。

[0036] 溶剤の使用量は、液晶シール剤がディスペンサー或いはスクリーン印刷等の方法で塗布できる粘度、例えば20～40Pa・s(25℃)、に調整するのに必要な任意の量を用いることができ、通常、液晶シール剤中の不揮発成分が70重量%以上、好ましくは85～95重量%、さらに好ましくは90～95重量%になるように使用する。溶剤を添加した液晶シール剤を使用した場合の液晶セルの作製は、液晶シール剤塗布後の

加熱レベリング時に溶剤を揮発乾燥させてから、上下基板の貼り合わせを行う。

[0037] 本発明の液晶シール剤は、前記したエポキシ樹脂、ノボラック樹脂、必要に応じて溶剤を添加し、加熱混合攪拌により溶解し、さらに、無機充填剤と必要に応じてその他の充填剤を添加し、公知の混合装置、例えばボールミル、サンドミル、3本ロール等により微分散した後、さらに、多官能ヒドラジド化合物、硬化促進剤と必要に応じてカップリング剤、消泡剤、レベリング剤等の所定量を添加して混合することにより製造する事が出来る。

[0038] 本発明の液晶表示セルは、基板に所定の電極を形成した一対の基板を所定の間隔に対向配置し、周囲を本発明の液晶シール剤でシールし、その間隙に液晶が封入されたものである。封入される液晶の種類は特に限定されない。ここで、基板とはガラス、石英、プラスチック、シリコン等からなる少なくとも一方が光透過性を有する組み合わせの基板から構成される。その製法としては、例えば、まず、本発明の液晶シール剤に、グラスファイバー等のスペーサー（間隙制御材）を添加する。スペーサーとしては、例えばグラスファイバー、シリカビーズ、ポリマービーズ等があげられる。その直径は、製造する液晶セルのセルギャップに合わせて選択するが、通常0.5～10 μ mである。その使用量は、本発明の液晶シール剤100重量部に対し0.1～4重量部、好ましくは0.5～2重量部、更に、好ましくは0.9～1.5重量部程度である。スペーサーを添加した液晶シール剤を一対の基板の一方にディスペンサー等により塗布した後、例えば90℃10分間の加熱で溶剤を蒸発させ、ついで対抗基板を貼り合わせ、熱プレスにてギャップ出しを行い、120～160℃で1～2時間硬化することにより得ることができる。

実施例

[0039] 以下、実施例を以って更に本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例および比較例中、%および部は、特記しない限り重量基準である。また、エポキシ当量、水酸基当量および活性アミン当量の単位はg/eqである。

[0040] 実施例1

液状のビスフェノールA型エポキシ樹脂(RE-310S、日本化薬社製)70g、トリス

フェノールメタン型エポキシ樹脂 (EPPN-501H、日本化薬社製) 30g、硬化剤のフェノールノボラック樹脂 (タマノル758、荒川化学社製) 17gを溶剤のRPDE (グルタル酸ジメチル、コハク酸ジメチル、アジピン酸ジメチルの混合溶剤、ローディアジャパン社製) 15gに加熱溶解させる。この樹脂溶液に無機充填剤として平均粒径が約30nmの球状アルミナ (ナノテックアルミナSP-C、シーアイ化成製) 60g、平均粒径が約7nmのヒュームドシリカ (アエロジルR-812、日本アエロジル社製) 2g、有機充填剤として平均粒径が約200nmのコアシェル構造架橋ゴム (パラロイドEXL-2655) 5g、をサンドミル分散機により混合分散した後、硬化剤の多官能ヒドラジド化合物としてアジピン酸ジヒドラジド (融点181℃、ジェットミル粉砕にて平均粒径1.7 μ mに調整したもの) 17g、硬化促進剤として平均粒径が3 μ m以下のアミンアダクト (アミキュアMY-HK、味の素ファインテクノ製) 7g、カップリング剤として3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (サイラエースS-510、チッソ社製) 1gを3本ロールにて混練して本発明の液晶シール剤を得た。得られた液晶シール剤について下記の基準に従い評価し、その結果を表1に示した。

[0041] 実施例2～8、比較例1～3

表1の処方に従って各成分を配合し、実施例1と同様にして本発明又は比較用の液晶シール剤を得た。実施例1と同様に評価し、その評価結果は表1に示した。

[0042] ガラス基板貼り合わせギャップ形成テスト

得られた液晶シール剤100gにスペーサーとして2 μ mのポリマービーズ1gを添加して混合攪拌を行う。この液晶シール剤を50mm×50mmのガラス基板上にディスペンサーで塗布し、ホットプレート加熱により、溶剤の揮発を行った後、90℃でそのガラス基板に同サイズのガラス基板を重ね合わせ、荷重をかける。その後、150℃のホットプレート上で荷重をかけてつぶして、2 μ mのスペーサーの厚みまで液晶シール剤がつぶれたかどうか顕微鏡にて確認した (ガラス基板のギャップ形成テスト)。「2 μ mギャップ性」においてスペーサーが確認できるものを○、確認できないものを×とした。

[0043] シール形状評価

得られた液晶シール剤100gにスペーサーとして2 μ mのポリマービーズ1gを添加

して混合攪拌を行う。この液晶シール剤を50mm×50mmのガラス基板上にディスペンサーで塗布し、ホットプレート加熱により、溶剤の揮発を行った後、90℃でそのガラス基板に同サイズのガラス基板を重ね合わせ、荷重をかける。その後、150℃のホットプレート上で荷重をかけてつぶして、2 μ mのスペーサーの厚みまで液晶シール剤をつぶしシール線幅を顕微鏡で確認する。シール幅の最小値と最大値を測定しその割合が5%以下のものを○、5～10%のものを△、発泡等で形状が不規則なものを×とした。

[0044] 接着強度テスト

得られた液晶シール剤100gにスペーサーとして2 μ mのポリマービーズ1gを添加して混合攪拌を行う。この液晶シール剤を50mm×50mmのガラス基板上にディスペンサーで塗布し、ホットプレート加熱で溶剤揮発を行い、その液晶シール剤上に2mm×2mmのガラス片を貼り合わせ150℃で1時間硬化した後、せん断接着強度を150℃雰囲気下で測定した。

[0045] 表1から明らかなように、本発明の液晶シール剤は液晶セル製造時のシール形状および狭ギャップ形成性が良好で、高温時の接着強度に優れることがわかる。

[0046] [表1]

表 1

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	比較例1	比較例2	比較例3
エポキシ樹脂A	70	70	70	70	70	70	80	80	70	70	100
エポキシ樹脂B	30	30	30	30	30	30	20	20	30	30	—
硬化剤A	17	17	17	28	17	17	7.5	7.5	—	—	54
硬化剤B	17	17	17	12	17	17	10	10	22	—	—
硬化剤C	—	—	—	—	—	—	16	16	—	—	—
無機フィラーA	60	60	60	60	60	60	90	90	60	40	40
無機フィラーB	2	2	2	2	2	2	4	4	2	10	10
有機フィラー	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	10
カップリング剤A	1	—	—	1	1	—	1	1	1	5	5
カップリング剤B	—	1	—	—	—	1	—	—	—	—	—
カップリング剤C	—	—	1	—	—	—	—	—	—	—	—
硬化促進剤A	5	5	5	5	5	5	5	5	5	15	15
硬化促進剤B	—	—	—	—	—	—	33	33	15	15	15
溶剤	15	15	15	15	15	15	—	—	—	—	—
(評価)											
粘度 10rpm/25°C	25	26	27	25	26	31	37	35	34	33	28
150°C接着強度(MPa)	34	37	30	25	32	51	43	41	39	9	10
シール形状	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○
2μmギャップ性	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○

エポキシ樹脂A	RE-310S(ビスフェノールA型エポキシ樹脂)日本化薬社製
エポキシ樹脂B	EPN-501H(トリスフェノールメタン型エポキシ樹脂)日本化薬社製
硬化剤A	タマノル(フェノールノボラック樹脂)荒川化学社製
硬化剤B	ADH(アジピン酸ジヒドランド)
硬化剤C	VDH(1,3-ビス(ヒドラジノ)カルボニル)-5-イソプロピルピリジン
無機フィラーA	ナノテックアルミナSP-C(球状アルミナ、平均粒径約30nm)シーアイ化成社製
無機フィラーB	アエロジルR812(ヒュームドシリカ、平均粒径7nm)日本アエロジル社
有機フィラー	パラロイドEXL-2655(コアシェル構造架橋ゴム)
カップリング剤A	サイラエースS-510(3-グリシドキシプロピルトリメチシラン)チッソ社製
カップリング剤B	IS-1000(1Hイミダゾール-1-エタノール, α((3-(トリメチシリル)プロポキシ)メチル)日鉱マテリアルズ社製
カップリング剤C	KBM-573(N-フェニル-アミンプロピルトリメチシラン)信越化学社製
硬化促進剤A	MY-HK(アミンアダクト)味の素ファインテクノ社製
硬化促進剤B	2MA-OK(2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾール(1')]-エチル-5-トリアジンイソシアヌル酸付加物)四国化成
溶剤	RPDE(アジピン酸ジメチル、コハク酸ジメチル、グルタル酸ジメチルの混合溶剤)ローティージャパン社製

請求の範囲

- [1] (a)エポキシ樹脂、(b)ノボラック樹脂と多官能ヒドラジド化合物の少なくともそれぞれ1種類を含む硬化剤、及び(c)無機充填剤を含有することを特徴とする液晶シール剤。
- [2] ノボラック樹脂の割合が硬化剤(b)中の5～90重量%である請求項1に記載の液晶シール剤。
- [3] 無機充填剤(c)がアルミナ及び／又はシリカである請求項1乃至2のいずれか一項に記載の液晶シール剤。
- [4] 無機充填剤(c)の平均粒径が2000nm以下であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか一項に記載の液晶シール剤。
- [5] カップリング剤を更に含有することを特徴とする請求項1乃至4のいずれか一項に記載の液晶シール剤。
- [6] カップリング剤がイミダゾールシラン系カップリング剤である請求項5に記載の液晶シール剤。
- [7] 硬化促進剤を更に含有することを特徴とする請求項1乃至6のいずれか一項に記載の液晶シール剤。
- [8] 硬化促進剤が潜在性硬化促進剤である請求項7に記載の液晶シール剤。
- [9] 請求項1乃至8のいずれか一項に記載の液晶シール剤でシールされた液晶表示セル。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/014198

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ G02F1/1339, C08G59/62, C08K3/22, C08L63/00, C09K3/10

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)

Int.Cl.⁷ G02F1/1339, C08G59/62, C08K3/22, C08L63/00, C09K3/10

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	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

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 Y	JP 2002-88228 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 27 March, 2002 (27.03.02), Claims 4 to 5, 13, 15, 17, 21 to 23; Par. Nos. [072] to [0087], [0157] to [0160], [0177] to [0178], [0271], [0317] to [0318] (Family: none)	1-5, 7-9 6
Y	JP 2004-163766 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 June, 2004 (10.06.04), Par. Nos. [0081] to [0089] (Family: none)	6

☐ 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

23 August, 2005 (23.08.05)

Date of mailing of the international search report

06 September, 2005 (06.09.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ G02F1/1339, C08G59/62, C08K3/22, C08L63/00, C09K3/10

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.⁷ G02F1/1339, C08G59/62, C08K3/22, C08L63/00, C09K3/10

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	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 2002-88228 A (三井化学株式会社) 2002.03.27 請求項4-5, 13, 15, 17, 21-23、段落【0072】 - 【0087】、【0157】- 【0160】、【0177】- 【0178】、【0271】、【0317】- 【0318】 (ファミリーなし)	1-5, 7-9 6
Y	JP 2004-163766 A (積水化学工業株式会社) 2004.06.10, 段落【0081】- 【0089】 (ファミリーなし)	6

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

23.08.2005

国際調査報告の発送日

06.9.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

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)

藤岡 善行

電話番号 03-3581-1101 内線 3293

2L

3411