

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4854928号
(P4854928)

(45) 発行日 平成24年1月18日 (2012. 1. 18)

(24) 登録日 平成23年11月4日 (2011. 11. 4)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 L 27/16 (2006. 01)

C O 8 L 27/16

C O 8 L 33/04 (2006. 01)

C O 8 L 33/04

B 2 9 C 41/12 (2006. 01)

B 2 9 C 41/12

B 3 2 B 27/30 (2006. 01)

B 3 2 B 27/30

A

C O 8 J 5/18 (2006. 01)

C O 8 J 5/18

C E R

請求項の数 9 外国語出願 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2004-63421 (P2004-63421)
(22) 出願日 平成16年3月8日 (2004. 3. 8)
(65) 公開番号 特開2004-307830 (P2004-307830A)
(43) 公開日 平成16年11月4日 (2004. 11. 4)
審査請求日 平成19年2月14日 (2007. 2. 14)
(31) 優先権主張番号 60/452807
(32) 優先日 平成15年3月7日 (2003. 3. 7)
(33) 優先権主張国 米国 (US)

前置審査

(73) 特許権者 591016862
ローム・アンド・ハース・エレクトロニッ
ク・マテリアルズ, エル. エル. シー,
アメリカ合衆国、マサチューセッツ O 1
7 5 2、マールボロ、フォレスト・ストリ
ート 4 5 5
(74) 代理人 110000589
特許業務法人センダ国際特許事務所
(72) 発明者 チャールズ・アール・シュマンダ
アメリカ合衆国マサチューセッツ州 O 1 5
8 1、ウエストバラ、クロスマン・アペニ
ュー・4

最終頁に続く

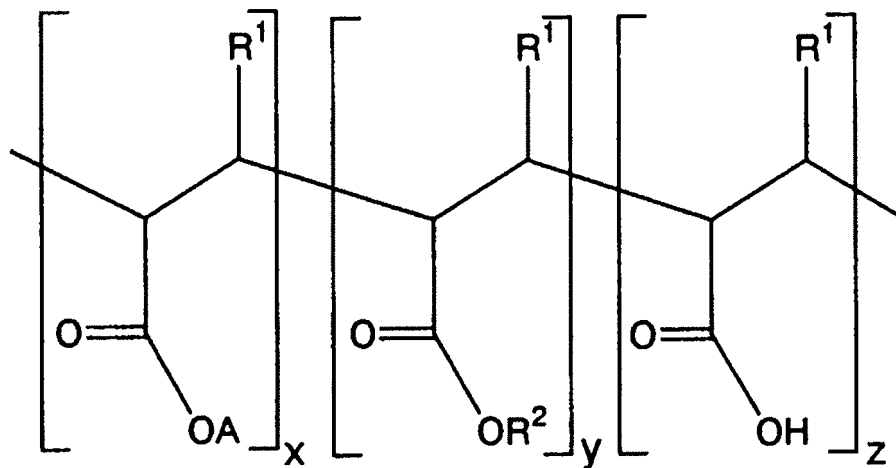
(54) 【発明の名称】 キャスティングされた強誘電性ポリマーフィルム用レベリング剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

強誘電性フィルム先驱物質組成物であって、
フッ化ビニリデン含有ポリマーを含んでいる強誘電性ポリマーまたはプレポリマー、
キャスティング溶媒、および式 (I) :

【化 1】



10

(式中、各 R^1 は独立して、水素またはメチル基であり、

A は $-C R^3 R^4 R^5$ によって表される分岐鎖炭素含有基

(ここで各 R^3 は独立して、水素、置換または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であり、

20

各 R^4 および R^5 は独立して、水素、置換または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であるか、または R^4 および R^5 は一緒になって $C_3 \sim C_8$ シクロアルキル基を形成するが、ただし R^4 および R^5 が各々水素である時、 R^3 は線状アルキル基ではないという条件がある) であり；

R^2 は、置換または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位を含み、ここで、 R^2 、 R^3 、 R^4 、および R^5 上の置換基は、ハロゲン、ヒドロキシル、シアノ、ニトロ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルカルボキシエステル、アシル、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ、カルボキシレート、または上記基の1つまたはそれ以上を含む混合物であってもよく；

30

$x + y + z = 100$ モル%であり、

x および y は各々独立して、 $10 \sim 70$ モル%であり；かつ

z は $0.01 \sim 40$ モル%である)

によって表わされる(メタ)アクリルコポリマーを含むレベリング剤を含んでいる、前記組成物。

【請求項 2】

A は、式 $-CH_2 C R^6 R^7$ を有し、 R^6 および R^7 は各々独立して、 $C_1 \sim C_{10}$ 線状または分岐アルキル、アルケニル、またはアルカリール基、または $C_3 \sim C_{10}$ シクロアルキルまたはシクロアルケニル基である、請求項 1 記載の組成物。

40

【請求項 3】

強誘電性ポリマーフィルムの形成方法であって、

フッ化ビニリデン含有ポリマーを含んでいる強誘電性ポリマー、キャストリング溶媒、および請求項 1 記載のレベリング剤を含むキャストリング組成物を、基体上に配置する工程、および

このキャストリング溶媒組成物の少なくとも一部分を除去して、強誘電性ポリマーフィルムを生成する工程、

を含む前記方法。

【請求項 4】

50

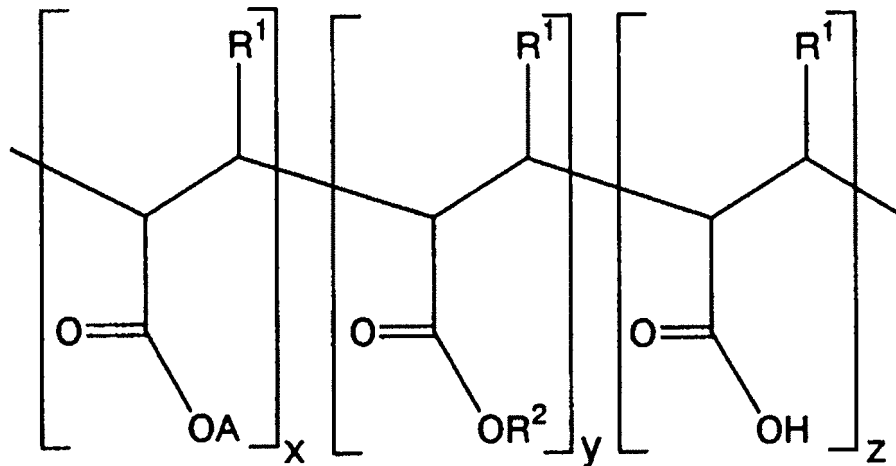
この強誘電性ポリマーフィルムが、300オングストローム未満の原子間力顕微鏡法の粗さ、3未満の多分散度、および90 超のキュリー転移温度を有する、請求項3記載の方法。

【請求項5】

強誘電性ポリマーフィルムであって、

フッ化ビニリデン含有ポリマーを含んでいる強誘電性ポリマー；および式(I)：

【化2】



(式中、各R¹は独立して、水素またはメチル基であり、

Aは-CR³R⁴R⁵によって表される分岐鎖炭素含有基

(ここで各R³は独立して、水素、置換または非置換C₁~C₂₀直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であり、

各R⁴およびR⁵は独立して、水素、置換または非置換C₁~C₂₀直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であるか、またはR⁴およびR⁵は一緒になってC₃~C₈シクロアルキル基を形成するが、ただしR⁴およびR⁵が各々水素である時、R³は線状アルキル基ではないという条件がある)であり；

R²は、置換または非置換C₁~C₂₀直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位を含み、ここで、R²、R³、R⁴、およびR⁵上の置換基は、ハロゲン、ヒドロキシル、シアノ、ニトロ、C₁~C₁₂アルキルカルボキシエステル、アシル、C₁~C₁₂アルコキシ、カルボキシレート、または上記基の1つまたはそれ以上を含む混合物であってもよく；

x + y + z = 100モル%であり；

xおよびyは各々独立して、10~70モル%であり；かつ

zは0.01~40モル%である)

によって表わされる(メタ)アクリルコポリマーを含むレベリング剤を含んでいる、前記フィルム。

【請求項6】

請求項5記載のフィルムを含んでいるデータ処理デバイス。

【請求項7】

このフィルムが複数の電極間に配置されている、請求項6記載のデータ処理デバイス。

【請求項8】

基体上に配置された請求項5記載の強誘電性ポリマーフィルムを含んでいる積層膜。

【請求項9】

請求項 8 記載の積層膜を含んでいるデータ処理デバイス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、強誘電性ポリマーフィルムの形成に使用するためのレベリング剤組成物およびこれから形成されたフィルム、特にデータ処理デバイスへの使用に適した強誘電性ポリマーフィルムに関する。

【背景技術】

【0002】

強誘電体は、外部電界を加えることによって永久電気分極を与えることができる一種の誘電体である。データ処理デバイスにおける強誘電体の使用は、Gudensenらの米国特許出願第US2002/0044480号に開示されている。これは、データ記憶媒体(data-carrying medium)として強誘電体の薄膜を含んでいる強誘電性データ処理デバイスを目的としている。このフィルムは、無機であってもよく、セラミック材料、ポリマー、または液晶であってもよい。データ処理デバイスにおける強誘電性ポリマーの使用はまた、例えばY. Tajitsuら、「フッ化ビニリデン/トリフルオロエチレンコポリマーの構造に対するこれらのスイッチング特徴の研究(Investigation of Switching Characteristics of Vinylidene Fluoride/Trifluoroethylene Copolymers in Relation to Their Structures)」、(Japanese Journal of Applied Physics, 第26巻、pp. 554~560、1987)によって記載されている。

【0003】

あるいくつかのフッ化ビニリデンポリマーのみが強誘電性であること、および強誘電性およびほかの特性の存在は、少なくとも一部は、ポリマー特徴、例えばポリマー組成、構造、分子量、分子量分布、フィルムの熱履歴、およびこのフィルムを形成するために用いられる溶媒によることは知られている。例えばCho、Polymer、第15巻、p. 67(1991)による論文の要約参照。最近、Tashiroらは、Macromolecules、第35巻、p. 714(2002)において、様々なフッ化ビニリデン結晶形態の詳細な構造分析を行なった。フッ化ビニリデンポリマーは、4つの異なる結晶形態で発生し、すべて単斜晶系である。理論によって縛られる意図はないが、形態Iは本質的に、 CF_2 双極子が結晶b軸に沿って互いに平行な極性構造を形成する平面ジグザグ鎖を有する。これらの鎖は密に詰まっており(packaged)、大きい結晶を形成する傾向がある。形態IIにおいて CF_2 双極子は、b軸に沿って逆平行モードに詰められている。したがって形態IIは、非極性であり、形態Iよりも密に詰まっていない。形態IIIもまた密に詰まった極性単位格子であり、高度に極性の(しかしながら必ずしも水素結合でない)溶媒、例えばジメチルアセトアミドまたはジメチルホルムアミドからキャストリングすることによって得られる。形態IIIはまた、形態IIまたはIVを高温でアニリングすることによって得ることもできる。最後に形態IVは、鎖が平行モードで詰まっている極性構造である。形態IVはまた、強誘電特性の観点からも望ましい形態であるが、その理由は、これが形態IIと相互転換しうるからである。フッ化ビニリデンのコポリマーは同様な特徴を示す。

【0004】

強誘電性ポリマーフィルムは、次の方法を包含する多様な方法によって形成することができる。すなわち、溶媒中に溶解された強誘電性ポリマーフィルム先駆物質を含んでいる組成物を基体上にキャストし、ついで溶媒を除去してこのフィルムを生成する方法によってである。しかしながら、基体の不十分な湿潤、組成変化、および溶媒の蒸発によって生じる自由エネルギー勾配は、結果としてフィルム中の欠陥を生じることがあり、これには、溶媒が蒸発する時のフィルム中のベナード(Bernard)対流セルの形成の結果生じるみかん肌(orange peel)、およびその他の欠陥が含まれる。例えば

10

20

30

40

50

、C. M. Hanson; P. E. Pierce; Cellular Convection in Polymer Coating - An Assessment、12 Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Develop. 1973、p. 67 参照。

【0005】

【特許文献1】米国特許出願第2002/0044480号明細書

【非特許文献1】Y. Tajitsuら、「フッ化ビニリデン/トリフルオロエチレンコポリマーの構造に対するこれらのスイッチング特徴の研究 (Investigation of Switching Characteristics of Vinylidene Fluoride/Tri fluoroethylene Copolymer s in Relation to Thier Structures)」、(Japanese Journal of Applied Physics, 第26巻、pp. 554~560、1987)

10

【非特許文献2】Cho、Polymer、第15巻、p. 67 (1991)

【非特許文献3】Tashiroら、Macromolecules、第35巻、p. 714 (2002)

【非特許文献4】C. M. Hanson; P. E. Pierce; Cellular Convection in Polymer Coating - An Assessment、12 Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Develop. 1973、p. 67

20

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

ベナード対流セルに加えて、表面形態学におけるその他のバリエーションは、コーティングプロセスの間、特に結晶性ポリマー中に生じうる。例えば溶媒の蒸発の間、フィルムの表面は、もとの溶液のものよりもかなり高い表面自由エネルギーを有しうる。結晶形成のための臨界核のサイズは通常、初期のフィルムの表面エネルギーと相関関係がある。少数の方の比較的大きい組織化された球晶領域 (spherulitic crystal domain) は一般に、高い表面エネルギーの区域で得られ、多数の方の小さいあまり組織化されていない結晶領域は、低い表面エネルギーの区域に生じる。電極が強誘電体と接触している電子デバイスに強誘電体を用いられる用途において、結晶領域および電極サイズは、様々なデバイスのポーリングから得られる電気信号が同様になるようなものであるべきである。例えば電極サイズに対して多数の小さい結晶領域は、少数の大きい結晶領域よりも、ポーリングの間に複数のデバイス構造から実質的に同様な電気信号を生じるチャンスが、統計的により良い。フィルム形成の間、したがってアニーリングの間、自由エネルギー勾配の制御は、デバイス性能に影響を与える。

30

【0007】

フィルム形態学の制御に加えて、強誘電性フィルムは、その後の処理工程の間の層間剥離を防ぐのに十分なほど強く接触している1つまたはそれ以上の表面に接着しなければならない。このような層間剥離は例えば、熱サイクリング (thermal cyclin g)、流体中への浸漬、または機械的応力の結果として生じうる。したがってフィルムへの添加剤は、改良された接着、ならびにフィルム形態の制御を与えることが望ましい。

40

ほかの望まれる改良には、強誘電性デバイスの反復ポーリング後の残留分極 (remnant polarization) の減少によって現れるポーリング疲労の減少が含まれる。

【0008】

強誘電性フィルムの不均一性、層間剥離、またはポーリング疲労から生じる欠陥を制御または除去しようとする試みには、フィルム乾燥速度を変更するための補助溶媒の使用、基質のより均質な湿潤を促進するための湿潤剤の使用、または蒸発およびフィルムの硬化の間中、より均一な表面張力を生じるための界面活性剤の使用が含まれる。Linらの米

50

国特許第 6, 340, 720 号において、ラテックスで凝固されたポリフッ化ビニリデンを含んでいるコーティング中の欠陥を減少させるために、レベリング剤が用いられている。このようなレベリング剤の使用は、いくつかの特性を改良しうるが、これらはまた、データ処理デバイスにおける強誘電性ポリマーフィルムの使用にとって重要な特性に悪影響を与えることがある。例えば、溶媒、界面活性剤、およびその他の処理補助剤は、フィルムがその上に形成される支持体へのフィルムの接着を阻害することがあり、望ましくないポリマー結晶形態の形成を促進するか、またはその他の悪影響を有することがある。したがって当業界には、強誘電性ポリマーフィルムの製造のための方法および組成物へのニーズ、特に、高度に再現性があり、フィルム特性の制御を可能にするデータ処理デバイスへの使用に適したフィルムへのニーズが依然として存在する。

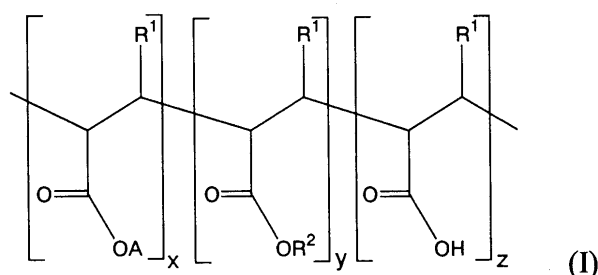
10

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明の 1 つの側面において、強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物は、強誘電性ポリマー、キャストリング溶媒、および式 (I) :

【化 1】



20

(式中、各 R^1 は独立して、水素またはメチル基であり、A は $-\text{C}(\text{R}^3)(\text{R}^4)(\text{R}^5)-$ (ここで各 R^3 は独立して、水素、置換または非置換 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であり、各 R^4 および R^5 は独立して、水素、置換または非置換 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であるか、または R^4 および R^5 は一緒になって $\text{C}_3 \sim \text{C}_8$ シクロアルキル基を形成するが、ただし R^4 および R^5 が各々水素である時、 R^3 は線状アルキル基ではないという条件がある) であり、 R^2 は、置換または非置換 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位を含み、ここで、 R^2 、 R^3 、 R^4 、および R^5 上の置換基は、ハロゲン、ヒドロキシル、シアノ、ニトロ、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$ アルキルカルボキシエステル、アシル、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$ アルコキシ、カルボキシレート、または上記基の 1 つまたはそれ以上を含む混合物であってもよく; $x + y + z = 100$ モル%であり、 x および y は各々独立して、10 ~ 70 モル%であり、かつ z は 40 モル%またはそれ以下である) によって表わされる (メタ) アクリルコポリマーを含むレベリング剤を含んでいる。

30

40

【0010】

もう 1 つの側面において、強誘電性ポリマーフィルムの形成方法は、強誘電性ポリマー、キャストリング溶媒、およびレベリング剤であって式 (I) によって表わされる (メタ) アクリルコポリマーを含むものを含んでいる強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物を、基体上に配置する工程、およびこのキャストリング溶媒の少なくとも一部分を除去して、強誘電性ポリマーフィルムを生成する工程を含む。

【0011】

さらには、強誘電性ポリマー、キャストリング溶媒、およびレベリング剤であって式 (I) によって表わされる (メタ) アクリルコポリマーを含むものを含んでいる強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物から形成されたポリマー材料の層を含む強誘電性ポリマー

50

フィルムが提供される。

【0012】

もう1つの側面において、式(I)の(メタ)アクリルコポリマーを含む強誘電性ポリマーフィルム用の接着性層が提供される。

【0013】

さらにもう1つの側面において、強誘電性ポリマー、キャストリング溶媒、および式(I)によって表わされる(メタ)アクリルコポリマーを含むレベリング剤を含んでいる強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物から形成された強誘電性ポリマーフィルムを含んでいるデータ処理デバイスも提供される。このデバイスにおいて、この強誘電性ポリマーフィルムは、少なくとも第一電極構造および第二電極構造と接触している連続層であり、
10 実質的に相互に平行な帯状電極を含んでいる論理素子アレーを形成し、したがって、これらの電極構造は、相互に実質的に直交するx、yマトリックスを形成し、かつこの電極マトリックスのx電極とy電極との間の交点における強誘電性ポリマーフィルムの一部分が、電気的に連結されてデータ処理デバイスを形成する論理素子アレーの論理素子を形成する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

この強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物は、有機強誘電性ポリマーまたはプレポリマーを含んでいる。強誘電性特性を示し、かつ強誘電性ポリマーフィルムの形成に適している有機ポリマーには、次のものが含まれる。例えば、あるいくつかのポリアミド(例えば奇数(odd-numbered)ナイロン)、および1つまたはそれ以上の重合性モノマーから形成されたエチレン性不飽和ハロゲン含有ポリマー、例えばフッ化ビニリデン、テトラフルオロエチレン、トリフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロペン、塩化ビニリデン、フッ化ビニル、および塩化ビニルである。オリゴマーおよびプレポリマー、例えばポリ(フッ化ビニリデン)およびエチレンテトラフルオロエチレン交互コポリマーも用いることができる。これらの重合性モノマーは、単一で、または2つまたはそれ以上のコモノマーの組合わせとして、例えばターポリマー、テトラポリマーなどとして用いることができる。

【0015】

最終フィルムの特性を調節するために、非ハロゲン化コモノマーもまた、不飽和、ハロゲン含有ポリマー中に存在してもよい。適切な非ハロゲン化コモノマーには、例えばアクリロニトリル、アクリルアミド、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、ブチルメタクリレート、オクチルメタクリレート、メタクリル酸、メチルアクリレート、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、オクチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート、グリシジルアクリレート、アクリル酸、無水マレイン酸、酢酸ビニル、スチレン、アルファ-メチルスチレン、トリメトキシビニルシラン、トリエトキシビニルシラン、ノルボルネン、ブタジエン、およびこれらの上記コモノマーの1つまたはそれ以上を含んでいる混合物が含まれる。

【0016】

非ハロゲン化コモノマーが存在する時、これらは、総ポリマーの50モル%またはそれ未満、一般的には30モル%またはそれ未満、より一般的には20モル%またはそれ未満の量で用いられてもよい。これらが存在する時は一般に、総ポリマーの0.5モル%またはそれより多く、一般的には1モル%またはそれより多く、より一般的には2モル%またはそれより多くの量で用いられてもよい。

【0017】

1つの実施態様において、この強誘電性ポリマーまたはプレポリマーには、任意にトリフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、またはその両方と共重合されたフッ化ビニリデンが含まれる。フッ化ビニリデンは、この強誘電性ポリマーの総重量を基準にして、10~100モルパーセント(モル%)の濃度で存在する。この範囲内で、50モル%またはそれを超えるフッ化ビニリデン濃度を用いることができ、70モル%またはそれを
50

超えるのが好ましい。同様にこの範囲内で好ましいのは、90モル%またはそれ未満のフッ化ビニリデン濃度であり、85モル%またはそれ未満がより好ましい。

【0018】

トリフルオロエチレンが存在する時は一般的に、この強誘電性ポリマーの総重量の90モル%まで含まれる。この範囲内で、10モル%またはそれを超えるトリフルオロエチレン濃度を用いることができ、20モル%またはそれを超えるのが好ましい。同様にこの範囲内で好ましいものは、50モル%またはそれ未満のトリフルオロエチレン濃度であり、30モル%またはそれ未満がより好ましい。ヘキサフルオロプロピレンが存在する時、好ましくは総強誘電性ポリマーの50モル%まで含まれる。10モル%またはそれを超えるヘキサフルオロプロピレン濃度を用いることができ、15モル%またはそれを超えるのが好ましい。

10

【0019】

これらのポリマーまたはプレポリマーの製造のための重合条件はよく知られている。例えば少量の開始剤、例えば有機過酸化物が存在してもよい。ひとたび重合が発生したら、未反応モノマーは、加熱によって、またはポリマーを真空下に配置することによって、適切な溶媒で洗浄することによって、または上記精製工程の少なくとも1つを含む組合せによって除去されてもよい。これらのフィルムを形成するために用いられる強誘電性ポリマーまたはプレポリマーは一般に、5～400キログルトン(kDa)の分子量を有する。この範囲内で、20kDaまたはそれを超える、好ましくは30kDaまたはそれを超える分子量を用いることができるが、200kDaまたはそれ未満が好ましく、100kDaまたはそれ未満がより好ましい。適切な強誘電性ポリマーは、商品として入手可能であり、例えばコ-(フッ化ビニリデントリフルオロエチレン)が、ソルベイ社(Solvay Corporation)から入手しうる。

20

【0020】

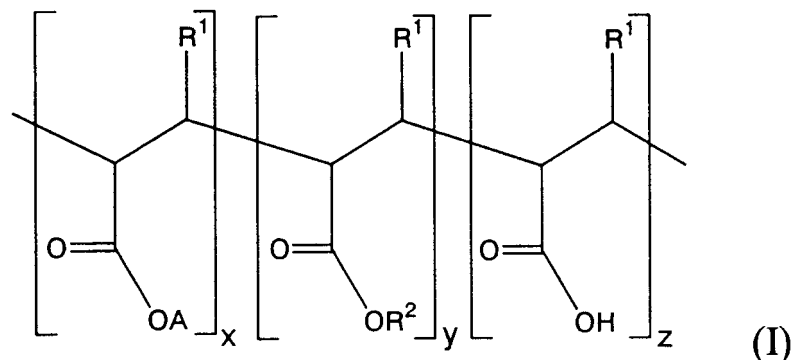
この強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物はさらにレベリング剤も含む。このレベリング剤は、支持体の湿潤、フィルムの支持体への接着を向上させ、欠陥の形成を抑制し、望ましくないポリマー結晶形態の形成を抑制し、表面粗さ、または上記のうちの1つまたはそれ以上の組合せを減少させうる。全体的に、このレベリング剤は、データ処理デバイスへの使用に適した均一な強誘電性ポリマーの生成を補助する。レベリング剤を用いたフィルムの製造はまた、さらに再現性がある。すなわち、より一貫性のある性質を有するフィルムを生成する。

30

【0021】

このレベリング剤は好ましくは、次の一般式：

【化2】



40

(式中、各 R^1 は独立して、水素(-H)またはメチル基である)を有する(メタ)(メタ)アクリルコポリマーを含んでいる。本明細書において用いられている「(メタ)アクリル」とは、アクリル基およびメタクリル基の両方のことを言う。

【0022】

上記式中のAは、 $-\text{C}(\text{R}^3)(\text{R}^4)(\text{R}^5)$ であり、この場合、各 R^3 は独立して、水素、置換

50

または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 線状または枝分かれアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルキルアリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であり、各 R^4 および R^5 は独立して、水素、置換または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 直鎖または分岐鎖アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルカリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位であるか、または R^4 および R^5 は一緒になって $C_3 \sim C_8$ シクロアルキル基を形成するが、ただし R^4 および R^5 が各々水素である時、 R^3 は線状アルキル基ではないという条件がある。Aはしたがって分岐鎖炭素含有基である。好ましくはAは、式 $-CH_2CR^4R^5$ を有し、この場合、 R^4 および R^5 は各々独立して、 $C_1 \sim C_{10}$ 線状または枝分かれアルキル、アルケニル、またはアルカリール基、または $C_3 \sim C_{10}$ シクロアルキルまたはシクロアルケニル基である。より好ましくは R^4 および R^5 は各々独立して、 $C_1 \sim C_6$ 線状または枝分かれアルキルまたはアルケニル基である。

10

【0023】

R^2 は、置換または非置換 $C_1 \sim C_{20}$ 線状または枝分かれアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、アリール、アルキルアリール、アルアルキル、またはヘテロアリール部位である。 R^2 、 R^3 、 R^4 、および R^5 の各々は、強誘電性ポリマーの合成または使用を妨げない基によって置換されてもよい。適切な置換基には、例えばハロゲン（すなわちフッ素、塩素、臭素、ヨウ素）、ヒドロキシル（ $-OH$ ）、シアノ（ $-CN$ ）、ニトロ（ $-NO_2$ ）、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルカルボキシエステル、カルボキシレート（ $-COO^-M^+$ （ここでMは水素またはほかの対イオンである））、または上記基の1つまたはそれ以上を含む混合物が含まれる。

20

【0024】

下付き文字 x 、 y 、および z は、 x 、 y 、および z の合計が、全部で100モル%（すなわち、 $x + y + z = 100$ モル%）になるようなモルパーセント（モル%）を表わす。下付き文字 x および y は各々独立して、10～70モル%の様々なものであるが、 $x + y = 60$ モル%またはそれを超えるという条件がある。

【0025】

下付き文字 z は、40モル%またはそれ未満である。30%またはそれ未満の値が好ましく、20モル%またはそれ未満がさらに好ましい。 z がゼロよりも大きい時、これは0.01モル%の低さであってもよい。

30

【0026】

レベリング剤は好ましくは、先駆物質組成物中に存在する強誘電性ポリマーの総重量を基準にして、0.001～1.0wt%で存在する。この範囲内で、1.0wt%またはそれ未満の濃度が好ましく、0.5wt%またはそれ未満がさらに好ましい。同様にこの範囲内で好ましいのは、0.005wt%またはそれを超える濃度であり、キャストイング組成物中に存在する強誘電性ポリマーの総重量を基準にして、0.05wt%またはそれを超えるのがさらに好ましい。

【0027】

上記（メタ）アクリルポリマーの合成方法は、例えば米国特許第5,621,059号に開示されており、これらの方法は一般に、所望の比におけるモノマー単位のブレンドのバルク重合を含んでいる。モノマーおよび開始剤は、反応の開始時に同時に装入されてもよく、または反応の間に別々に異なる速度で、例えば米国特許第5,876,899号に記載されている種類の制御付加方法を用いて導入されてもよい。あるいはまたモノマーは、反応期間中に、個々にまたは混合して、同じ速度または異なる速度で、ポリマー配列および分布を制御するために反応に添加されてもよい。

40

【0028】

一般的な有機ラジカル開始剤が当業界において知られており、これには次のものが含まれる。例えば過酸化物、例えばジエチルエーテル過酸化物；過酸エステル、例えば *t*-ブチルペルオクトエート；ペルアンハイドライド（*peranhydride*）、例えば過酸化ベンゾイル；ケト化合物；有機硫黄化合物、例えばメチルメルカプタン；トリハロメ

50

タン化合物、例えば 3 - ビス(トリクロロメチル) - 5 - (2' - クロロフェニル) - s - トリアジンおよび 1, 3 - ビス(トリクロロメチル) - 5 - (4' - メトキシフェニル) - s - トリアジン; アゾ化合物; アジド化合物などである。特定のケト化合物には次のものが含まれる。例えば、ジアセチル、ベンゾイン、2 - ヒドロキシ - 2 - メチル - 1 - フェニルプロパン - 1 - オン、1 - (4 - イソプロピルフェニル) - 2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロパン - 1 - オン、4 - (2 - ヒドロキシエトキシ)フェニル - 2 - (ヒドロキシ - 2 - プロピル)ケトン、1 - ヒドロキシシクロヘキシルケトン、2, 2 - ジメトキシ - 2 - フェニルアセトフェノン、2 - ベンジル - 2 - ジメチルアミノ - 1 - (4 - モルホリノフェニル) - ブタン - 1 - オン、ベンゾフェノン、4, 4' - ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン、4, 4' - ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノン、2, 4 - ジエチルチオキサントン、および 3, 3 - ジメチル - 4 - メトキシベンゾフェノンである。アゾまたはアジド化合物の特別な例には、アゾイソブチロニトリル、4 - アジドベンズアルデヒド、4 - アジドアセトフェノン、4 - アジドベンザルアセトフェノン、4 - アジドベンザルアセトン、アジドピレン、4 - ジアゾジフェニルアミン、4 - ジアゾ - 4' - メトキシジフェニルアミン、および 4 - ジアゾ - 3' - メトキシジフェニルアミンなどが含まれる。有機ラジカル開始剤の混合物が用いられてもよい。

【0029】

安定なフリーラジカル開始剤も用いることができる。例えば商品名プロキシル(PROXYL)として販売されている 2, 2, 5, 5 - テトラメチル - 1 - ピロリジニルオキシ; 一般に商品名テンポ(TEMPO)として販売されている 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 1 - ピペリジニルオキシ; 商品名 4 - ヒドロキシ - テンポとして販売されている 4 - ヒドロキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 1 - ピペリジニルオキシ; または Ciba Specialty Chemicals によって商品名 C X A 5 4 1 5 として販売されているビス(1 - オキシル - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)セバケートである。ほかの安定なフリーラジカル開始剤には、次のものが含まれる。すなわち、N - tert - ブチル - 1 - フェニル - 2 - メチルプロピルニトロキシド、N - tert - ブチル - 1 - (2 - ナフチル) - 2 - メチルプロピルニトロキシド、N - tert - ブチル - 1 - ジエチルホスホノ - 2, 2 - ジメチルプロピルニトロキシド、N - tert - ブチル - 1 - ジベンジルホスホノ - 2, 2 - ジメチルプロピルニトロキシド、N - フェニル - 1 - ジエチルホスホノ - 2, 2 - ジメチルプロピルニトロキシド、4 - オクソ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 1 - ピペリジニルオキシ、または 2, 4, 6 - トリ(tert - ブチル)フェノキシである。フリーラジカル開始剤の混合物が用いられてもよい。適切なアクリルポリマーは、Solutia Corporation から商品名 MODA FLOW として入手しうる。

【0030】

この強誘電性ポリマーフィルム先駆物質組成物はさらに、上記のものに加えて、コーティング特性を改良するためにほかの表面活性剤を含んでもよい。上記(メタ)アクリル表面活性剤と追加の表面活性剤との組み合わせは、相乗的特性、例えば個々の表面活性剤を含んでいる配合物からは同じ程度まで得られない、接着の改良、フィルム形態の改良、またはより低いポーリング疲労のうちの少なくとも 1 つを示しうる。適切な追加の表面活性剤には、例えばポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレングリコールジラウレート、ポリオキシエチレングリコールジステアレート、ならびにオルガノフルオロ界面活性剤が含まれ、これらの界面活性剤には、商品名 Megafax F171、F172、F173、F471、R-07、R-08 (大日本インキ化学工業株式会社)、Fluorad FC171、FC430、FC431 (3M社)、アサヒガード(ASAHI GUARD)AG710、Surflon S-382、SC-101、SC-102、SC-103、SC-104、SC-105、SC-106 (旭硝子株式会社)、KP341 (信越化学工業株式会社)、Polyflow No. 75、No. 95 (共栄社化学株式会社)、Silwet L-7604 (Witco Chemical

10

20

30

40

50

al Corp.)、およびNBX-7、NBX-8、およびNBX-15(株式会社ネオス)という商品として入手しうるものが含まれる。

【0031】

強誘電性ポリマーフィルムは、溶媒および分散液を用いる湿潤方法によって先駆物質組成物から形成されてもよい。このような方法には、例えばキャストリング、ブレードコーティング、ロールコーティング、スピンコーティング、浸漬、およびスプレーコーティング、ならびに印刷方法、例えば平板印刷、凸版印刷、凹版、多孔板印刷、スクリーン印刷、および転写が含まれる。さらにほかの湿潤方法には、電気化学方法、例えば電着、電気重合、ミセル電解(例えば第JP-A-63-243298号参照)、および水上に形成された単分子フィルムを用いたラングミュアブロージェット方法が含まれる。強誘電性ポリマー先駆物質がフィルムに形成される方法はまた、上記方法のうちの少なくとも1つを含む組合わせを包含してもよく、スピンコーティング法がさらに好ましい。キャストリングおよびその他の湿潤方法において、この強誘電性ポリマー先駆物質組成物は、キャストリング溶媒中に溶解または分散されて、キャストリング組成物を形成する。適切な溶媒は、単一溶媒または混和性溶媒の混合物を包含しうるが、これらはある範囲の濃度を通じて、好ましくは先駆物質組成物中に存在しうるほかの溶質とともに、このポリマーを溶解(または懸濁)し、溶液(または懸濁液)として保持するものである。この溶媒は一般的に、この先駆物質組成物を少なくとも4重量%(wt%)、より一般的には8wt%超、さらにより一般的には10wt%超を含む溶液(または分散液)を供給するのに効果的である。この溶媒はさらに、蒸発して、滑らかで好ましくは欠陥を含まないフィルムを形成するものである。さらには生産という観点から、この溶媒は、例えば38(100°F)よりも高い引火点を有することによって、使用者に対して有意な健康または安全の問題を引き起こさないことが好ましい。

【0032】

有用なキャストリング溶媒は多くの場合、100またはそれを超える沸点を有する。したがって100またはそれを超える沸点を有する溶媒および溶媒混合物が好ましい。低欠陥フィルムを生じる有用なキャストリング溶媒は、n-ブチルアセテートのものに等しいかまたはそれ未満の、25における相対蒸発速度を有する。したがってn-ブチルアセテートのものに等しいかまたはそれ未満の、25における蒸発速度を有する溶媒が好ましい。適切な溶媒には例えば、2-ヘプタノン、ジエチルカーボネート、イソブチルイソブチレート、エチルベンゼン、1-デカノール、1-イソプロピル-2-メチルイミダゾール、エチルラクトレート、2-ヘキシルアセテート、ジエチレングルコールブチルエーテルアセテート、ジエチルケトン、1-メトキシ-2-ブタノール、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート、および上記溶媒の少なくとも1つを含む混合物が含まれる。

【0033】

溶液は、例えば珪藻土などの物質、または繊維性材料、例えばセルロース繊維を含んでいる濾過ケーキを用いるデプス濾過(depth filtration)によって濾過することができる。あるいはまた、またはこれに加えて、溶液は、例えば適合性メディア、例えばポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、ナイロンなどを有し、かつ用途によって必要とされる0.01~1.0μm(マイクロメートル)絶対(absolute)の濾過等級を有する、商品として入手しうる絶対フィルターを用いる絶対濾過によって濾過することもできる。

【0034】

実際、このフィルムは、上記皮膜形成方法の1つまたはそれ以上によってキャストリング組成物から形成される。例えばスピンキャストリングにおいて、この皮膜形成ポリマーおよび任意添加剤1~10重量パーセント(wt%)を含む溶液が、15~30の温度で1分あたり500~10,000回転(RPM)で回転する基体に塗布される。このスピンコーティングされたフィルムはついで、80~150で加熱される。例えばホットプレートでバークされる。

【0035】

上記レベリング剤を用いて形成されたフィルムは、所望の最終用途に応じて調節しうる改良された特性を有する。これらのフィルムは、原子間力顕微鏡法 (AFM) を用いて平均平方偏差として測定された場合、300 オングストローム () またはそれ未満の平均粗さを有し、150 またはそれ未満が好ましく、100 またはそれ未満がさらに好ましく、75 またはそれ未満が最も好ましい。1つの実施態様において、表面粗さは1 ~ 100 である。上記レベリング剤を用いて形成されたフィルムは、レベリング剤を用いずに生成されたフィルムと比較して、減少した粗さを有する。これは、再現性、信頼性、減少したポーリング疲労、良好な電極接触、およびデータ処理デバイスにおける密な充填 (packing) にとって望ましい。

10

【0036】

これに加えて、この強誘電性ポリマーフィルムは、AFMによって測定した場合、1 ~ 10 ナノメートルの平均結晶領域 (crystal domain size) サイズを有する。この範囲内では、8 ナノメートルまたはそれ未満の平均領域サイズが好ましく、6 ナノメートルまたはそれ未満がより好ましく、2 ナノメートルまたはそれ未満がさらに好ましい。さらには上記レベリング剤を用いて形成されたフィルムは、レベリング剤を用いずに生成されたフィルムと比較して、減少した平均領域サイズを有する。これは、再現性、信頼性、減少したポーリング疲労、良好な電極接触、およびデータ処理デバイスにおける密な充填にとって望ましい。

【0037】

20

多様なほかのフィルム特性は、上記レベリング剤の適切な選択および使用によって調節することができる。これらの特性には、多分散性、ヒステリシスに関連した特性 (例えば飽和ポテンシャル、保磁力 (coercive field strength)、および誘電率)、信頼性 (例えば疲労、老化、絶縁膜経時破壊、インプリント、および緩和)、動的特性 (例えば強誘電性スイッチングタイム)、および熱力学特性 (例えばフィルムのキュリー転移温度) が含まれる。

【0038】

これらの強誘電性ポリマーフィルムは、1 から、3 またはそれ未満、好ましくは2 またはそれ未満の多分散度を有していてもよく、1.5 またはそれ未満がさらに好ましく、1.2 またはそれ未満が最も好ましい。

30

【0039】

ヒステリシスは、強誘電性ポリマーフィルムに作用する電界が、既に誘導された状態から変更される時に観察される分極作用のラグgingまたは遅延である。ヒステリシスループの形状および規模は、特定の強誘電体の特徴である。このヒステリシスは、観察された分極 (P) 対 (verses) 加えられた電界 (E) の規模のプロットとしてグラフで示することができる。ヒステリシスループの形状および規模は、ある特定の強誘電体の特徴である。例えば電界が増加するにつれて、フィルムの結晶性領域は、この電界とともに配向される。それ以上の再配向が発生しない時、曲線は平らになる。E = 0 における分極軸に対して伸ばされた線の交点における分極値は、飽和分極 (P_{sat} と呼ばれる) である。ヒステリシスループ上の E = 0 における分極の規模は、残留分極 (P_r と呼ばれる) である。

40

【0040】

強誘電性ポリマーフィルムの残留分極と飽和分極との差は、フェドースフ (Fedosov) にしたがって測定することができる (「分極のスイッチングの間の強誘電性ポリマーの電気特性 (Electrical Properties of Ferroelectric Polymers During the Switching of Polarization)」, Sergiy Fedosov; <http://www.tu-darmstadt.de/fb/ms/fg/em/Ferroelektrika.pdf> 参照)。好ましい差は、1 平方メートルあたり 0.1 ~ 70 ミリクーロン (mC/m²) である。この範囲内で、50 mC/m² またはそれ未満の差が好ましく、2

50

5 mC/m^2 またはそれ未満がさらに好ましい。保磁力は、ヒステリシスループの水平交点 (E_c と呼ばれる) として規定される。好ましくはこの強誘電性ポリマーフィルムは、例えば純粋なフッ化ビニリデンポリマーと比較した場合、さらに正方形のヒステリシスループに合致した、1メートルあたり $20 \sim 80$ メガボルト (MV/m) の保磁力を有する。同様にこの強誘電性ポリマーフィルムは好ましくは、Christieら、J. Polymer Sci.: Part B、第35巻、p. 2671、(1997) にしたがって測定した場合、 $20 \sim 80 \text{ MV/m}$ の保磁力を有する。この範囲内で、 70 MV/m またはそれ未満の保磁力が好ましく、 50 MV/m またはそれ未満がさらに好ましい。強誘電性ポリマーフィルムのもう1つの特性は、微分誘電率 (differential permittivity) であり、これは曲線上のいずれかの地点で測定されたヒステリシスループの傾斜である。 E_c におけるこの強誘電体の微分誘電率は好ましくは、1ボルトにつき1メートルあたり $0.5 \sim 15$ ナノクーロン ($\text{nC/m} \cdot \text{V}$) である。この範囲内で、1またはそれを超える微分誘電率が好ましく、 $2.5 \text{ nC/m} \cdot \text{V}$ またはそれを超えるのがさらに好ましい。

10

【0041】

知られているように、強誘電性状態から常誘電性状態へのポリマーの変換は、ポリマーフィルムの強誘電特性を破壊しうる。これらの同じ特性は、ポリマーの強誘電性状態へのその後の転換の時に再び現れるようにすることができる。熱力学的状態のこのような変化は、温度の変化によってもたらすことができる。キュリー転移温度は、 T_c と略されることが多いが、これはこの変化が発生する温度である。この強誘電性ポリマーフィルムのキュリー転移温度は、好ましくは 90 よりも高い。 100 またはそれを超えるキュリー転移温度が好ましく、 110 またはそれを超えるのがさらに好ましい。1つの実施態様において、キュリー転移温度は、 $90 \sim 145$ である。

20

【0042】

強誘電性ポリマーフィルムは、これが最初に調製された形態で用いられてもよく、またはこれは、追加処理工程、例えば架橋、5キロ電子ボルト (keV) 超のエネルギーおよび1平方センチメートルあたり 0.5 マイクロクーリー ($\mu\text{C/cm}^2$) 超の線量を有する電子ビームでの照射、または 20 nm 未満の波長、および1ミリジュール平方センチメートル (mJ/cm^2) 超の線量を有するx線での照射を受けてもよい。このフィルムはまた、1つまたはそれを超える軸に沿ってストレッチされてもよい。例えば $100 \sim 130$ の温度で1分から12時間のアニーリングによって熱処理されてもよい。このフィルムは、導電性または半導電性不動態化層、例えばコロイド状グラファイト、導電性ポリマー、例えば一部イオン化されたポリチオフェン、PEDOT-PPS、または一部イオン化されたポリアニリン、または蒸発小分子、例えば2-アミノ-1H-イミダゾール-4,5-ジカルボニトリル、および蒸発ドナー-アクセプター複合体、例えばテトラシアフルヴァレン-テトラシアノキノジメタンでコーティングされてもよく、または無機層、例えばインジウム-錫酸化物を有していてもよい。追加のコンディショニング工程はまた、上記処理の少なくとも1つを含むあらゆる組み合わせを含んでいてもよい。

30

【0043】

この強誘電性ポリマーフィルムの厚さは、最終用途による。例えばこの強誘電性ポリマーフィルムがデータ処理デバイスに用いられることになる場合、このフィルムは好ましくは $15 \sim 300 \text{ nm}$ の厚さを有する。この範囲内で、 20 nm またはそれを超える厚さが好ましい。同様にこの範囲内で好ましいのは、 50 nm またはそれ未満の厚さであり、 25 nm またはそれ未満がさらに好ましい。

40

【0044】

もう1つの実施態様において、(メタ)(メタ)アクリルコポリマーレベリング剤を、強誘電性ポリマーフィルム用接着剤として用いることができる。例えば、積層膜における追加層を形成するために、レベリング剤を用いることができる。このような積層膜は、基体上に配置された(メタ)(メタ)アクリルコポリマーレベリング剤層、およびこのレベリング剤層上に配置された強誘電性ポリマーフィルムを含んでいる。この(メタ)アクリ

50

ルコポリマーレベリング剤層は、例えばキャストイング、またはレベリング剤および溶媒の溶液が基体またはフィルム上に配置される別の湿潤方法によって、基体またはフィルム上に配置することができる。この強誘電性ポリマー先駆物質組成物は、追加の(メタ)アクリルコポリマーレベリング剤を含んでいてもよく、含んでいなくてもよい。この強誘電性ポリマー層は、上記方法によって形成される。

【0045】

この強誘電性ポリマーフィルムまたは積層膜は一般的に、データ処理デバイスに用いられる。これには例えば、G u d e s e nらの米国特許出願番号第US 2 0 0 2 / 0 0 4 4 4 8 0号に記載されている論理素子構成(c o n f i g u r e d)メモリセルが含まれる。例えば、強誘電性ポリマーフィルムが一般的に連続層またはシートとして、帯状電極の第一電極構造と第二電極構造との間に位置しているデータ記憶デバイスである。第一電極構造および第二電極構造は、次のような二次元x、y - マトリックスを形成するように寸法決定され、位置決定され、かつ配置されている。すなわち例えば、x電極がマトリックス中の列であり、y電極がマトリックス中の行であるものである。電極マトリックスのx電極とy電極との間の交点におけるこの強誘電性ポリマーフィルムの部分は、電極の駆動および出力信号の検出のためのそれぞれのドライバーおよび制御回路に電氣的に連結された論理素子を形成し、このようにしてデータ処理デバイスを形成する。このデータ処理デバイスはまた、互いの上に積重ねられ、かつ論理素子アレーの各々の間に備えられている電氣的絶縁材料の1つの層によって互いから電氣的に絶縁されている複数の論理素子アレーを含んでいてもよい。今度はこれらの論理素子アレーの各々の論理素子の各々は、電氣的に連結されてデータ処理デバイスを形成する。

【0046】

適切な電極材料には、例えばアルカリ土類金属、遷移金属、遷移金属酸化物、主要群(main group)金属、第IV族半導体、第III - V族半導体、第II - VI族半導体、主要群酸化物、例えばインジウム錫酸化物(ITO)などを含む半導体、ならびに上記材料の少なくとも1つを含む組合わせ、例えば合金が含まれる。有機半導体も用いることができる。例えばポリアニリン、ポリチオフェン、重合またはオリゴマー化チオフェン誘導体、例えばポリ(2,3 - ジヒドロ - チエノ[3,4 - b][1,4]ジオキシン)、ポリアリーレンビニレン、例えばポリフェニレンビニレンなど、ならびに上記有機半導体の少なくとも1つを含む組合わせ、例えば合金である。この半導体ポリマーの一部酸化または一部還元の場合は、デバイス性能を最適化するために選択することができる。強誘電性ポリマーの周りに配置された電極材料は、同一または異なっているとしてもよく、最適な電子性能を生じるように選択することができる。さらには電極は、複数の導電性層および/または半導電性層を含んでいてもよい。

【0047】

誘電体が強誘電性フィルムにおいて十分に高い電界強さを許容するのに十分な薄さであるかぎり、誘電体、例えば二酸化ケイ素、窒化ケイ素、オキシ窒化ケイ素、窒化チタン、酸化アルミニウム、または非導電性ポリマーが、電極と強誘電性フィルムとの間に挿入されてもよい。

【0048】

(メタ)アクリコポリマーレベリング剤の使用はいくつかの利点を与える。これらの利点には、乾燥中に、基体への強化された接着、ベナード対流セルの形成の抑制、および望ましくない結晶形態の形成の抑制のうちの1つまたは組合わせが含まれる。これらのフィルムはまた、レベリング剤を用いずに形成されたフィルムと比較して、減少した粗さおよび平均領域サイズも有し、これは再現性、減少したポーリング疲労、良好な電極接触、およびデータ処理デバイスにおける密な充填にとって望ましい。

【0049】

本発明はさらに、次の非限定的な実施例によって例証される。これらの実施例において用いられたポリマーは、 $M_n = 125,000$ および $M_w = 167,000$ ダルトンを有する、フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78% / 22%モル / モルコポリマ

10

20

30

40

50

ーであった。

【実施例】

【0050】

実施例1（比較例）

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78% / 22%モル / モルコポリマー（2.7g）を、炭酸ジエチル（97.3g）中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、0.2 μm（マイクロメートル）絶対フィルターを用いて濾過する。

【0051】

ついでこの濾過された溶液を、1分あたり2,500回転（RPM）で30秒間（sec）真空蒸気プライムド（primed）シリコンウエハー上にスピンコーティングし、120℃で60秒間近接ホットプレートでバークし、20℃冷板で30秒間冷却すると、約65ナノメートル（nm）のキャストフィルム厚さを生じる。一般的に大きい球晶領域が明白に認められる。

10

【0052】

約1インチ（2.54cm）長さ×3/4インチ（1.90cm）幅のXカットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。ついで3/4インチ（1.90cm）幅の半透明感圧テープ（3M社によって製造されたスコッチマジックテープ（登録商標）または同様なもの）の3インチ（7.62cm）ストリップを、このXカットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの区域を超えたキャストフィルムの大きい区域が、基体から除去される。

20

【0053】

実施例2（比較例）

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78% / 22%モル / モルコポリマー（2.7g）を、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート（97.3g）中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、0.2 μm絶対フィルターを用いて濾過する。

【0054】

ついでこの濾過された溶液を、2,500RPMで30秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、120℃で60秒間近接ホットプレートでバークし、20℃冷板で30秒間冷却すると、約65nmのキャストフィルム厚さを生じる。一般的にいくつかの小さい球晶領域が明白に認められる。

30

【0055】

約1インチ（2.54cm）長さ×3/4インチ（1.90cm）幅のXカットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。ついで3/4インチ（1.90cm）幅の半透明感圧テープ（3M社によって製造されたスコッチマジックテープ（登録商標）または同様なもの）の3インチ（7.62cm）ストリップを、このXカットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの区域を超えたキャストフィルムの大きい区域が、基体から除去される。

40

【0056】

実施例3

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78% / 22%モル / モルコポリマー（2.7g）を、2-エチルヘキシルアクリレートとエチルアクリレートとの40% / 60%モル / モルコポリマー（0.0108g）とともに、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート（97.289g）中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、0.2 μm絶対フィルターを用いて濾過する。

【0057】

ついでこの濾過された溶液を、2,500RPMで30秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、120℃で60秒間近接ホットプレートでバーク

50

クし、20 冷板で30秒間冷却すると、約65nmのキャストフィルム厚さを生じる。一般的に球晶領域は明白ではない。

【0058】

約1インチ(2.54cm)長さ×3/4インチ(1.90cm)幅のXカットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。ついで3/4インチ(1.90cm)幅の半透明感圧テープ(3M社によって製造されたスコッチマジックテープ(登録商標)または同様なもの)の3インチ(7.62cm)ストリップを、このXカットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの下のキャストフィルムのいくつかの部分が残留する。貼り付けられたテープの境界を越えたフィルムの除去はない。

10

【0059】

実施例4

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78%/22%モル/モルコポリマー(2.7g)を、2-エチルヘキシルアクリレート、エチルアクリレート、およびアクリル酸の40%/50%/10%モル/モル/モルターポリマー(0.0108g)とともに、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート(97.289g)中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、0.2μm絶対フィルターを用いて濾過する。

【0060】

ついでこの濾過された溶液を、2,500RPMで30秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、120 で60秒間近接ホットプレートでベークし、20 冷板で30秒間冷却すると、約65nmのキャストフィルム厚さを生じる。一般的に球晶領域は明白ではない。

20

【0061】

上記のようなXカットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。3/4インチ(1.90cm)幅の半透明感圧テープ(3M社によって製造されたスコッチマジックテープ(登録商標)または同様なもの)の3インチ(7.62cm)ストリップを、このXカットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの下のキャストフィルムの大部分が残留する。貼り付けられたテープの境界を越えたフィルムの除去はない。

30

【0062】

実施例5

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの78%/22%モル/モルコポリマー(2.7g)を、2-エチルヘキシルアクリレート、ブチルアクリレート、およびアクリル酸の40%/50%/10%モル/モル/モルターポリマー(0.0108g)とともに、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート(97.289g)中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、0.2μm絶対フィルターを用いて濾過する。

【0063】

ついでこの濾過された溶液を、2,500RPMで30秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、120 で60秒間近接ホットプレートでベークし、20 冷板で30秒間冷却すると、約65nmのキャストフィルム厚さを生じる。一般的に球晶領域は明白ではない。

40

【0064】

上記のようなXカットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。3/4インチ(1.90cm)幅の半透明感圧テープ(3M社によって製造されたスコッチマジックテープ(登録商標)または同様なもの)の3インチ(7.62cm)ストリップを、このXカットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの下のキャストフィルムの大部分が残留する。貼り付けられたテープの境界を越えたフィルムの除去はない。

50

【 0 0 6 5 】

実施例 6

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの 7 8 % / 2 2 % モル / モルコポリマー (2 . 7 g) を、 2 - エチルヘキシルメタクリレート、エチルメタクリレート、およびメタクリル酸の 4 0 % / 5 0 % / 1 0 % モル / モル / モルターポリマー (0 . 0 1 0 8 g) とともに、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート (9 7 . 2 8 9 g) 中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、 0 . 2 μ m 絶対フィルターを用いて濾過する。

【 0 0 6 6 】

ついでこの濾過された溶液を、 2 , 5 0 0 R P M で 3 0 秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、 1 2 0 で 6 0 秒間近接ホットプレートでベークし、 2 0 冷板で 3 0 秒間冷却すると、約 6 5 n m のキャストフィルム厚さを生じる。一般的に球晶領域は明白ではない。

10

【 0 0 6 7 】

上記のような X カットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。 3 / 4 インチ (1 . 9 0 c m) 幅の半透明感圧テープ (3 M 社によって製造されたスコッチマジックテープ (登録商標) または同様なもの) の 3 インチ (7 . 6 2 c m) ストリップを、この X カットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの下のキャストフィルムの大部分が残留する。貼り付けられたテープの境界を越えたフィルムの除去はない。

20

【 0 0 6 8 】

実施例 7

フッ化ビニリデンとトリフルオロエチレンとの 7 8 % / 2 2 % モル / モルコポリマー (2 . 7 g) を、 2 - エチルヘキシルアクリレートとエチルアクリレートの 4 0 % / 6 0 % モル / モルコポリマー (0 . 0 1 0 8 g) とともに、炭酸ジエチル (9 7 . 2 8 9 g) 中に溶解すると、透明溶液を生じる。その結果生じた溶液を、 0 . 2 μ m 絶対フィルターを用いて濾過する。

【 0 0 6 9 】

ついでこの濾過された溶液を、 2 , 5 0 0 R P M で 3 0 秒間、真空蒸気プライムドシリコンウエハー上にスピンコーティングし、 1 2 0 で 6 0 秒間近接ホットプレートでベークし、 2 0 冷板で 3 0 秒間冷却すると、約 6 5 n m のキャストフィルム厚さを生じる。一般的に球晶領域は明白ではない。

30

【 0 0 7 0 】

上記のような X カットを、このキャストフィルムにおいて、鋭利なカミソリの刃を用いて基体まで切り込む。 3 / 4 インチ (1 . 9 0 c m) 幅の半透明感圧テープ (3 M 社によって製造されたスコッチマジックテープ (登録商標) または同様なもの) の 3 インチ (7 . 6 2 c m) ストリップを、この X カットに貼り付け、コーティング表面から敏速に引き剥がす。一般的に、この貼り付けられたテープの下のキャストフィルムのいくつかの部分が残留する。貼り付けられたテープの境界を越えたフィルムの除去はない。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
H 0 1 B	3/30	(2006.01)	H 0 1 B	3/30	K
H 0 1 B	3/44	(2006.01)	H 0 1 B	3/30	M
H 0 1 B	17/56	(2006.01)	H 0 1 B	3/30	Q
			H 0 1 B	3/44	C
			H 0 1 B	17/56	A

(72)発明者 キャサリン・ビー・スピア - アルフォンソ
 アメリカ合衆国マサチューセッツ州 0 1 7 4 9 , ハドソン , セントラル・ストリート・1 3 6 , エイ・2

(72)発明者 ルージア・ブー
 アメリカ合衆国マサチューセッツ州 0 1 5 4 5 , シュルーズベリー , ヨークシャー・テラス・3 6 , アpartment・2

審査官 阪野 誠司

(56)参考文献 特開 2 0 0 1 - 0 0 1 4 7 8 (J P , A)
 特表 2 0 0 3 - 5 0 1 5 0 7 (J P , A)
 特開平 0 8 - 0 0 3 4 0 6 (J P , A)
 特開平 0 9 - 1 9 9 1 3 0 (J P , A)
 特開 2 0 0 4 - 0 0 2 8 4 5 (J P , A)
 特開昭 6 3 - 1 5 9 4 5 9 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
 C 0 8 L 2 7 / 0 0
 C 0 8 L 1 0 1 / 0 0
 C 0 8 L 3 3 / 0 0
 C 0 8 J 5 / 0 0