

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016 年 2 月 4 日(04.02.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/017191 A1

(51) 国際特許分類:
G02F 1/17 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2015/050378

(22) 国際出願日: 2015 年 1 月 8 日(08.01.2015)

(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 2014-156908 2014 年 7 月 31 日(31.07.2014) JP

(71) 出願人: J S R 株式会社(JSR CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1058640 東京都港区東新橋一丁目 9 番
2 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 木下 芳徳(KINOSHITA, Yoshinori); 〒
1058640 東京都港区東新橋一丁目 9 番 2 号 J
S R 株式会社内 Tokyo (JP). 新木 利治(ARAKI,
Toshiharu); 〒1058640 東京都港区東新橋一丁目 9
番 2 号 J S R 株式会社内 Tokyo (JP). 工藤 和
生(KUDOU, Kazunari); 〒1058640 東京都港区東新
橋一丁目 9 番 2 号 J S R 株式会社内 Tokyo
(JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 S S I N P A T (SSINPAT
PATENT FIRM); 〒1410031 東京都品川区西五反

田七丁目 1 3 番 6 号 五反田山崎ビル 6 階
Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,
CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES,
FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,
IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: DISPLAY ELEMENT, PHOTSENSITIVE COMPOSITION, AND ELECTROWETTING DISPLAY

(54) 発明の名称: 表示素子、感光性組成物およびエレクトロウェットティングディスプレイ

(57) Abstract: The present invention relates to a display element, a photosensitive composition, and an electrowetting display. The display element is provided with a first electrode layer stack, a second electrode layer stack, an accommodation space formed between the first electrode layer stack and the second electrode layer stack, and a partition wall that demarcates the accommodation space. The accommodation space contains at least a polar liquid and a nonpolar liquid that are mutually immiscible. A surface layer that is in contact with the partition wall is present on at least a surface of the first electrode layer stack or of the second electrode layer stack that is in contact with the accommodation space, and the absolute value of the difference between the linear expansion coefficients of the partition wall and the surface layer is 150 ppm/K or less.

(57) 要約: 本発明は、表示素子、感光性組成物およびエレクトロウェットティングディスプレイに関し、該表示素子は、第 1 電極層スタックと、第 2 電極層スタックと、前記第 1 電極層スタックおよび前記第 2 電極層スタック間に形成された收容空間と、前記收容空間を区画する隔壁とを備え、前記收容空間には、少なくとも、互いに非混和性の極性液体と無極性液体とが含まれ、前記第 1 電極層スタックと第 2 電極層スタックの少なくとも一方の前記收容空間に接する面には、前記隔壁に接する表面層が存在し、前記隔壁と表面層との線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である。



WO 2016/017191 A1

明 細 書

発明の名称：

表示素子、感光性組成物およびエレクトロウェットティングディスプレイ
技術分野

[0001] 本発明は、表示素子、感光性組成物およびエレクトロウェットティングディスプレイに関する。

背景技術

[0002] エレクトロウェットティング現象は、例えば、疎水性表面を有する電極上の非混和性の極性液体および無極性液体（通常着色されている）に電圧を印加することで、前記疎水性表面の極性液体（無極性液体）に対する接触角が変化することを利用した現象である。

通常、この無極性液体は、隔壁によって区画された空間内に封入される。

[0003] このエレクトロウェットティング現象を利用した素子は、高い輝度およびコントラスト比、大きい視野角ならびに速いスイッチ速度等を示し、また、この現象を利用した表示素子は、フロントまたはバックライトを必要としないため、消費電力が比較的低い。このため、該素子は、様々な光応用分野、例えば、光ファイバー用光スイッチ、カメラまたは誘導装置用光シャッターもしくはフィルター、光ピックアップ素子、光導波路材料およびビデオディスプレイ 픽セルに利用されている。

[0004] 例えば、特許文献 1～2 には、このような現象を利用した表示素子が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特表 2013-542465 号公報

特許文献2：特開 2013-92701 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 前記表示素子は、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態が変化することで、文字や図形等を表示するため、隔壁によって区画された空間内に封入された無極性液体が他の空間に漏れ出したりすると、適切な表示ができなくなる傾向にある。

従って、隔壁によって区画される空間は、無極性液体が他の空間に漏れ出さないような空間であることが求められている。

[0007] また、前記表示素子は、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態が変化することで、文字や図形等を表示するため、印加される電圧の有無による該液体の存在状態の変化がスムーズに行われることが望まれる。表示素子の長寿命化の要求に伴い、この液体の存在状態の変化が長期間安定して行われることも求められている。

[0008] しかしながら、従来の表示素子には、これらの要求を満足するためにさらなる改良の余地があった。

[0009] 本発明は、前記要求に鑑みてなされたものであり、隔壁と該隔壁に接する層との間に、クラックや剥離が生じにくく、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることが可能な表示素子を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0010] このような状況のもと、本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、第1電極層スタックと、第2電極層スタックと、互いに非混和性の極性液体および無極性液体を含む、前記第1電極層スタックおよび前記第2電極層スタック間に形成された収容空間と、前記収容空間を区画する隔壁とを備える表示素子において、該隔壁と、前記第1電極層スタックと第2電極層スタックの少なくとも一方の前記収容空間に接する面に存在する、前記隔壁に接する表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が所定の範囲にあることで、前記の課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

本発明の構成例は以下の通りである。

[0011] [1] 第1電極層スタックと、第2電極層スタックと、前記第1電極層

スタックおよび前記第2電極層スタック間に形成された収容空間と、前記収容空間を区画する隔壁とを備え、

前記収容空間には、少なくとも、互いに非混和性の極性液体と無極性液体とが含まれ、

前記第1電極層スタックと第2電極層スタックの少なくとも一方の前記収容空間に接する面には、前記隔壁に接する表面層が存在し、

前記隔壁と表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である、表示素子。

[2] 前記隔壁の熱線膨張係数は、 $0.1 \sim 150\text{ ppm/K}$ である、

[1]に記載の表示素子。

[0012] [3] 前記隔壁は、感光性組成物から得られる膜である、[1]または[2]に記載の表示素子。

[0013] [4] 前記隔壁は、ネガ型感光性組成物から得られる膜である、[1]～[3]のいずれかに記載の表示素子。

[5] 前記ネガ型感光性組成物は、アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含む、[4]に記載の表示素子。

[0014] [6] 前記架橋剤は、エチレン性不飽和基含有化合物、エポキシ基またはオキセタニル基含有化合物およびアルコキシアルキル基含有化合物からなる群より選ばれる少なくとも1つの化合物である、[5]に記載の表示素子。

[0015] [7] 前記アルカリ可溶性重合体は、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有する化合物である、[5]または[6]に記載の表示素子。

[0016] [8] 前記アルカリ可溶性重合体が、アクリル樹脂、ポリイミド、ポリベンゾオキサゾール、ポリシロキサン、ポリオレフィン、カルド骨格を有する樹脂、およびノボラック樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1つの重合体である、[5]～[7]のいずれかに記載の表示素子。

[0017] [9] 前記アルカリ可溶性重合体の重量平均分子量が $1000 \sim 100$

000である、[5]～[8]のいずれかに記載の表示素子。

[0018] [10] 第1電極層スタックと、第2電極層スタックと、前記第1電極層スタックおよび前記第2電極層スタック間に形成された、互いに非混和性の極性液体および無極性液体を含む収容空間、を区画する隔壁であって、

前記第1電極層スタックと第2電極層スタックの少なくとも一方の前記収容空間に接する面に存在し、かつ、隔壁に接する表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である隔壁、

を形成するための、

感光性組成物。

[0019] [11] アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含むネガ型の組成物である、[10]に記載の感光性組成物。

[0020] [12] [1]～[9]のいずれかに記載の表示素子を含む、エレクトロウエティングディスプレイ。

[13] カラーフィルタ層を含む、[12]に記載のエレクトロウエティングディスプレイ。

発明の効果

[0021] 本発明によれば、隔壁と該隔壁に接する層との間に、クラックや剥離が生じにくく、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることが可能な表示素子を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]図1は、本発明の表示素子の一例を示す断面概略図である。

[図2]図2は、実施例で得られた隔壁（格子状パターン化塗膜）の概略平面図である。

発明を実施するための形態

[0023] 《表示素子》

本発明に係る表示素子は、例えば、図1で表され、第1電極層スタック11と、第2電極層スタック12と、前記第1電極層スタック11および前記

第2電極層スタック12間に形成された收容空間16と、前記收容空間16を区画する隔壁13とを備え、

前記收容空間16には、少なくとも、互いに非混和性の極性液体15と無極性液体14とが含まれ、

前記第1電極層スタック11と第2電極層スタック12の少なくとも一方の前記收容空間に接する面には、前記隔壁に接する表面層（図示せず）が存在し、

前記隔壁13と表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である。

[0024] 前記隔壁と表面層との熱線膨張係数の差の絶対値は、 150 ppm/K 以下であり、好ましくは 130 ppm/K 以下であり、より好ましくは 110 ppm/K 以下であり、特に好ましくは 100 ppm/K 以下である。該熱線膨張係数の差の絶対値は、具体的には、下記実施例に記載の方法で測定することができる。

[0025] 熱線膨張係数の差の絶対値が前記範囲にあると、隔壁と該隔壁に接する表面層との間に、クラックや剥離が生じにくく、特に、表示素子を高温および低温下で使用したとしても、このようなクラックや剥離が生じにくい。このため、本発明によれば、無極性液体が他の空間に漏れ出さないような收容空間を有し、耐久性や表示性に優れる表示素子を得ることができる。また、熱線膨張係数の差の絶対値が前記範囲にあると、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることが可能な表示素子を得ることができる。

なお、本発明において、隔壁と電極層スタックとを接着材等を用いて接着させる場合があるが、この場合、前記表面層は、接着材層ではなく、電極層スタックの前記收容空間に接する面に存在する層のことをいう。

[0026] 図1では、第1電極層スタック11の前記收容空間16に接する面には表面層が存在し、該表面層は、疎水性層である。このため、表示素子10において、電圧を印加しない場合（図1の「turn off」）には、無極性液体（着

色液体) 14 は、第1電極層スタック11表面を覆うように平らに存在する。一方、この表示素子10に、電圧を印加した場合(図1の「turn on」)、無極性液体14は、隔壁13付近に略半球状となって存在する。

このように、本発明の表示素子は、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態が変化し、着色した無極性液体を用いることで、例えば、着色状態と透明状態とを表すことができる。

なお、本発明の表示素子に印加される電圧は、無極性液体の存在状態を変化させることができる程度の電圧であれば特に制限されない。

[0027] 本発明の表示素子は、前記收容空間を4つの隔壁等で区画した1つの画素領域(セル)を有する素子であってもよいが、通常は、前記收容空間を複数の隔壁で区画した複数の画素領域を有する素子であり、各画素領域は、表示素子の表示面側でフルカラー表示が可能になるようにそれぞれ形成されている。そして、画素領域ごとに、エレクトロウェット現象にて無極性液体の存在状態を変化させることで、表示面側での表示色を変更することができる。

[0028] <隔壁>

前記隔壁は、第1電極層スタックおよび第2電極層スタック間に形成された收容空間を区画する。前記隔壁は、通常、連続して存在する画素領域(セル)において、隣接する画素領域間で、無極性液体の行き来を妨げる役割を果たす壁であれば特に制限されない。

従って、前記隔壁は、図1に示すように、第1電極層スタック11および第2電極層スタック12の両方に接していてもよいが、図1に示すように、無極性液体14が收容空間16の第1電極層スタック11側に存在する場合には、第1スタック11側のみに存在し、第2電極層スタック12に接していなくてもよい。

なお、前記隔壁が、第1電極層スタックや第2電極層スタックと接する場合、第1電極層スタックや第2電極層スタックと一体化していてもよく、第1電極層スタックや第2電極層スタックに接着していてもよい。

[0029] 前記隔壁の熱線膨張係数は、好ましくは $0.1 \sim 150 \text{ ppm/K}$ であり、より好ましくは $0.1 \sim 140 \text{ ppm/K}$ であり、さらに好ましくは $0.1 \sim 120 \text{ ppm/K}$ であり、特に好ましくは $0.1 \sim 100 \text{ ppm/K}$ である。該熱線膨張係数は、具体的には、下記実施例に記載の方法で測定することができる。

隔壁の熱線膨張係数が前記範囲にあると、隔壁と該隔壁に接する層との間に、クラックや剥離が生じにくい表示素子が得られるのみならず、表示素子に印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることができる。

[0030] このような熱線膨張係数を有する隔壁は、該隔壁を形成する組成物を適宜調整すること、具体的には、該組成物に用いる、架橋性モノマーの使用量、重合体および架橋剤の種類や割合を適宜調整したり、無機フィラーの使用量を適宜調整することで得ることができる。例えば、架橋性モノマーの使用量を多くすること、重合体に対する架橋剤の使用量を多くすること、または、無機フィラーの使用量を多くすることで低熱線膨張係数の隔壁を得ることができる。

[0031] 前記隔壁の高さ（第1電極層スタックと第2電極層スタックの間隔方向の長さ、図1の上下方向の長さ）は、各画素領域間における無極性液体の行き来を妨げる役割を果たすことのできる長さであれば特に制限されない。

また、前記隔壁の厚み（第1電極層スタックと第2電極層スタックの間隔方向と略垂直方向の長さ、図1の左右方向の長さ）も、無極性液体の行き来を妨げる役割を果たすことのできる長さであれば特に制限されないが、隔壁の強度等の点から、 $1 \sim 50 \mu\text{m}$ であり、好ましくは $5 \sim 40 \mu\text{m}$ である。

[0032] 前記隔壁は、一層の膜であってもよく、BM（ブラックマトリクス）層、補強層または表面被覆層等を有する積層体であってもよい。また、前記隔壁は、穴の開いていない膜でもよく、格子状やスリット状に穴の開いた膜であってもよい。

[0033] 〔感光性組成物〕

前記隔壁は、收容空間を複数の隔壁で区画した複数の画素領域を有する表示素子を容易に作成することができる等の点から、感光性組成物から得られる膜であることが好ましい。

また、前記隔壁は、得られる隔壁における熱線膨張係数が前記範囲となるように、成分を調整した組成物から得られる膜であることがより好ましい。このような組成物を用いることで、クラックや剥離が生じにくく、印加される電圧の有無により、無極性液体の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることが可能な表示素子を得られるのみならず、所望の形状の隔壁を容易に形成することができる。

[0034] 前記感光性組成物としては、ポジ型感光性組成物であってもよく、ネガ型感光性組成物であってもよいが、收容空間を複数の隔壁で区画した複数の画素領域を有する表示素子を容易に作成することができ、長期にわたり表示性の低下が起こりにくい表示素子を得られる等の点から、ネガ型感光性組成物であることが好ましい。

[0035] 前記感光性組成物としては、特に制限されないが、長期にわたり性質の変化が小さい隔壁が得られる等の点から、アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含む組成物が好ましく、このような組成物としては、例えば、特開2006-154434号公報や特開2007-293306号公報に記載の組成物が挙げられる。

[0036] 感光性組成物は、

第1電極層スタックと、第2電極層スタックと、前記第1電極層スタックおよび前記第2電極層スタック間に形成された、互いに非混和性の極性液体および無極性液体を含む收容空間、を区画する隔壁であって、

前記第1電極層スタックと第2電極層スタックの少なくとも一方の前記收容空間に接する面に存在し、隔壁に接する表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である、好ましくは 130 ppm/K 以下であり、より好ましくは 110 ppm/K 以下であり、特に好ましくは 100 ppm/K 以下である隔壁、

を容易に形成することができるため、該感光性組成物は、このような隔壁形成用組成物として好適に用いることができる。このような感光性組成物としては、アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含むネガ型の組成物であることが好ましい。

[0037] 〈アルカリ可溶性重合体〉

前記アルカリ可溶性重合体としては、特に制限されない。本発明においてアルカリ可溶性とは、アルカリ溶液、例えば、2.38質量%の水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液に溶解可能であることを意味する。

前記アルカリ可溶性重合体は、1種単独で用いても、2種以上、例えば、アルカリ可溶性重合体および非アルカリ可溶性重合体、2種以上アルカリ可溶性重合体等の重合体のブレンド物を用いてもよい。

[0038] 前記アルカリ可溶性重合体としては、アルカリ溶液、特に、2.38質量%の水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液への溶解性等の点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有する化合物であることが好ましい。

このようなアルカリ可溶性重合体としては、アクリル樹脂、ポリイミド、ポリベンゾオキサゾール、ポリシロキサン、ポリオレフィン、カルド骨格を有する樹脂、およびノボラック樹脂が好ましい。

[0039] 前記アルカリ可溶性重合体の、ゲルパーミエーションカラムクロマトグラフィーで測定した、具体的には、下記実施例に記載の方法で測定した重量平均分子量は、得られる感光性組成物の現像性等の点から、好ましくは1000～100000であり、より好ましくは1500～50000である。

[0040] 得られる感光性組成物の現像性等の点から、アルカリ可溶性重合体の含有量は、前記感光性組成物100質量%に対し、好ましくは5～60質量%であり、より好ましくは10～50質量%である。

[0041] ・アクリル樹脂

アクリル樹脂としては、特に制限されないが、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より

選ばれる少なくとも1つの官能基を有するアクリル樹脂が好ましく、モノマーとして、下記化合物(a)と下記化合物(b)とを用いて得られる共重合体(但し、該モノマーにはアクリル化合物が含まれる)であることが、得られる感光性組成物の現像性等の点から好ましい。

化合物(a)：カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有する化合物

化合物(b)：化合物(a)以外の化合物

[0042] 前記化合物(a)におけるカルボキシル基を有する化合物としては、特に制限されないが、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸などのモノカルボン酸；マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸、メサコン酸、イタコン酸などのジカルボン酸；2-マレイノロイルオキシエチルメタクリレート、2-サクシノロイルオキシエチルメタクリレート、2-ヘキサヒドロフタロイルオキシエチルメタクリレートなどのカルボキシル基およびエステル結合を有するメタクリル酸誘導体が挙げられる。これらの化合物は、1種単独で用いても、2種以上を用いてもよい。これらの中では、アクリル酸、メタクリル酸、2-ヘキサヒドロフタロイルオキシエチルメタクリレートが好ましい。

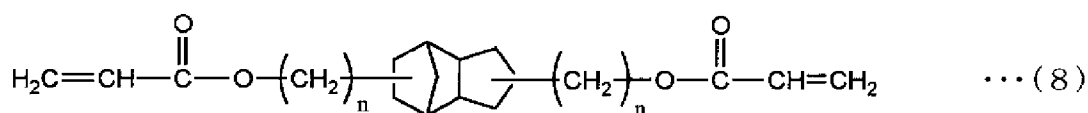
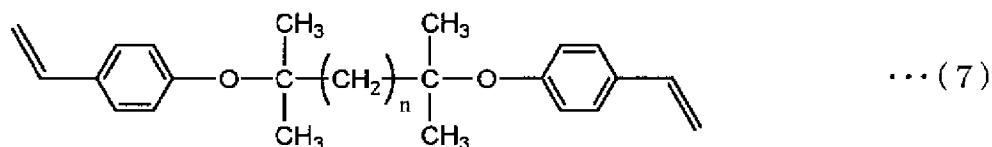
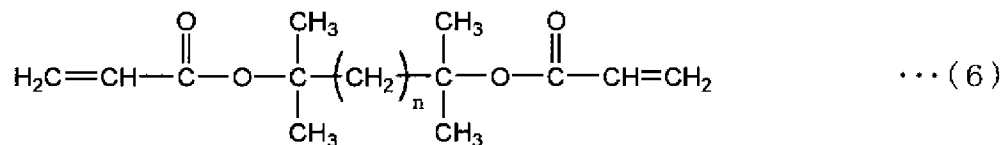
[0043] 前記化合物(a)におけるフェノール性水酸基を有する化合物としては、特に制限されないが、例えば、3-ヒドロキシスチレン、4-ヒドロキシスチレン、ビニル-4-ヒドロキシベンゾエート、3-イソプロペニルフェノール、4-イソプロペニルフェノール等のフェノール性水酸基を有するビニル系モノマーが挙げられる。これらの化合物は、1種単独で用いても、2種以上を用いてもよい。これらの中では4-イソプロペニルフェノールが好ましい。

[0044] 前記化合物(a)におけるシラノール基を有する化合物としては、特に制限されないが、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリプロポキシシラン、ビニルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジエトキシシラン、ビニルメチルジプロポキシシラン、 γ -（メ

タ) アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロキシプロピルトリプロポキシシラン、 γ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロキシプロピルメチルジプロポキシシラン等のアルコキシシリル基含有ビニル系モノマーの加水分解物が挙げられる。これらの化合物は、1種単独で用いても、2種以上を用いてもよい。

[0045] 前記化合物(b)としては、例えば、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、*n*-ブチル(メタ)アクリレート、*sec*-ブチル(メタ)アクリレート、*t*-ブチル(メタ)アクリレート、イソプロピル(メタ)アクリレートなどの(メタ)アクリル酸アルキルエステル；2-エトキシエチル(メタ)アクリレート、2-メトキシエチル(メタ)アクリレートなどの(メタ)アクリル酸アルコキシエステル；2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレートなどの水酸基含有(メタ)アクリル酸エステル；2, 2, 2-トリフルオロエチル(メタ)アクリレートなどのハロゲン原子含有(メタ)アクリル酸エステル；フェニル(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレートなどの(メタ)アクリル酸アリールエステル；グリシジル(メタ)アクリレートなどのヘテロ環基含有(メタ)アクリル酸エステル；マレイン酸ジエチル、フマル酸ジエチル、イタコン酸ジエチルなどのジカルボン酸ジエステル；スチレン、 α -メチルスチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、*p*-メトキシスチレンなどのビニル基含有芳香族化合物類；1, 3-ブタジエン、イソプレン、1, 4-ジメチルブタジエンなどの共役ジオレフィン類；アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどのニトリル基含有重合性化合物；塩化ビニル、塩化ビニリデンなどの塩素含有重合性化合物；アクリルアミド、メタクリルアミドなどのアミド結合含有重合性化合物；*N*-フェニルマレイミドなどのイミド基含有重合性化合物；酢酸ビニルなどの脂肪酸ビニル類；および下記式(6)～(8)で表される化合物が挙げられる。

[0046] [化1]



[式(6)～(8)中、nは独立に1以上6以下の自然数を表す。]

[0047] これらの中では、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、2-メトキシエチルアクリレート、ベンジルメタクリレートなどの(メタ)アクリル酸エステル、スチレン、N-フェニルマレイミド、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、2,2,2-トリフルオロエチルアクリレート、グリシジルメタクリレート、前記式(6)および(7)で表される化合物が好ましい。

[0048] 前記化合物(b)は、1種単独で用いても、2種以上を用いてもよい。

[0049] 前記化合物(b)の使用量は、前記化合物(a)および化合物(b)の合計量100質量%に対し、好ましくは5～95質量%、より好ましくは10～90質量%である。

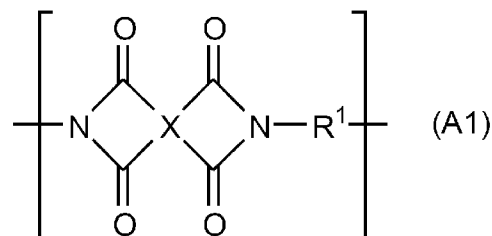
[0050] 前記アクリル樹脂は、例えば、前記化合物(a)および化合物(b)を、従来公知の有機溶媒中で、従来公知のラジカル開始剤を用いて重合することにより得ることができる。

[0051] ・ポリイミド

ポリイミドとしては、特に制限されないが、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有するポリイミドが好ましく、該官能基を

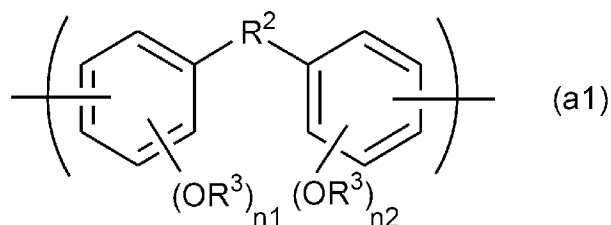
有し、下記式（A1）で表される構造単位を有する重合体であることが好ましい。

[0052] [化2]



[0053] 式（A1）中、 R^1 は水酸基を有する2価の基であり、 X は4価の有機基である。 R^1 としては、例えば、下記式（a1）で表される2価の基が挙げられる。

[0054] [化3]

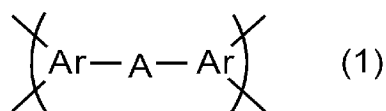


[0055] 式（a1）中、 R^2 は、単結合、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、カルボニル基、メチレン基、ジメチルメチレン基またはビス（トリフルオロメチル）メチレン基であり； R^3 は独立に、水素原子、ホルミル基、アシル基またはアルキル基である。ただし、 R^3 の少なくとも1つは水素原子である。 $n1$ および $n2$ は、それぞれ独立に0～2の整数である。ただし、 $n1$ および $n2$ の少なくとも一方は1または2である。 $n1$ と $n2$ との合計が2以上の場合、複数の R^3 は同一でも異なってもよい。

[0056] X で表される4価の有機基としては、例えば、4価の脂肪族炭化水素基、4価の芳香族炭化水素基、下記式（1）で表される基が挙げられる。 X は、テトラカルボン酸二無水物に由来する4価の有機基であることが好ましく、下記式（1）で表される基がより好ましい。

[0057]

[化4]



[0058] 式(1)中、Arは独立に3価の芳香族炭化水素基であり、Aは直接結合または2価の基である。前記2価の基としては、例えば、酸素原子、硫黄原子、スルホニル基、カルボニル基、メチレン基、ジメチルメチレン基、ビス(トリフルオロメチル)メチレン基が挙げられる。

[0059] 前記ポリイミドは、従来公知の方法、例えば、ジアミンと酸無水物などを用いて、従来公知の方法でイミド化することにより得ることができる。

[0060] 前記式(A1)で表される構造単位を有する重合体は、式(A1)中のXまたはR¹がカルボキシ基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有していてもよく、該重合体の合成原料として、該官能基を有する化合物を用い、部分イミド化することで得られる、該官能基を有する重合体であってもよい。

[0061] 前記ポリイミドのイミド化率は、好ましくは1%以上、より好ましくは3%以上、さらに好ましくは5%以上である。イミド化率の上限値は、100%であってもよいが、好ましくは50%、より好ましくは30%である。イミド化率が前記範囲にあると、耐熱性およびアルカリ可溶性に優れる重合体を得られる等の点で好ましい。

[0062] イミド化率は、例えば、以下のようにして測定することができる。

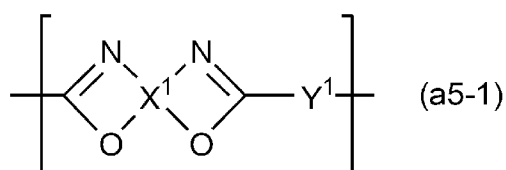
まず、ポリイミドの赤外吸収スペクトルを測定し、ポリイミドに起因するイミド構造の吸収ピーク(1780 cm⁻¹付近、1377 cm⁻¹付近)の存在を確認する。次に、そのポリイミドについて、350℃で1時間熱処理した後、再度、赤外吸収スペクトルを測定する。熱処理前と熱処理後の1377 cm⁻¹付近のピーク強度を比較する。熱処理後のポリイミドのイミド化率を100%として、熱処理前のポリイミドのイミド化率＝{熱処理前の1377 cm⁻¹付近のピーク強度／熱処理後の1377 cm⁻¹付近のピーク強度}×1

00 (%) を求める。赤外吸収スペクトルの測定には、例えば、「NICOLET 6700 FT-IR」(サーモエレクトロン社製)を用いる。

[0063] ・ポリベンゾオキサゾール

ポリベンゾオキサゾールとしては、特に制限されないが、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有するポリベンゾオキサゾールが好ましく、該官能基を有し、下記式(a5-1)で表される構造単位を有する重合体であることが好ましい。

[0064] [化5]



[0065] 式(a5-1)中、X¹は芳香族環を有する4価の有機基であり、Y¹は2価の有機基である。

式(a5-1)中、X¹における芳香族環は、置換または無置換のいずれの環であってもよい。置換基としては、例えば、-OH、-COOH、アルキル基、アルコキシ基、脂環式炭化水素基が挙げられる。X¹に結合するNとOは、例えば、X¹中の芳香族環上の隣り合った炭素原子に結合し、ベンゾオキサゾール環を形成している。X¹に芳香族環が2つ以上含まれる場合、複数の芳香族環は、連結多環系および縮合多環系のいずれの構造を形成していてもよい。

X¹の総炭素数は、6~24であることが好ましく、6~20であることがより好ましく、6~18であることがさらに好ましい。

[0066] 式(a5-1)中、Y¹は、好ましくは脂環式環および芳香族環から選ばれる環を少なくとも1つ含む2価の基であり、1~4つの芳香族環を有している基がより好ましく、2つの芳香族環を有している基が特に好ましい。

なお、Y¹に含まれる脂環式環および芳香族環は、置換または無置換のいずれの環であってもよい。置換基としては、例えば、-OH、-COOH、ア

ルキル基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、脂環式炭化水素基が挙げられる。Y¹に前記環が2つ以上含まれる場合、複数の前記環は、連結多環系および縮合多環系のいずれの構造を形成していてもよい。

Y¹の総炭素数は、4～24であることが好ましく、4～15であることがより好ましく、6～12であることがさらに好ましい。

[0067] 前記ポリベンゾオキサゾールは、従来公知の方法、例えば、ジカルボン酸、そのジエステル体およびそのジハライド体から選ばれる少なくとも1種と、水酸基を2つ有するジアミンとを重合させることにより得ることができる。

[0068] 前記式(a5-1)で表される構造単位を有する重合体は、式(a5-1)中のX¹またはY¹がカルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有していてもよく、該重合体の合成原料として、該官能基を有する化合物を用い、部分環化することを得られる、該官能基を有する重合体であってもよい。

[0069] 前記ポリベンゾオキサゾールの環化率は、好ましくは1%以上、より好ましくは3%以上、さらに好ましくは5%以上である。環化率の上限値は、100%であってもよいが、好ましくは50%、より好ましくは30%である。環化率が前記範囲にあると、耐熱性およびアルカリ可溶性に優れる重合体を得られる等の点で好ましい。

[0070] 環化率は、例えば、以下のようにして測定することができる。

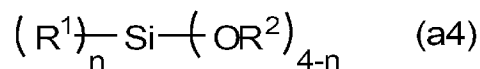
まず、ポリベンゾオキサゾールの赤外吸収スペクトルを測定し、ベンゾオキサゾール環の吸収ピーク(1557 cm⁻¹付近、1574 cm⁻¹)の存在を確認する。次に、そのポリベンゾオキサゾールについて、350℃で1時間熱処理した後、再度、赤外吸収スペクトルを測定する。熱処理前と熱処理後の1554 cm⁻¹付近のピーク強度を比較する。熱処理後のポリベンゾオキサゾールの環化率を100%として、熱処理前のポリベンゾオキサゾールの環化率＝{熱処理前の1554 cm⁻¹付近のピーク強度／熱処理後の1554 cm⁻¹付近のピーク強度}×100(%)を求める。赤外吸収スペクトルの測定

には、例えば、「NICOLET 6700 FT-IR」（サーモエレクトロン社製）を用いる。

[0071] ・ポリシロキサン

ポリシロキサンとしては、特に制限されないが、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有するポリシロキサンが好ましく、該官能基を有し、下記式（a4）で表されるオルガノシランを、加水分解および部分縮合させて得られるポリシロキサンが好ましい。

[0072] [化6]



[0073] 式（a4）中、R¹は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数6～15のアリール基含有基、炭素数2～15のエポキシ環含有基、または前記アルキル基に含まれる1または2以上の水素原子を置換基に置き換えてなる基（置換体）であり、R¹が複数ある場合はそれぞれ同一でも異なってもよく；R²は水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアシル基または炭素数6～15のアリール基であり、R²が複数ある場合はそれぞれ同一でも異なってもよく；nは0～3の整数である。

[0074] 前記置換基としては、例えば、ハロゲン原子、アミノ基、水酸基、メルカプト基、イソシアネート基、（メタ）アクリロイルオキシ基から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

[0075] 隔壁の耐クラック性と硬度を両立させる点から、ポリシロキサン中に含まれるフェニル基の含有量は、Si原子100モルに対して、好ましくは20～70モルであり、さらに好ましくは30～55モルである。該フェニル基の含有量は、具体的には、下記実施例に記載の方法で測定することができる。

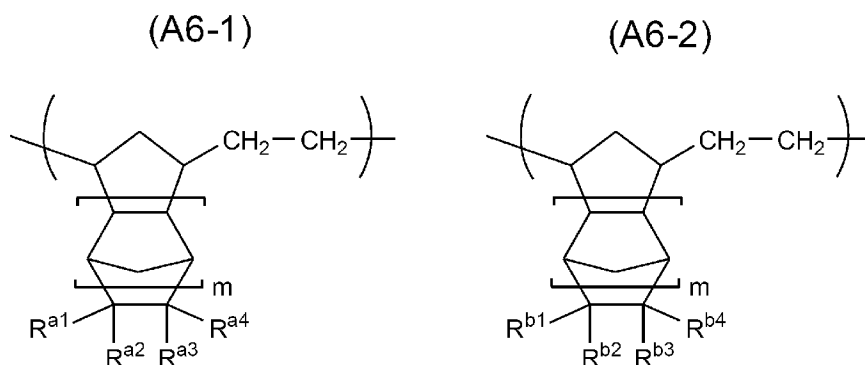
[0076] ・ポリオレフィン

ポリオレフィンとしては、特に制限されないが、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有するポリオレフィンが好ましく、プロトン性極性基を有する環状オレフィン重合体が好ましい。プロトン性極性基とは、周期律表第15族または第16族に属する原子に水素原子が直接結合している原子団をいう。周期律表第15族または第16族に属する原子としては、好ましくは酸素原子、窒素原子または硫黄原子であり、特に好ましくは酸素原子である。

[0077] 環状オレフィン重合体とは、脂環、芳香環等の環状構造と炭素－炭素二重結合とを有する環状オレフィンの、単独重合体または共重合体である。環状オレフィン重合体は、環状オレフィン以外の単量体から誘導される構造単位を有していてもよい。

[0078] プロトン性極性基を有する環状オレフィン重合体としては、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有し、例えば、下記式（A6-1）で表される構造単位を有する重合体、特に、式（A6-1）で表される構造単位と式（A6-2）で表される構造単位とを有する重合体が好ましい。

[0079] [化7]



[0080] 式（A6-1）中、 $R^{a1} \sim R^{a4}$ は、それぞれ独立に水素原子または $-X_n-R^a$ ⁵（ X は2価の有機基であり、 n は0または1であり、 R^a は、アルキル基、芳香族基または前記プロトン性極性基であり、アルキル基および芳香族基は、

それぞれ置換基を有してもよい。)である。 $R^{a1} \sim R^{a4}$ のうち少なくとも1つは、 R^{a5} がプロトン性極性基である $-X_n-R^{a5}$ 基である。 m は0～2の整数であり、好ましくは0または1である。

[0081] X における2価の有機基としては、例えば、メチレン基、エチレン基等の炭素数1～18のアルキレン基、フェニレン基等の炭素数6～24のアリーレン基が挙げられる。

[0082] R^{a5} における、アルキル基としては、例えば、直鎖状または分岐状の炭素数1～18のアルキル基であり、芳香族基としては、例えば、炭素数6～24の芳香族基である。

[0083] 式(A6-2)中、 R^{b1} は、プロトン性極性基以外の極性基であり、好ましくはアセトキシ基等の炭素数2～12のアシルオキシ基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、 n -プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基、 n -ブトキシカルボニル基、2,2,2-トリフルオロエトキシカルボニル基等の炭素数2～12のアルコキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基等の炭素数7～24のアリーロキシカルボニル基、シアノ基、または塩素原子等のハロゲン原子である。

[0084] R^{b2} は、水素原子、メチル基等の炭素数1～18のアルキル基である。

R^{b3} および R^{b4} は、水素原子である。

なお、 $R^{b1} \sim R^{b4}$ は、任意の組み合わせで、それらが結合している2つの炭素原子と共に、環構成原子として酸素原子または窒素原子を含む、3～5員の複素環構造を形成してもよい。

m は0～2の整数であり、好ましくは0または1である。

[0085] 前記ポリオレフィン、従来公知の方法、例えば、前記式(A6-1)で表される構造単位を誘導するモノマーを重合させることにより得ることができる。さらに、重合により得られた重合体を水素化してもよい。

[0086] ・カルド骨格を有する樹脂

カルド骨格を有する樹脂としては特に制限されない。カルド骨格とは、環状構造を構成している環炭素原子に2つの環状構造が結合した骨格構造をい

い、例えば、フルオレン環の9位の炭素原子に2つの芳香環（例：ベンゼン環）が結合した構造が挙げられる。

[0087] カルド骨格を有する樹脂としては、アルカリ可溶性の観点から、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基から選ばれる少なくとも1種の基を有する樹脂を用いることが好ましい。

[0088] 環状構造を構成している環炭素原子に2つの環状構造が結合した骨格構造の具体例としては、9, 9-ビス（フェニル）フルオレン骨格、9, 9-ビス（ヒドロキシフェニル）フルオレン骨格、9, 9-ビス（シアノフェニルまたはアミノアルキルフェニル）フルオレン骨格、エポキシ基を有する9, 9-ビス（フェニル）フルオレン骨格、（メタ）アクリル基を有する9, 9-ビス（フェニル）フルオレン骨格が挙げられる。

[0089] カルド骨格を有する樹脂は、従来公知の方法、例えば、カルド骨格を有する単量体を重合して得ることができる。

[0090] カルド骨格を有する樹脂としては、市販品を用いることもできる。例えば、大阪ガスケミカル（株）製のオグソールCR-T R 1、オグソールCR-T R 2、オグソールCR-T R 3、オグソールCR-T R 4、オグソールCR-T R 5、オグソールCR-T R 6等の、カルド骨格を有するポリエステル化合物が挙げられる。

[0091] ・ノボラック樹脂

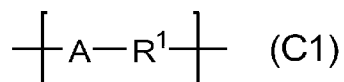
ノボラック樹脂としては特に制限されない。ノボラック樹脂としては、フェノール化合物とアルデヒド化合物とを反応させて得られる、例えば、フェノールノボラック構造や、レゾールノボラック構造を有する樹脂が挙げられる。

[0092] ノボラック樹脂としては、2. 38重量%の水酸化テトラメチルアンモニウムに可溶する樹脂が好ましい。

[0093] ノボラック樹脂としては、例えば、下記式（C 1）で表される構造単位を有するノボラック樹脂が挙げられる。

[0094]

[化8]



[0095] 式 (C1) 中、Aはフェノール性水酸基を有する2価の芳香族基であり、R¹は、メチレン基、炭素数2～30のアルキレン基、炭素数4～30の2価の脂環式炭化水素基、炭素数7～30のアラルキレン基または—R²—Ar—R²—で表される基 (Arは2価の芳香族基であり、R²はそれぞれ独立にメチレン基または炭素数2～20のアルキレン基である) である。また、前記メチレン基が有する1つの水素原子は、シクロペンタジエニル基、芳香族環、芳香族環を含む基、または窒素原子、硫黄原子、酸素原子等を有するヘテロ環で置換されていてもよい。

[0096] R¹において、—R²—Ar—R²—で表される基としては、例えば、—CH₂—Ph—CH₂—で表される基 (Phはフェニレン基である) が挙げられる。

[0097] Aにおいてフェノール性水酸基を有する2価の芳香族基としては、例えば、フェノール性水酸基を有するベンゼン環、フェノール性水酸基を有する縮合多環式芳香族基が挙げられる。フェノール性水酸基を有する縮合多環式芳香族基は、例えば、縮合多環式芳香族炭化水素基に含まれる、芳香環炭素に結合した水素原子の一部または全部を、水酸基に置換した基である。縮合多環式芳香族炭化水素基としては、例えば、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環が挙げられる。

[0098] ノボラック樹脂は、従来公知の方法、例えば、フェノールと、ホルムアルデヒドと、酸触媒または塩基触媒とを用いて得ることができる。また、ノボラック樹脂は、特許第2823057号、特許第3729554号、特許第3794598号、特許第3992181号などに記載の製造方法で得ることができる。

[0099] ノボラック樹脂としては、市販品を用いることもできる。例えば、日本化薬 (株) 製のKAYARAD CCR-1291H、CCR-1235、DIC (株) 製のPR-40、PR-45、PR-80、PR-85等が挙げ

られる。

[0100] 〈架橋剤〉

前記架橋剤としては、架橋性官能基を有し、前記アルカリ可溶性重合体と反応し、架橋構造を形成できる化合物であれば特に制限されない。

[0101] 前記架橋性官能基としては、例えば、オキセタニル基；グリシジルエーテル基、グリシジルエステル基、グリシジリアルミノ基等のエポキシ基を有する基；メトキシメチル基、エトキシメチル基等のアルコキシアルキル基；ベンジルオキシメチル基；アセトキシメチル基；ベンゾイロキシメチル基；ホルミル基；アセチル基；ジメチルアミノメチル基；ジエチルアミノメチル基；ジメチロールアミノメチル基；ジエチロールアミノメチル基；モルホリノメチル基；ビニル基、ビニリデン基、（メタ）アクリロイル基等のエチレン性不飽和基が挙げられる。これらの中でも、表面硬度に優れ、長期にわたり性質の変化が小さい隔壁が得られる等の点から、エチレン性不飽和基、エポキシ基、オキセタニル基またはアルコキシアルキル基が好ましい。

[0102] 前記エチレン性不飽和基含有化合物としては、分子中にエチレン性不飽和基を少なくとも2個有する化合物が挙げられ、好ましくは（メタ）アクリロイル基を2個以上有する化合物が挙げられる。

具体的には、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1，4－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、1，6－ヘキサジオールジ（メタ）アクリレート、1，9－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、トリス（2－ヒドロキシエチル）イソシアヌレートトリ（メタ）アクリレート、トリス（2－ヒドロキシエチル）イソシアヌレートジ（メタ）アクリレート、トリシクロデカンジメタノールジ（メタ）アクリレ

ート、シクロヘキサンジメタノールジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAアルキレンオキシドジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAのジグリシジルエーテルに（メタ）アクリル酸を付加させた（メタ）アクリレート、ビスフェノールAジ（メタ）アクリロイルオキシエチルエーテル、ビスフェノールAジ（メタ）アクリロイルオキシエチルオキシエチルエーテル、ビスフェノールAジ（メタ）アクリロイルオキシメチルエチルエーテル、ビスフェノールFアルキレンオキシドジ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、テトラメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、 ϵ -カプロラクトン付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、 ϵ -カプロラクトン付加ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、 ϵ -カプロラクトン付加ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、 ϵ -カプロラクトン付加ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0103] エポキシ基またはオキシタニル基含有化合物としては、分子内にエポキシ基またはオキシタニル基が含有されていればよく、特に限定されないが、例えば、KBM303、KBM403（いずれも信越化学（株）製）、エポラ

イトM-1230、エポライトEHDL（いずれも共栄社化学（株）製）、PP-101（東都化成（株）製）、NKオリゴEA-1010/ECA（新中村化学）が挙げられる。

[0104] エポキシ基またはオキシタニル基を2つ有する化合物としては、例えば、エポライト40E、エポライト100E、エポライト200E、エポライト400E、エポライト70P、エポライト200P、エポライト400P、エポライト1500NP、エポライト80MF、エポライト4000、エポライト3002（いずれも共栄社化学（株）製）、NC6000（日本化薬（株）製）、デナコールEX-212L、デナコールEX-214L、デナコールEX-216L、デナコールEX-850L（いずれもナガセケムテックス（株）製）、セロキサイド2021P（ダイセル化学工業（株）製）、GAN、GOT（いずれも日本化薬（株）製）、JER828、JER1002、JER1750、JER1007、YX8100-BH30、E1256、E4250、E4275（いずれも三菱化学（株）製）、BPFG、BPEFG、オグソールPG100（いずれも大阪ガスケミカル（株）製）、エピクロンEXA-9583、HP4032（いずれもDIC（株）製）、EP-4088S、EP-4085S、EP-4080S（いずれも（株）アデカ）が挙げられる。

[0105] エポキシ基またはオキシタニル基を3つ有する化合物としては、例えば、VG3101（三井化学（株）製）、テピックS、テピックG、テピックP（日産化学工業（株）製）、デナコールEX-321L（ナガセケムテックス（株）製）が挙げられる。

[0106] エポキシ基またはオキシタニル基を4つ以上有する化合物としては、例えば、エポトートYH-434L（東都化成（株）製）、EPPN502H、NC3000、NC6000（いずれも日本化薬（株）製）又はエピクロンN695、HP7200（いずれもDIC（株）製）が挙げられる。

[0107] オキシタニル基含有化合物としては、例えば、4,4-ビス〔(3-エチル-3-オキシタニル)メチル〕ビフェニル、3,7-ビス(3-オキシタ

ニル) - 5 - オキサノナン、3, 3' - [1, 3 - (2 - メチレニル) プロパンジイルビス (オキシメチレン)] ビス (3 - エチルオキセタン)、1, 4 - ビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メトキシメチル] ベンゼン、1, 2 - ビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メトキシメチル] エタン、1, 3 - ビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メトキシメチル] プロパン、エチレングリコールビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ジシクロペンテニルビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、トリエチレングリコールビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、テトラエチレングリコールビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、トリシクロデカンジイルジメチレンビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、トリメチロールプロパントリス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、1, 4 - ビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メトキシ] ブタン、1, 6 - ビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メトキシ] ヘキサン、ペンタエリスリトールトリス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ペンタエリスリトールテトラキス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ポリエチレングリコールビス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ジペンタエリスリトールヘキサキス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ジペンタエリスリトールペンタキス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテル、ジペンタエリスリトールテトラキス [(3 - エチル - 3 - オキセタニル) メチル] エーテルが挙げられる。

[0108] アルコキシアルキル基含有化合物としては、分子内にアルコキシアルキル基が含有されていればよく、特に限定されないが、例えば、アルコキシアルキル基含有メラミン化合物、アルコキシアルキル基含有ベンゾグアナミン化合物、アルコキシアルキル基含有尿素化合物、アルコキシアルキル基含有フェノール化合物が挙げられる。

[0109] 前記架橋剤は、1 種単独で用いても、2 種以上を用いてもよい。

[0110] 感光性に優れる組成物が得られ、また、長期にわたり性質の変化が小さい隔壁が得られる等の点から、架橋剤の含有量は、前記感光性組成物 100 質量%に対し、好ましくは 5～80 質量%であり、より好ましくは 10～70 質量%であり、特に好ましくは 15～60 質量%である。

[0111] 〈光開始剤〉

前記光開始剤は、放射線等の光を照射することにより、重合を開始させる化合物であれば特に制限されず、従来公知の化合物を用いることができる。

このような化合物としては、2, 2'-ビス(2, 4-ジクロロフェニル)-4, 5, 4', 5'-テトラフェニル-1, 2'-バイミダゾール、2, 2'-ビス(2-クロロフェニル)-4, 5, 4', 5'-テトラフェニル-1, 2'-バイミダゾール、2, 2'-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-4, 5, 4', 5'-テトラフェニル-1, 2'-バイミダゾール、2, 2'-ビス(2-メチルフェニル)-4, 5, 4', 5'-テトラフェニル-1, 2'-バイミダゾール、2, 2'-ジフェニル-4, 5, 4', 5'-テトラフェニル-1, 2'-バイミダゾール、ジエトキシアセトフェノン、2-(ジメチルアミノ)-2-[(4-メチルフェニル)メチル]-1-[4-(4-ホルホルニル)フェニル]-1-ブタノン、2, 2-ジメトキシ-1, 2-ジフェニルエタン-1-オン、ベンゾイン、ベンゾフェノン、o-ベンゾイル安息香酸メチル、4-フェニルベンゾフェノン、4, 4'-ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノン、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-ホルホルニル)フェニル)-1-ブタノン、2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-ホルホルニルプロパノン-1、エタノン、1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-1-(0-アセチルオキシム)、2, 4, 6-トリメチルベンゾイル-ジフェニル-フォスフィンオキサイド、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルフォスフィンオキサイド、2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシナフ

チル) - 1, 3, 5 - トリアジンなどが挙げられる。

[0112] 前記光開始剤は、1 種単独で、または2 種以上を使用することができる。

[0113] 感光性に優れる組成物が得られる等の点から、光開始剤の含有量は、前記感光性組成物100 質量%に対し、好ましくは0. 1 ~ 20 質量%であり、より好ましくは0. 5 ~ 10 質量%である。光開始剤の含有量を前記範囲とすることで、感度を損なうことなく、感光性組成物から形成される隔壁の現像性を向上できる傾向にある。

[0114] 前記感光性組成物には、さらに、有機溶剤、酸化防止剤、熱重合禁止剤、界面活性剤、密着助剤、溶解性調整剤、粘度調整剤、無機フィラーなどの充填材、着色剤等のその他の添加剤を本発明の効果を損なわない範囲で配合することができる。

[0115] 前記有機溶剤としては、特開2006-201670号公報、特開2012-256023号公報および特開2014-013413号公報などに記載の有機溶剤が挙げられ、

前記酸化防止剤としては、特開2010-117614号公報、特開2010-184961号公報および特開2013-241554号公報などに記載の酸化防止剤が挙げられ、

前記界面活性剤としては、特開2010-250109号公報、特開2014-089970号公報および特開2014-048428号公報などに記載の界面活性剤が挙げられ、

前記密着助剤としては、特開2012-256023号公報、特開2013-242511号公報および特開2014-080578号公報などに記載の密着助剤が挙げられ、

前記無機フィラーとしては、特開2007-332255号公報、特開2008-242076号公報、特開2012-198527号公報、特開2013-216737号公報および特開2014-062195号公報などに記載の無機フィラーが挙げられ、

前記その他の添加剤としては、特開2006-154434号公報や特開

2007-293306号公報などに記載の化合物が挙げられる。

[0116] 〈感光性組成物の調製方法〉

前記感光性組成物は、例えば、アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤と、その他の任意成分とを混合することによって調製することができる。また、ゴミを取り除くために、各成分を均一に混合した後、得られた混合物をフィルター等で濾過してもよい。

[0117] 〔隔壁の形成方法〕

前記隔壁の形成方法としては、特に制限されないが、好ましくは、前記感光性組成物を塗布し硬化させることで、隔壁を形成する方法が挙げられる。

このような隔壁の形成方法は、第1電極層スタックまたは第2電極層スタック上で直接行ってもよいし、ガラス支持体、金属支持体または樹脂製支持体等の他の支持体上で行った後、得られた隔壁を第1電極層スタックまたは第2電極層スタック上等に設けてもよいが、前記表面層を有する電極層スタック上で直接行うことが好ましい。

[0118] 前記隔壁を形成する方法としては特に制限されないが、具体的には、第1電極層スタックや第2電極層スタック上または他の支持体上に、前記感光性組成物を塗布し、必要により乾燥させた後、光を照射し硬化させることで隔壁を得ることができる。なお、前記光を照射する際に、所定パターンのマスクを用いて光を照射し（露光し）、次いで、アルカリ性現像液を用いて現像し、必要により加熱することで、所望の形状、例えば、格子状の隔壁を得ることができ、収容空間を複数の隔壁で区画した複数の画素領域を有する表示素子を容易に作成することができる。

これらの各工程は、従来公知の方法で行うことができ、例えば、特開2012-256023号公報に記載の方法が挙げられる。

[0119] 前記方法で得られた隔壁は、さらに、その表面、好ましくは両面を、従来公知の親水化処理方法で親水化させる、または、従来公知の疎水化処理方法で疎水化させるなどの表面処理を行ってもよい。

[0120] 親水化処理方法としては、例えば、得られた膜の表面を、コロナ放電処理

、プラズマ処理またはUVオゾン処理で表面改質する方法や、得られた膜の表面に、アクリル系樹脂またはスルホン酸塩基含有樹脂等からなる膜をコーティングまたはラミネートにより積層する方法が挙げられる。

[0121] 疎水化処理方法としては、例えば、得られた膜の表面を、長鎖アルキル基含有カップリング剤、フッ素含有カップリング剤または珪素含有カップリング剤により表面処理することで表面改質する方法や、得られた膜の表面に、長鎖アルキル基含有樹脂、フッ素含有樹脂または珪素含有樹脂等からなる膜をコーティングまたはラミネートにより積層する方法が挙げられる。

[0122] 例えば、前記感光性組成物から膜を形成し、該膜表面をUVオゾン処理する場合には、該処理時の露光量は、親水性、耐光性、耐熱性、耐薬品性および高硬度の隔壁を容易に得ることができる等の点から、好ましくは $0.1 \sim 8 \text{ J} / \text{cm}^2 @ 254 \text{ nm}$ であり、より好ましくは $0.5 \sim 5 \text{ J} / \text{cm}^2 @ 254 \text{ nm}$ である。

[0123] <第1電極層スタック、第2電極層スタック>

第1および第2電極層スタックとしては特に制限されないが、透明材料からなるスタック（積層体）が好ましい。

第1および第2電極層スタックは、通常、ガラスや樹脂製の透明基板と酸化インジウムスズ（ITO）などの透明導電性材料からなる透明導電層とを含む。

このような電極層スタックを用いる場合、その透明導電層側が対向するように各電極層スタックは配置される。

第1および第2電極層スタックは、さらに、他の層、例えば、平坦化膜、パッシベーション膜、反射膜、絶縁膜、疎水性膜などの従来公知の層を、前記透明基板や透明導電層の上またはこれらの層間に有していてもよい。

[0124] 第1および第2電極層スタックには、前記のような層が存在し、これらの層のうち、前記収容空間に接する面に存在し、かつ、前記隔壁に接する層のうち、少なくとも一方の電極層スタックに存在する層が、本発明における表面層である。

本発明では、この表面層として、表示素子に求められる特性に応じた層を用い、該層の熱線膨張係数を考慮して、隔壁を形成する組成物を調製し、隔壁を形成してもよいし、求められる特性に応じた隔壁を用い、該隔壁の熱線膨張係数を考慮して、少なくとも一方の電極層スタック表面に表面層を設けてもよい。

[0125] 前記表面層は、疎水性層であることが好ましい。第1および第2電極層スタックの、前記收容空間に接する2つの面は、それぞれ疎水性層であってもよいが、この場合、各面の疎水性の程度は異なり、一方の面の疎水性が他方の面の疎水性より高いことが好ましい。

つまり、本発明の表示素子は、第1および第2電極層スタック間に電圧を印加しない場合に、第1または第2電極層スタックの一方の、前記收容空間に接する面上に前記無極性液体が存在するような疎水性層を第1および第2電極層スタックが有することが好ましい。

[0126] 前記疎水性層を有する電極層スタックは、例えば、透明基板と透明導電層とを含む積層体の表面に、疎水性材料を含む組成物を塗布して塗膜を形成したり、疎水性材料からなるフィルムを積層することで得ることができる。

このような疎水性材料としては、含フッ素材料、含珪素材料が挙げられ、これらの中でも、含フッ素材料が好ましい。

[0127] 含フッ素材料としては、例えば、特開2011-157292号公報、特開2010-121137号公報、特開2003-315308号公報、特許第4045253号、特開2013-142753号公報、特表2013-522669号公報、特開2014-066835号公報に記載のフッ素ポリマー等が挙げられる。

[0128] また、含フッ素材料としては、上市されている市販品を用いてもよく、該市販品としては、例えば、旭硝子（株）製のサイトップ（商品名；型番CTL-809M）、DuPont社製のテフロン（登録商標）（商品名；型番AF1600やAF2400）などを使用してもよい。

[0129] <收容空間>

前記收容空間としては、極性液体と無極性液体とを含むことができ、印加される電圧の有無による無極性液体の存在状態の変化を妨げることがないような大きさの空間であればよく、所望の用途、表示したい画素領域の大きさ等に応じて適宜選択すればよい。

[0130] <極性液体>

前記極性液体は、前記收容空間に收容される。極性液体としては、用いられる無極性液体と非混和性であれば特に制限されないが、無色透明、かつ、導電性の液体であることが好ましく、具体的には、水のほか、塩化リチウムや塩化カリウム、塩化ナトリウム等の電解質を溶解させた水溶液等を用いることができる。

前記極性液体としては、2種類以上の液体を用いてもよいが、通常は、1種類の液体を用いる。

[0131] <無極性液体>

前記無極性液体も、前記收容空間に收容される。無極性液体としては、特に制限されないが、ほとんど極性を有さず、かつ、電気絶縁性を示す液体であることが好ましい。

無極性液体としては、例えば、側鎖高級アルコール、側鎖高級脂肪酸、オクタンやデカン等のアルカン炭化水素、シリコーンオイルなどの疎水性液体が挙げられる。

前記無極性液体としては、2種類以上の液体を用いてもよいが、通常は、1種類の液体を用いる。

[0132] 1つの画素領域（セル）に收容される無極性液体の使用量は、所望の用途に応じて適宜調整すればよいが、例えば、表示素子の表示面側の電極層スタック面全面を覆うことができる量であることが好ましい。

[0133] 本発明で用いる無極性液体は、着色した液体（着色液体）であることが好ましく、前記疎水性液体に、該液体に溶解または均一分散可能な、染料や顔料等の色材を配合した液体が好ましい。着色液体は、透明であってもよく、不透明であってもよい。

[0134] 前記染料としては、特開２０１４－０１０２４９号公報や特開２０１３－２２８６８３号公報に記載の色素等が挙げられ、顔料としては、カーボンブラックや特開２０１２－１８１５１３号公報に記載の顔料等が挙げられる。

[0135] 前記色材は、所望の用途に応じ、無極性液体が所定の波長の光を吸収するように、適宜選択して用いればよく、１種単独で用いてもよいし２種以上を用いてもよい。

[0136] 無極性液体が色材を含有する場合、色材の含有量は特に制限されず、所望の用途に応じ適宜調整すればよいが、前記疎水性液体に溶解または均一分散可能な量であることが好ましく、無極性液体１００質量％に対し、例えば０．０１～３０質量％の量で配合することが好ましい。

[0137] さらに、前記無極性液体は、必要に応じ、本発明の効果を損なわない範囲で、紫外線吸収剤、酸化防止剤等の各種添加剤を含んでいてもよい。

[0138] 《エレクトロウエッティングディスプレイ》

本発明のエレクトロウエッティングディスプレイは、前記本発明の表示素子を含めば特に制限されない。

本発明のエレクトロウエッティングディスプレイは、本発明の表示素子を含むため、長寿命で表示性に優れるディスプレイである。

[0139] 本発明のエレクトロウエッティングディスプレイは、従来のエレクトロウエッティングディスプレイに用いられてきた、絶縁膜、薄膜トランジスタ（ＴＦＴ）、カラーフィルタ層、ブラックマトリクスなどの、従来公知の層を所望の用途に応じて所望の場所に所望の順番で積層することで形成することができる。このようなエレクトロウエッティングディスプレイの構成としては、例えば、本発明の表示素子を用いる以外は、特開２０１３－１４２７５３号公報や特開２０１２－６３７６７号公報に記載されている構成と同様の構成であってもよい。

特に、本発明のエレクトロウエッティングディスプレイは、表示面側でフルカラー表示が可能となるディスプレイを低コストで製造できる等の点から、カラーフィルタ層を含むことが好ましい。

[0140] カラーフィルタ層としては特に制限されず、赤、青、緑に限らず、シアン、マゼンタ、黄色などの層を所望の用途に応じ適宜選択して用いればよい。

また、カラーフィルタ層は、所望の用途に応じ、所望の位置に設ければよく、例えば、本発明のエレクトロウエッチングディスプレイが、カラーフィルタ層とTFTとを有する場合、前記本発明の表示素子のTFTが積層される側に設けてもよく、TFTが積層される側とは反対側に設けてもよい。

実施例

[0141] 以下、実施例を挙げて、本発明の実施の形態を更に具体的に説明する。但し、本発明は、これらの実施例に何ら制約されるものではない。なお、「部」および「%」は、特記しない限り質量基準である。

[0142] 下記合成例で得られた重合体のゲルパーミエーションカラムクロマトグラフィーによる重量平均分子量(Mw)を以下条件に基づいて測定した。

- ・測定方法：ゲルパーミエーションクロマトグラフィー法
- ・標準物質：ポリスチレン
- ・装置：東ソー（株）製、商品名：HLC-8020
- ・カラム：東ソー（株）製ガードカラムH_{XL}-H、TSK gel G7000H_{XL}、TSK gel GMH_{XL} 2本、TSK gel G2000H_{XL}を順次連結したもの
- ・溶媒：テトラヒドロフラン
- ・サンプル濃度：0.7質量%
- ・注入量：70μL
- ・流速：1mL/min

[0143] 1. 重合体の合成

[合成例1] 重合体(A1)の合成

反応容器に、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート(PGMEA)を160部仕込み、80℃まで昇温した。得られた容器に、単量体としてメタクリル酸を13部、ベンジルメタクリレート(46部、スチレンを13部、N-フェニルマレイミドを16部、n-ブチルメタクリレートを

2部、および2-ヒドロキシエチルメタクリレートを10部と、重合触媒としてアゾビス-2,4-ジメチルバレロニトリルを5部および溶剤としてPGMEAを25部混合した溶液とを各々2時間かけて反応容器に滴下した。滴下後80℃で2時間加熱し、100℃で1時間加熱した。加熱後の混合溶液を23℃に冷却して、重合体(A1)を含む固形分濃度が35質量%のPGMEA溶液を得た。得られた重合体(A1)のMwは12000であった。

[合成例2]

重合体(A2)の合成

反応容器に、PGMEAを90部仕込み、80℃まで昇温した。得られた容器に、単量体としてメタクリル酸を20部、ベンジルメタクリレート40部、2-ヒドロキシエチルメタクリレート10部および溶剤としてPGMEAを15部混合した溶液と、重合触媒としてアゾビス-2,4-ジメチルバレロニトリルを6部および溶剤としてPGMEAを25部混合した溶液とを各々2時間かけて反応容器に滴下した。滴下後80℃で2時間加熱し、次いで、100℃で1時間加熱した。加熱後の混合溶液を23℃に冷却後に、グリシジルメタクリレート30部およびテトラn-ブチルアンモニウムクロライドを1部添加し、80℃で12時間加熱した。加熱後の混合溶液を23℃に冷却して、重合体(A2)を含む固形分濃度が35質量%のPGMEA溶液を得た。得られた重合体(A2)のMwは20000であった。

[0144] [合成例3] 重合体(A3)の合成(ポリイミド)

3つ口フラスコに重合溶剤としてγ-ブチロラクトン(γ-BL)390gを加えた後、ジアミン化合物として2,2'-ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン120gを重合溶剤中に加えた。ジアミン化合物を重合溶剤に溶解させた後、酸二無水物として4,4'-オキシジフタル酸二無水物71gを加えた。その後、60℃で1時間反応させた後、末端封止剤としての無水マレイン酸19gを加えた。60℃で更に1時間反応させた後、昇温して180℃で4時間反応させることで、重合体

(A3)を含む固形分濃度が35質量%の γ -BL溶液を約600g得た。
得られた重合体(A3)のMwは8000であった。

- [0145] [合成例4] 重合体(A4)の合成(ポリベンゾオキサゾール前駆体)
ジフェニルエーテル-4,4'-ジカルボン酸1モルと1-ヒドロキシベンゾトリアゾール2モルとを反応させて得られたジカルボン酸誘導体443.2g(0.90モル)と、ヘキサフルオロ-2,2-ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン366.3部(1.00モル)とを、温度計、攪拌機、原料投入口および乾燥窒素ガス導入管を備えた4つ口のセパラブルフラスコに入れ、そこにN-メチル-2-ピロリドン3000部を加えて溶解させた。その後オイルバスを用いて75℃にて16時間反応させた。16時間反応後、N-メチル-2-ピロリドン100部に溶解させた5-ノルボルネン-2,3-ジカルボン酸無水物32.8部(0.20モル)を加え、更に3時間攪拌し反応を終了した。反応混合物をろ過した後、ろ物を水/イソプロパノール=3/1(質量比)の溶液に投入することで生じた沈殿物を濾集し、水で充分洗浄した後、真空下で乾燥することで、ポリベンゾオキサゾール前駆体(重合体(A4))を得た。重合体(A4)濃度が35質量%となるように γ -BLを加えて、重合体(A4)の γ -BL溶液を得た。得られた重合体(A4)のMwは15000であった。

- [0146] [合成例5] 重合体(A5)の合成(ポリシロキサン)
500mLの三つ口フラスコに、メチルトリメトキシシランを63.39部(0.55mol)、フェニルトリメトキシシランを69.41部(0.35mol)、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシランを24.64部(0.1mol)およびプロピレングリコールモノメチルエーテル(PGME)を150.36部仕込み、室温で攪拌しながら、水55.8部にリン酸0.338部(仕込みモノマーに対して0.2質量%)を溶かしたリン酸水溶液を10分かけて添加した。その後、フラスコを70℃のオイルバスに浸けて1時間攪拌した後、オイルバスを30分かけて115℃まで昇温した。昇温開始1時間後にフラスコの内温が100℃に到

達し、そこから2時間加熱攪拌した（フラスコの内温は100～110℃）。反応中に副生成物であるメタノールおよび水が合計115部留出した。得られた重合体（A5）のPGME溶液に、重合体（A5）濃度が35質量%となるようにPGMEを加えて、重合体（A5）のPGME溶液を得た。得られた重合体（A5）のM_wは5000であり、Si原子100モルに対するフェニル基含有量は35モルであった。

[0147] なお、重合体（A5）中のフェニル基の含有量は、「JNM-ECS400」（日本電子（株）製）を用いて²⁹Si-核磁気共鳴スペクトルを測定し、そのフェニル基が結合したSiのピーク面積とフェニル基が結合していないSiのピーク面積との比から求めた。

[0148] [合成例6] 重合体（A6）の合成（ポリオレフィン）

窒素置換した1000mLオートクレーブに、8-カルボキシテトラシクロ[4.4.0.1^{2,5}.1^{7,10}]ドデカ-3-エン60部、N-フェニル-（5-ノルボルネン-2,3-ジカルボキシイミド）40部、1,5-ヘキサジエン2.8部、（1,3-ジメシチルイミダゾリジン-2-イリデン）（トリシクロヘキシルホスフィン）ベンジリデンルテニウムジクロリド0.05部およびPGMEA400部を仕込み、攪拌下に80℃で2時間重合反応を行って、重合体（A6'）を含有する重合体溶液を得た。

[0149] この重合体溶液に、水素添加触媒としてビス（トリシクロヘキシルホスフィン）エトキシメチレンルテニウムジクロリド0.1部を加え、水素を4MPaの圧力で5時間吹き込み、水素添加反応を進行させたのち、活性炭粉末1部を添加し、攪拌しつつ150℃で水素を4MPaの圧力で3時間吹き込んだ。次いで、孔径0.2μmのフッ素樹脂製フィルタでろ過して活性炭を分離することで、重合体（A6'）の水素化物である重合体（A6）を含有する水素添加反応溶液490部を得た。ここで得られた重合体（A6）を含有する水素添加反応溶液の固形分濃度は21質量%であり、重合体（A6）の収量は102部であった。得られた重合体（A6）の水素添加反応溶液をロータリーエバポレーターで濃縮し、固形分濃度を35質量%に調整して、

重合体（A 6）の溶液を得た。得られた重合体（A 6）のMwは4 0 0 0であった。

[0150] 〔調製例 7〕 重合体（A 7）の調製（カルド樹脂）

カルド樹脂のPGME溶液であるCR-T R 5（大阪ガスケミカル（株）製）は、固形分52.7質量%、固形分酸価135KOHmg/gの製品である。CR-T R 5を100部計量し、そこにPGMEを50.57部添加攪拌した。このようにして固形分濃度が35質量%のカルド樹脂（A 7）の溶液を得た。

[0151] 〔合成例 8〕 重合体（A 8）の合成（ノボラック樹脂）

温度計、冷却管、分留管および攪拌器を取り付けたフラスコに、フェノール94.1g（1.0モル）、メチルイソブチルケトン400g、水96gおよび92質量%パラホルムアルデヒド32.6g（ホルムアルデヒド換算で1.0モル）を仕込んだ。そこに、攪拌しながらパラトルエンスルホン酸3.4gを加えた。その後、100℃で8時間反応させた。反応終了後に純水200gを加え、系内の溶液を分液ロートに移して水層を分離除去した。次いで、有機層を洗浄水が中性を示すまで水洗後、有機層から溶媒を加熱減圧下に除去し、ノボラック樹脂（重合体（A 8））を140g得た。得られた重合体（A 8）のMwは2000であった。得られた重合体（A 8）とPGMEAとを用いて固形分濃度35質量%の重合体（A 8）の溶液を得た。

[0152] フーリエ変換赤外分光光度計（FT-IR）による測定チャートから、原料と比較してメチレン結合による伸縮由来の吸収（2800～3000cm⁻¹）が確認でき、更に、芳香族エーテル由来の吸収（1000～1200cm⁻¹）は発見できなかった。これらの結果により、本合成例では水酸基同士の脱水エーテル化反応（水酸基が消失）は生じず、メチレン結合を有するノボラック樹脂が得られたと同定できる。

[0153] 2. 隔壁形成用感光性組成物の調製

前記合成例1で得られた重合体（A 1）の溶液を重合体（A 1）換算で100部、架橋剤（B 2）50部、光開始剤（C）5部、密着助剤（D）5部

および界面活性剤（E）１部を混合することで、溶液である組成物１を得た。

同様に下記表１に示す組成で、各成分を混合することにより、組成物２～１４を得た。組成物２～１４でも、該組成物中の重合体の量が下記表１の量となるように前記で得られた重合体溶液を用いた。なお、表１中の各成分の詳細は下記表２のとおりである。

[0154]

[表1]

	組成物1	組成物2	組成物3	組成物4	組成物5	組成物6	組成物7	組成物8	組成物9	組成物10	組成物11	組成物12	組成物13	組成物14
A1	100	100	100											100
A2				100	100	100	100							
A3								100						
A4									100					
A5										100				
A6											100			
A7												100		
A8													100	
B1	0	0	0	50	100	100	100	100	100	100	100	100	100	30
B2	50	70	100	50	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
C	5	5	4	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	5
D	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
E	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
F	0	0	0	0	0	5	15	0	0	0	0	0	0	0

重合体

架橋剤

光開始剤

密着助剤

界面活性剤

無機フラー

[表2]

B1	ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート
B2	1,9-ノナンジオールジアクリレート
C	エタノン, 1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-1-(0-アセチルオキシム) (商品名「Irgacure Oxe02」、BASF社製)
D	メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン (商品名「XIAMETER OFS-6030 SILANE」、東レ・ダウコーニング(株)製)
E	フッ素系界面活性剤(商品名「FTX-218F」、(株)ネオス製)
F	ジルコニア粒子(商品名「SZR-M」、堺化学工業(株)製)

[0156] [実施例1]

3. 隔壁の作成

片面に100nm厚のITO層を備えたガラスウエハのITO層上に、表1に示す組成物1を塗布し、ホットプレートにて110℃で5分間加熱処理(プレバーク)し、高さ(図1の上下方向に相当する方向の長さ)25~3

5 μm の塗膜を形成した。形成した塗膜に、パターン化マスクを介して、ステッパー（（株）ニコン製、型式「NSR-2005i10D」）を用い、表3に示す紫外線量を露光させた。露光後の塗膜を、水酸化テトラメチルアンモニウムを2.38質量%含有する水溶液に90秒間浸漬し（現像処理）、次いで、水洗処理を行った。その後、オーブンにて220℃で1時間加熱処理し、その表面を卓上型光表面処理装置（製品名PL16-110、セン特殊光源（株）製）を用いて低圧水銀灯によるUVオゾン処理（露光量：3 J / cm^2 @254 nm）を行うことで、線幅10 μm 、格子間隔50 μm 、高さ（図1の上下方向に相当する方向の長さ）20 μm の隔壁（格子状パターン化塗膜）を作成した。得られた隔壁（格子状パターン化塗膜）の平面図を図2に示す。

なお、本発明における露光量の値（J / cm^2 @254 nm）は、照射する紫外線を254 nm換算した時の光線量であり、露光量の値（mJ / cm^2 @365 nm）は、照射する紫外線を365 nm換算した時の光線量である。

[0157] 4. 表示素子の作成

基板として片面に100 nm厚のITO層およびその上に450 μm 厚の疎水性膜（アモルファスフッ素ポリマー「AF1600」 DuPont社製）を備える厚さ0.7 mm厚のガラス板を用い、該基板の疎水性膜上に表1に示す組成物1を塗布した以外は、前記「3. 隔壁の作成」と同様にして、高さ（図1の上下方向に相当する方向の長さ）20 μm 、線幅10 μm 、格子間隔50 μm の隔壁を形成した。形成した隔壁によって囲まれた区画（セル）それぞれに、着色オイル（オクタン中にズダンブラックB（和光純薬工業（株）製）を0.1 wt %溶解させた液体）を注入し、得られた隔壁付基板を水中に入れた。その後、片面に100 nm厚のITO層を備えたガラス板2（「20 Ω 」、日本板硝子（株）製）を用い、該ガラス板2のITO層が隔壁付基板側となり、かつ、隔壁に接するように配置した。その後、隔壁とガラス板2のITO層との接触部を光硬化性エポキシ接着剤で封止することで、基板中央部に100個以上のセルを有する表示素子を作成した。

[0158] [実施例 2 ～ 1 3 および比較例 1]

表 3 または 4 に示す組成物を用い、表 3 または 4 に示す露光量にて紫外線照射を行った以外は、実施例 1 と同様にして、それぞれ、隔壁および表示素子を形成した。

[0159] 5. 評価

実施例および比較例で得られた隔壁および表示素子を、以下の方法で評価した。結果を表 3 または 4 に示す。

[0160] 5-1. 形状

前記実施例および比較例で得られた隔壁の断面形状を電子顕微鏡にて観察し、隔壁の高さ（図 1 の上下方向に相当する方向の長さ）、ITO 層に接する隔壁の幅（底幅）、隔壁の ITO 層に接する側とは反対側における隔壁の幅（頂上幅）を SEM（（株）日立ハイテクノロジーズ製、形式「S-4200」）で測定した。

なお、隔壁の高さは、任意の 5 箇所を測定し、その平均値を高さとして表 3 または 4 に示し、測定した 5 箇所の測定結果の標準偏差 σ を用いて下記式から隔壁の高さ面内均一性を評価した。

$$\text{高さ面内均一性} (3\sigma) = 3 \times \sigma$$

[0161] 5-2. 熱線膨張係数の評価

前記実施例および比較例で得られた隔壁について、TMA (Thermal Mechanical Analysis) SS6100 装置（セイコーインスツルメント社製）を用い、膜厚 $20\mu\text{m}$ 、縦 10mm 、横 10mm のフィルム片を直立に固定し、プローブにより、 1g 重の荷重をかけた。フィルムの熱履歴を除去するため、室温から 200°C まで $5^\circ\text{C}/\text{min}$ で一旦昇温した後、冷却し、再度、室温から $5^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温し、得られた結果と温度との関係を示すグラフを作成した。このグラフの $50\sim 150^\circ\text{C}$ 間の傾きから熱線膨張係数を求めた。

[0162] 5-3. 熱線膨張係数の差の評価

熱線膨張係数の差について、下記計算式によって評価した。

熱線膨張係数の差＝（前記実施例および比較例で得られた隔壁の熱線膨張係数）－（表面層の熱線膨張係数）

[0163] なお、前記450 μ m厚の疎水性膜（アモルファスフッ素ポリマー「AF1600」DuPont社製）の熱線膨張係数は、膜厚20 μ m、縦10mm、横10mmのAF1600からなるフィルムを用いた以外は前記「5-2. 熱線膨張係数の評価」と同様の方法で測定した。熱線膨張係数は100ppm/Kであった。

また、前記100nm厚のITO層の熱線膨張係数は、ITO層付ガラス基板（「20 Ω 」、日本板硝子（株）製）を用いて測定した。なお、該ITO層の熱線膨張係数は、ITO層付ガラス基板（「20 Ω 」）および該「20 Ω 」からITO層を剥離したガラス基板の、前記「5-2. 熱線膨張係数の評価」と同様の方法で測定した熱線膨張係数の値の差から算出した。熱線膨張係数は10ppm/Kであった。

[0164] 5-4. 外観

実施例および比較例で得られた表示素子をヒートサイクル装置（TSA-40L、タバイエスペック社製）を用い、降温速度2 $^{\circ}$ C/minで-40 $^{\circ}$ Cまで冷却し、-40 $^{\circ}$ Cで10分間保持し、その後、昇温速度2 $^{\circ}$ C/minで100 $^{\circ}$ Cまで加熱し、100 $^{\circ}$ Cで10分間保持する工程を1サイクルとし、このサイクルを100回繰り返した後で隔壁とそれに接する表面層（疎水性膜またはITO層）部分を顕微鏡観察した。隔壁と表面層との間にクラックまたは剥がれが生じた場合には、クラックありと評価し、これらのいずれも生じなかった場合をクラックなしと評価した。

[0165] 5-5. 表示素子の作動状態の評価

実施例および比較例で得られた表示素子の、隔壁、着色オイルおよび水を挟む一对のITO層間に10V/10 μ m間隔の直流電圧を印加した。実施例で得られた表示素子は、基板中央部の100個のセルについて、電圧の印加により、着色オイルが収縮し（半球状へ変化し）背面が透過し、電圧印加を停止した場合、すべてのセルにおいて着色表示に戻った。

[0166] 前記直流電圧の印加と印加の停止を 1 サイクルとして、該サイクルを 100 回繰り返し、該サイクルを 100 回繰り返した後の電圧印加を停止した状態において、すべてのセルのうち、8 割を超えるセルにおいて着色表示の欠損が生じない場合を、表示素子の作動状態は「良好」と判断し、2 割以上～半数未満のセルに着色表示の欠損が発生した状態を、表示素子の作動状態は「やや良好」と判断し、半数以上のセルに着色表示の欠損が発生した場合を、表示素子の作動状態は「不良」と判断した。

[0167]

[表3]

隔壁形成用感光性組成物		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
グループ後塗膜への露光量 (mJ/cm ² @365nm)		330	350	350	300	300	250	250
隔壁の形状	高さ(μm)	20	20	20	20	20	20	20
	高さ面内均一性(3σ)	0.25	0.21	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16
	頂上幅(μm)	8	9	8	10	8	9	9
	底幅(μm)	9	10	11	10	9	9	9
隔壁特性	隔壁の熱線膨張係数(ppm/K)	140	120	100	80	60	40	20
表示素子	熱線膨張係数の差	40	20	0	-20	-40	-60	-80
	ITO層	130	110	90	70	50	30	10
素子特性	外観	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし
	作動状態	やや良好	やや良好	良好	良好	良好	良好	良好
信頼性								

[0168] [表4]

		実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	比較例1
隔壁形成用感光性組成物		組成物8	組成物9	組成物10	組成物11	組成物12	組成物13	組成物14
ブレベーク後塗膜への露光量 (mJ/cm ² @365nm)		300	300	300	300	300	300	360
隔壁の形状	高さ(μm)	20	20	20	20	20	20	20
	高さ面内均一性(3σ)	0.16	0.21	0.16	0.16	0.25	0.25	0.86
	頂上幅(μm)	10	10	10	9	9	10	7
	底幅(μm)	10	10	11	9	10	10	9
隔壁特性	隔壁の熱線膨張係数(ppm/K)	40	40	40	60	60	60	180
表示素子	熱線膨張係数の差	-60	-60	-60	-40	-40	-40	80
	疎水性膜 ITO層	30	30	30	50	50	50	170
外観		クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックなし	クラックあり
素子特性	信頼性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良
	作動状態	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良

[0169] 6. 評価結果

実施例 1 ～ 1 3 で得られた表示素子は前記サイクルを 1 0 0 回繰り返した後も半数以上のセルに着色表示の欠損が生じないことを確認した。特に実施例 3 ～ 1 3 で得られた表示素子は、前記サイクルを 1 0 0 回繰り返した後も 8 割を超えるセルに着色表示の欠損が生じなかった。つまり、実施例で得られた表示素子は、着色オイル（無極性液体）の存在状態をスムーズにかつ長期間安定して変化させることが可能であることが分かった。

また、得られる隔壁の熱線膨張係数が前記範囲になるような組成物を用いると、例えば、高さ面内均一性に優れる隔壁を容易に得ることができたため、所望の形状の隔壁を容易に形成できることが分かった。

[0170] 一方、比較例 1 で得られた表示素子は、表示素子の作動状態の評価において、電圧印加を停止した時の着色オイルの略半球状への変化（収縮挙動）に異常が見られ、半数以上のセルに着色表示の欠損が発生したため、評価結果は不良であった。

符号の説明

- [0171] 1 0 : 表示素子
1 1 : 第 1 電極層スタック
1 2 : 第 2 電極層スタック
1 3 : 隔壁
1 4 : 無極性液体
1 5 : 極性液体
1 6 : 収容空間（画素領域（セル））
2 0 : I T O 層上に形成された隔壁
2 1 : 隔壁
2 2 : I T O 層
2 3 : セル

請求の範囲

- [請求項1] 第1電極層スタックと、第2電極層スタックと、前記第1電極層スタックおよび前記第2電極層スタック間に形成された収容空間と、前記収容空間を区画する隔壁とを備え、
前記収容空間には、少なくとも、互いに非混和性の極性液体と無極性液体とが含まれ、
前記第1電極層スタックと第2電極層スタックの少なくとも一方の前記収容空間に接する面には、前記隔壁に接する表面層が存在し、
前記隔壁と表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 150 ppm/K 以下である、表示素子。
- [請求項2] 前記隔壁の熱線膨張係数は、 $0.1 \sim 150\text{ ppm/K}$ である、請求項1に記載の表示素子。
- [請求項3] 前記隔壁は、感光性組成物から得られる膜である、請求項1または2に記載の表示素子。
- [請求項4] 前記隔壁は、ネガ型感光性組成物から得られる膜である、請求項1～3のいずれか1項に記載の表示素子。
- [請求項5] 前記ネガ型感光性組成物は、アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含む、請求項4に記載の表示素子。
- [請求項6] 前記架橋剤は、エチレン性不飽和基含有化合物、エポキシ基またはオキセタニル基含有化合物およびアルコキシアルキル基含有化合物からなる群より選ばれる少なくとも1つの化合物である、請求項5に記載の表示素子。
- [請求項7] 前記アルカリ可溶性重合体は、カルボキシル基、フェノール性水酸基およびシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1つの官能基を有する化合物である、請求項5または6に記載の表示素子。
- [請求項8] 前記アルカリ可溶性重合体が、アクリル樹脂、ポリイミド、ポリベンゾオキサゾール、ポリシロキサン、ポリオレフィン、カルド骨格を有する樹脂、およびノボラック樹脂からなる群より選ばれる少なくとも

も 1 つの重合体である、請求項 5 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の表示素子。

[請求項9] 前記アルカリ可溶性重合体の重量平均分子量が 1 0 0 0 ～ 1 0 0 0 0 0 である、請求項 5 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の表示素子。

[請求項10] 第 1 電極層スタックと、第 2 電極層スタックと、前記第 1 電極層スタックおよび前記第 2 電極層スタック間に形成された、互いに非混和性の極性液体および無極性液体を含む収容空間、を区画する隔壁であって、

前記第 1 電極層スタックと第 2 電極層スタックの少なくとも一方の前記収容空間に接する面に存在し、かつ、隔壁に接する表面層との熱線膨張係数の差の絶対値が 1 5 0 p p m / K 以下である隔壁、を形成するための、

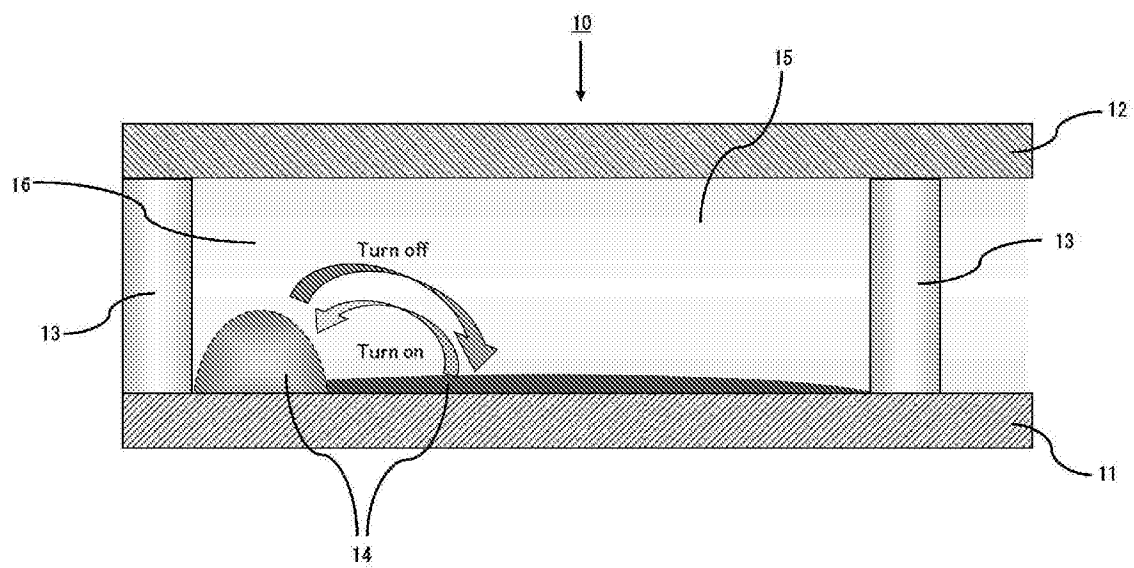
感光性組成物。

[請求項11] アルカリ可溶性重合体、架橋剤および光開始剤を含むネガ型の組成物である、請求項 1 0 に記載の感光性組成物。

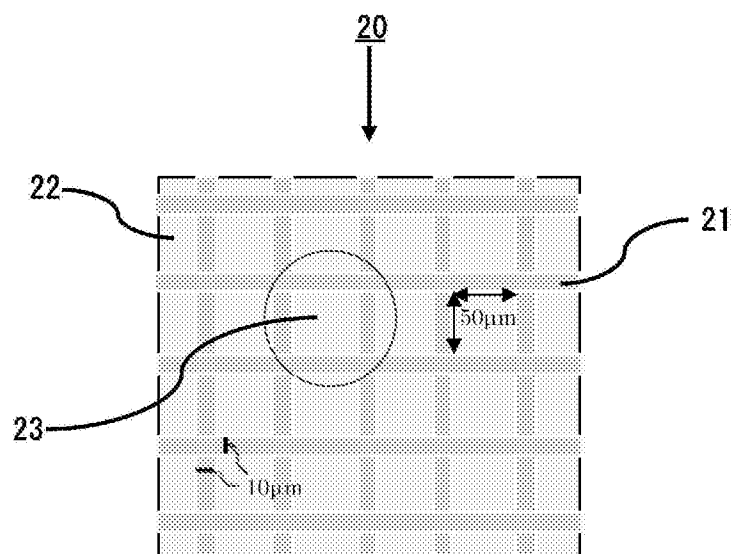
[請求項12] 請求項 1 ～ 9 のいずれか 1 項に記載の表示素子を含む、エレクトロウェットティングディスプレイ。

[請求項13] カラーフィルタ層を含む、請求項 1 2 に記載のエレクトロウェットティングディスプレイ。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/050378

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02F1/17(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02F1/17

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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 2013-519121 A (Pixtronix, Inc.), 23 May 2013 (23.05.2013), claim 38; paragraph [0004]; fig. 2D & US 2011/0157679 A1 & EP 2531881 A & WO 2011/097252 A2 & CN 102834763 A & KR 10-2012-0132680 A	1-2, 10, 12-13 3-9, 11
X Y	JP 5-119325 A (Fujitsu Ltd.), 18 May 1993 (18.05.1993), paragraphs [0045], [0088]; fig. 1 (Family: none)	1-2, 10, 12-13 3-9, 11
X Y	JP 2005-49723 A (Sharp Corp.), 24 February 2005 (24.02.2005), paragraphs [0024], [0036] to [0037] (Family: none)	1-2, 10, 12-13 3-9, 11

☒ 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
25 February 2015 (25.02.15)

Date of mailing of the international search report
10 March 2015 (10.03.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/050378

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2004-513473 A (Candescent Intellectual Property Services, Inc.), 30 April 2004 (30.04.2004), paragraphs [0032], [0070] & US 6722937 B1 & EP 1338023 A & WO 2002/010846 A2 & AU 8085101 A & KR 10-0814221 B1	1-2, 10, 12-13 3-9, 11
Y	JP 2007-293306 A (JSR Corp.), 08 November 2007 (08.11.2007), claim 1; 0038 to 0050 & US 2007/0231747 A1 & EP 1840654 A1 & KR 10-2007-0098654 A	3-9, 11

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G02F1/17(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G02F1/17

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	1971-2015年
日本国実用新案登録公報	1996-2015年
日本国登録実用新案公報	1994-2015年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の 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 請求項の番号
X	JP 2013-519121 A（ピクストロニックス・インコーポレーテッド） 2013.05.23, 請求項38, 段落0004, 図2D	1-2, 10, 12-13
Y	& US 2011/0157679 A1 & EP 2531881 A & WO 2011/097252 A2 & CN 102834763 A & KR 10-2012-0132680 A	3-9, 11
X	JP 5-119325 A（富士通株式会社）1993.05.18, 段落0045, 0088, 図1（ファミリーなし）	1-2, 10, 12-13
Y		3-9, 11

☒ 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

25.02.2015

国際調査報告の発送日

10.03.2015

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A/J P）
郵便番号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）

福村 拓

2 L

3308

電話番号 03-3581-1101 内線 3255

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2005-49723 A (シャープ株式会社) 2005.02.24, 段落0024, 0036-0037 (ファミリーなし)	1-2, 10, 12-13
Y		3-9, 11
X	JP 2004-513473 A (キャンデセント・インテレクチュアル・プロパ ティ・サービシーズ・インコーポレイテッド) 2004.04.30, 段落0032, 0070	1-2, 10, 12-13
Y	& US 6722937 B1 & EP 1338023 A & WO 2002/010846 A2 & AU 8085101 A & KR 10-0814221 B1	3-9, 11
Y	JP 2007-293306 A (J S R株式会社) 2007.11.08, 請求項1, 0038-0050 & US 2007/0231747 A1 & EP 1840654 A1 & KR 10-2007-0098654 A	3-9, 11