

(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  
2012年10月26日(26.10.2012)



(10) 国際公開番号  
WO 2012/144033 A1

- (51) 国際特許分類:  
H01L 33/60 (2010.01) H01B 5/00 (2006.01)  
C09J 9/02 (2006.01) H01B 5/16 (2006.01)  
C09J 11/04 (2006.01) H01L 21/60 (2006.01)  
H01B 1/22 (2006.01) H01L 33/62 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/059724
- (22) 国際出願日: 2011年4月20日(20.04.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社 (SONY CHEMICAL & INFORMATION DEVICE CORPORATION) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎一丁目1番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 波木 秀次 (NAMIKI Hidetsugu) [JP/JP]; 〒3228501 栃木県鹿沼市さつき町18 ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社 鹿沼事業所 第1工場内 Tochigi (JP). 蟹澤 士行 (KANISAWA Shiyuki) [JP/JP]; 〒3228501 栃木県鹿沼市さつき町18 ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社 鹿沼事業所 第1工場内

Tochigi (JP). 馬越 英明 (UMAKOSHI Hideaki) [JP/JP]; 〒3228501 栃木県鹿沼市さつき町18 ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社 鹿沼事業所 第1工場内 Tochigi (JP).

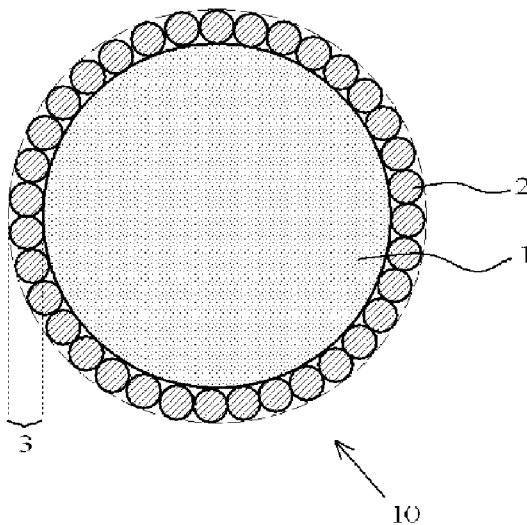
- (74) 代理人: 特許業務法人 田治米国際特許事務所 (TAJIME & TAJIME); 〒2140034 神奈川県川崎市多摩区三田1-26-28 ニューウエル生田ビル201号室 Kanagawa (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, 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 (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,

[続葉有]

(54) Title: LIGHT-REFLECTING CONDUCTIVE PARTICLES, ANISOTROPIC CONDUCTIVE ADHESIVE, AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 光反射性導電粒子、異方性導電接着剤及び発光装置

[図1A]



(57) Abstract: Light-reflecting conductive particles for anisotropic conductive adhesives that are used for an anisotropic conductive connection of a light-emitting element to a wiring board are configured of core particles, each of which is covered with a metal material, and light-reflecting layers that are composed of light-reflecting inorganic particles having a refractive index of 1.52 or more and formed on the surfaces of the core particles. Examples of the light-reflecting inorganic particles having a refractive index of 1.52 or more may include titanium oxide particles, zinc oxide particles and aluminum oxide particles. The coverage of the core particle surfaces by the light-reflecting layers is 70% or more.

(57) 要約: 発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤用の光反射性導電粒子は、金属材料で被覆されているコア粒子と、その表面に屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子から形成された光反射層とから構成される。屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子としては、酸化チタン粒子、酸化亜鉛粒子又は酸化アルミニウム粒子が挙げられる。コア粒子表面の光反射層による被覆率は70%以上である。



WO 2012/144033 A1

NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:  
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, — 國際調查報告 (條約第 21 條(3))  
NE, SN, TD, TG).

## 明 細 書

### 発明の名称：光反射性導電粒子、異方性導電接着剤及び発光装置 技術分野

[0001] 本発明は、発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤用の光反射性導電粒子、それを含有する異方性導電接着剤、その接着剤を用いて発光素子を配線板に実装してなる発光装置に関する。

### 背景技術

[0002] 発光ダイオード（LED）素子を使用した発光装置が広く使用されており、旧タイプの発光装置の構造は、図4に示すように、基板31上にダイボンド接着剤32でLED素子33を接合し、その上面のp電極34とn電極35とを、基板31の接続端子36に金ワイヤ37でワイヤボンディングし、LED素子33全体を透明モールド樹脂38で封止したものとなっている。ところが、図4の発光装置の場合、LED素子33が発する光のうち、上面側に出射する400～500nmの波長の光を金ワイヤが吸収し、また、下面側に出射した光の一部がダイボンド接着剤32により吸収されてしまい、LED素子33の発光効率が低下するという問題がある。

[0003] このため、図5に示すように、LED素子33をフリップチップ実装することが提案されている（特許文献1）。このフリップチップ実装技術においては、p電極34とn電極35とにバンプ39がそれぞれ形成されており、更に、LED素子33のバンプ形成面には、p電極34とn電極35とが絶縁されるように光反射層40が設けられている。そして、LED素子33と基板31とは、異方性導電ペースト41や異方性導電フィルム（図示せず）を用い、それらを硬化させて接続固定される。このため、図5の発光装置においては、LED素子33の上方へ出射した光は金ワイヤで吸収されず、下方へ出射した光の殆どは光反射層40で反射して上方に出射するので、発光効率（光取り出し効率）が低下しない。

### 先行技術文献

## 特許文献

[0004] 特許文献1：特開平11-168235号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、特許文献1の技術ではLED素子33に光反射層40を、p電極34とn電極35とが絶縁されるように金属蒸着法などにより設けなければならない、製造上、コストアップが避けられないという問題があった。

[0006] 他方、光反射層40を設けない場合には、硬化した異方性導電ペーストや異方性導電フィルム中の金、ニッケルあるいは銅で被覆された導電粒子の表面は茶色乃至暗茶色を呈し、また、導電粒子を分散させているエポキシ樹脂バインダー自体も、その硬化のために常用されるイミダゾール系潜在性硬化剤のために茶色を呈しており、発光素子が発した光の発光効率（光取り出し効率）を向上させることが困難であり、しかも光の色（発光色）を、そのままの色で反射させることができないという問題もあった。

[0007] 本発明の目的は、以上の従来技術の問題点を解決することであり、発光ダイオード（LED）素子等の発光素子を配線板に異方性導電接着剤を用いてフリップチップ実装して発光装置を製造する際に、製造コストの増大を招くような光反射層をLED素子に設けなくても、発光効率を低下させずに、しかも発光素子の発光色と反射光色との間に色相差を生じさせない光反射性導電粒子、それを含有した異方性導電接着剤、その接着剤を使用して発光素子を配線板にフリップチップ実装してなる発光装置を提供することである。

### 課題を解決するための手段

[0008] 本発明者は、異方性導電接着剤そのものに光反射機能を持たせれば、発光効率を低下させないようにできるとの仮定の下、異方性導電接着剤に配合する導電粒子の表面に、特定の無機粒子からなる白色～灰色の光反射層を特定の被覆率を下回らないように設けることにより、発光素子の発光効率を低下させず且つ発光素子の発光色と導電粒子の反射光色との間に色相差を生じさ

ないようにできることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] 即ち、本発明は、発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤用の光反射性導電粒子であって、金属材料で被覆されているコア粒子と、その表面に屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子から形成された光反射層とからなり、該コア粒子表面の光反射層による被覆率が70%以上である光反射性導電粒子を提供する。

[0010] また、本発明は、発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤であって、上述の光反射性導電粒子を、波長380~780nmの可視光に対して光路長1cmの光透過率（JIS K7105）が80%以上である硬化物を与える熱硬化性樹脂組成物に分散させてなる異方性導電接着剤を提供する。

[0011] また、本発明は、上述の異方性導電接着剤を介して、発光素子をフリップチップ方式で配線板に実装されてなる発光装置を提供する。

### 発明の効果

[0012] 発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤用の本発明の光反射性導電粒子は、金属材料で被覆されているコア粒子と、その表面に屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子から形成された白色~灰色の光反射層とから構成されており、しかもコア粒子の表面の光反射層による被覆率が70%以上となっているものである。また、本発明の異方性導電接着剤は、この光反射性導電粒子を、波長380~780nmの可視光に対して光路長1cmの光透過率（JIS K7105）が80%以上である硬化物を与える熱硬化性樹脂組成物に分散させてなるものである。従って、本発明の異方性導電接着層を用いて、発光素子を配線板にフリップチップ実装して得た発光装置は、異方性導電接着剤を硬化させても着色が生じず、しかも含有されている光反射性導電粒子は、可視光に対する反射特性の波長依存性が小さいため、発光効率が向上し、しかも発光素子の発光色をそのままの色で反射させることができる。

### 図面の簡単な説明

- [0013] [図1A]異方性導電接着剤用の本発明の光反射性導電粒子の断面図である。
- [図1B]異方性導電接着剤用の本発明の光反射性導電粒子の断面図である。
- [図1C]光反射率と酸化チタンの配合量との関係図である。
- [図2]本発明の発光装置の断面図である。
- [図3]実施例1と比較例1の異方性導電接着剤の硬化物の波長に対する光反射率を示す図である。
- [図4]従来の発光装置の断面図である。
- [図5]従来の発光装置の断面図である。

### 発明を実施するための形態

- [0014] 本発明を図面を参照しつつ詳細に説明する。
- [0015] 図1A、図1Bは、異方性導電接着剤用の本発明の光反射性導電粒子10、20の断面図である。まず、図1Aの光反射性導電粒子から説明する。
- [0016] 光反射性導電粒子10は、金属材料で被覆されているコア粒子1と、その表面に屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子2から形成された光反射層3とから構成される。
- [0017] 屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子2は、太陽光の下では白色を呈する無機粒子である。従って、それらから形成された光反射層3は白色～灰色を呈する。白色～灰色を呈しているということは、可視光に対する反射特性の波長依存性が小さく、且つ可視光を反射しやすいことを意味する。
- [0018] 好ましい光反射性無機粒子2としては、酸化チタン( $\text{TiO}_2$ )粒子、酸化亜鉛( $\text{ZnO}$ )粒子又は酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )粒子から選択された少なくとも一種を挙げることができる。なお、酸化チタン粒子、酸化亜鉛粒子又は酸化アルミニウム粒子のうち、硬化した異方性導電接着剤の熱硬化性樹脂の硬化物の光劣化が懸念される場合には、光劣化に対して触媒性がなく、屈折率も高い酸化亜鉛を好ましく使用することができる。
- [0019] コア粒子1は、異方性導電接続に供されるものであるため、その表面が金属材料で構成されている。ここで、表面が金属材料で被覆されている態様としては、コア粒子1そのものが金属材料である態様、もしくは樹脂粒子の表

面が金属材料で被覆された態様が挙げられる。

- [0020] 金属材料としては、異方性導電接続用の従来の導電粒子において用いられている金属材料を利用することができる。例えば、金、ニッケル、銅、銀、半田、パラジウム、アルミニウム、それらの合金、それらの多層化物（例えば、ニッケルメッキ／金フラッシュメッキ物）等を挙げることができる。中でも、金、ニッケル、銅は、導電粒子を茶色としてしまうことから、本発明の効果を他の金属材料よりも享受することができる。
- [0021] なお、コア粒子1が樹脂粒子を金属材料で被覆したものである場合、樹脂粒子としても、異方性導電接続用の導電粒子として従来より用いられている金属被覆樹脂粒子の樹脂粒子部分を利用することができる。このような樹脂粒子としては、スチレン系樹脂粒子、ベンゾグアナミン樹脂粒子、ナイロン樹脂粒子などが挙げられる。樹脂粒子を金属材料で被覆する方法としても従来公知の方法を採用することができ、無電解メッキ法、電解メッキ法等を利用することができる。また、被覆する金属材料の層厚は、良好な接続信頼性を確保するに足る厚さであり、樹脂粒子の粒径や金属の種類にもよるが、通常、0.1～3 μm、好ましくは0.1～1 μmである。
- [0022] 金属材料表面を有するコア粒子1の粒径は、小さすぎると導通不良となり、大きすぎるとパターン間ショートが発生する傾向があるので、好ましくは1～20 μm、より好ましくは3～5 μm、特に好ましくは3～5 μmである。この場合、コア粒子1の形状としては球形が好ましいが、フレーク状、ラグビーボール状であってもよい。
- [0023] 光反射性無機粒子2から形成された光反射層3の層厚は、コア粒子1の粒径との相対的大きさの観点からみると、コア粒子1の粒径に対し、小さすぎると反射率が低下し、大きすぎると導通不良となる傾向があるので、好ましくは0.5～50%、より好ましくは1～25%である。
- [0024] また、光反射性導電粒子10において、光反射層3を構成する光反射性無機粒子2の粒径は、小さすぎると光反射現象が生じ難くなり、大きすぎると光反射層の形成が困難となる傾向があるので、好ましくは0.02～4 μm

、より好ましくは0.1～1 $\mu$ m、特に好ましくは、0.2～0.5 $\mu$ mである。この場合、光反射させる光の波長の観点からみると、光反射性無機粒子2の粒径は、反射させるべき光（即ち、発光素子が発する光）が透過してしまわないように、その光の波長の50%以上であることが好ましい。この場合、光反射性無機粒子2の形状としては無定型、球状、鱗片状、針状等を挙げることができるが、中でも、光拡散効果の点から球状、全反射効果の点から鱗片状の形状が好ましい。

[0025] 図1Aの光反射性導電粒子10は、大小の粉末同士を物理的に衝突させることにより大粒径粒子の表面に小粒径粒子からなる膜を形成させる公知の成膜技術（いわゆるメカノフュージョン法）により製造することができる。この場合、光反射性無機粒子2は、コア粒子1の表面の金属材料に食い込むように固定され、他方、無機粒子同士が融着固定されにくいから、無機粒子のモノレイヤーが光反射層3を構成する。従って、図1Aの場合、光反射層3の層厚は、光反射性無機粒子2の粒径と同等乃至わずかに薄くなると考えられる。

[0026] 次に、図1Bの光反射性導電粒子20について説明する。この光反射性導電粒子20においては、光反射層3が接着剤として機能する熱可塑性樹脂4を含有し、この熱可塑性樹脂4により光反射性無機粒子2同士も固定され、光反射性無機粒子2が多層化（例えば2層あるいは3層に多層化）している点で、図1Aの光反射性導電粒子10と相違する。このような熱可塑性樹脂4を含有することにより、光反射層3の機械的強度が向上し、無機粒子の剥落などが生じにくくなる。

[0027] 図1Bの光反射性導電粒子20は、メカノフュージョン法により製造することができる。この場合、光反射性無機粒子2とコア粒子1に加えて、微粒子状の熱可塑性樹脂4を併用すればよい。なお、メカノフュージョン法により図1Bの光反射性導電粒子20を製造する場合、図1Aの光反射性導電粒子10も同時に製造される。

[0028] 熱可塑性樹脂4としては、環境負荷の軽減を意図してハロゲンフリーの熱

可塑性樹脂を好ましく使用することができ、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィンやポリスチレン、アクリル樹脂等を好ましく使用することができる。

[0029] このような光反射性導電粒子 20 も、メカノフュージョン法により製造することができる。メカノフュージョン法に適用する熱可塑性樹脂 4 の粒子径は、小さすぎると接着剤としての効果が小さく、大きすぎるとコア粒子 1 に付着し難くなるので、好ましくは 0.02~4  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは 0.1~1  $\mu\text{m}$  である。また、このような熱可塑性樹脂 4 の配合量は、少なすぎると接着剤としての効果が小さく、多すぎると意図しない粒子凝集体が生成してしまうので、コア粒子 1 の 100 質量部に対し、好ましくは 0.2~500 質量部、より好ましくは 4~25 質量部である。

[0030] また、光反射性導電粒子 10、20 において、光反射性無機微粒子 2 を構成要素とする光反射層 3 によるコア粒子 1 の表面の被覆率が低すぎると所望の光反射性を得ることができないことが懸念されるため、被覆率は 70% 以上、好ましくは 80% 以上である。

[0031] このような被覆率の測定は、例えば、光反射性導電粒子を粘着テープ上に単層粒子層となるように配置させ、その 100 倍拡大平面画像を CCD カメラで取得した画像をパソコンに取り込み、画像処理ソフトにより、所定の 2 値化処理（濃淡画像を 2 値画像に変換する処理のこと）に基づいて平均被覆率を算出することにより行うことができる（被覆率測定 A 法）。また、走査型電子顕微鏡で任意に選択した 30 個の導電性粒子を拡大（例えば 8000 倍）し、それぞれの導電性粒子について、付着している絶縁性粒子による被覆状態を平面的にスケッチし、30 個の平均被覆率を算出することにより行うこともできる（被覆率測定 B 法）。あるいは、もっとも低い被覆率から、それ以上に被覆されていると経験的に判断することで行うこともできる（被覆率測定 C 法）。

[0032] また、被覆率の定性的で簡易な経験的判断基準としては、金、ニッケルまたは銅からなる表面を有するコア粒子の表面色が茶色であるのに対し、その

ようなコア粒子が灰色に観察できる場合には、被覆率が70%以上であるという基準が挙げられる。この基準は、樹脂材料と光反射性無機粒子とを配合した塗料の塗布膜の反射率がそのような被覆率と非常に高い相関関係があるという一般的な知見から支持されている。

[0033] 例えば、図1Cに示すように、本明細書の実施例1で使用した熱硬化型エポキシ系バインダー組成物に、平均粒径0.5 $\mu$ mの酸化チタン粉末を、熱硬化型エポキシ系バインダー組成物と酸化チタン粉末との合計に対する酸化チタン粉末の割合が0%、40%、50%、60%、70%、80%、90%、100%となるような量で均一に混合した塗料を、乾燥厚で100 $\mu$ mとなるように黒色板に塗工し、200 $^{\circ}$ Cで1分間加熱し、硬化させ、得られた硬化物について、分光光度計（U3300、（株）日立製作所）を用いて、波長450nmの光に対する反射率（JIS K7105）を測定すると、図1Cの反射率曲線が得られる。図1Cから、熱硬化型エポキシ系バインダー組成物と酸化チタン粉末との合計に対する酸化チタン粉末の割合が70%を境にして急激に増加することが観察される。

[0034] 次に、本発明の異方性導電接着剤について説明する。この異方性導電接着剤は、本発明の光反射性導電粒子を熱硬化性樹脂組成物に分散させたものであり、ペースト、フィルム状等の形態を取ることができる。

[0035] 本発明の異方性導電接着剤に使用する熱硬化性樹脂組成物としては、なるべく無色透明なものを使用することが好ましい。異方性導電接着剤中の光反射性導電粒子の光反射効率を低下させず、しかも入射光の光色を変えずに反射させるためである。ここで、無色透明とは、異方性導電接着剤の硬化物が、波長380~780nmの可視光に対して光路長1cmの光透過率（JIS K7105）が80%以上、好ましくは90%以上となることを意味する。

[0036] 本発明の異方性導電接着剤において、熱硬化性樹脂組成物100質量部に対する光反射性導電粒子の配合量は、少なすぎると導通不良となり、多すぎるとパターン間ショートが発生する傾向があるので、好ましくは1~100

質量部、より好ましくは10～50質量部である。

[0037] 本発明の異方性導電接着剤の反射特性は、発光素子の発光効率を向上させるために、異方性導電接着剤の100 $\mu$ m厚の硬化物の波長450nmの光に対する反射率（JIS K7105）が、少なくとも15%であることが望ましい。このような反射率とするためには、使用する光反射性導電粒子の反射特性や配合量、熱硬化性樹脂組成物の配合組成などを適宜調整すればよい。通常、反射特性の良好な光反射性導電粒子の配合量を増量すれば、反射率も増大する傾向がある。

[0038] また、異方性導電接着剤の反射特性は屈折率（JIS K7142）という観点から評価することもできる。即ち、異方性導電接着剤の熱硬化性樹脂組成物と光反射性導電粒子との間の屈折率の差が大きすぎると、光反射性導電粒子とそれを取り巻く熱硬化性樹脂組成物の硬化物との界面での光反射量が増大するからである。具体的には、熱硬化性樹脂組成物と光反射性無機粒子との間の屈折率の差が0.02以上、好ましくは0.3以上であることが望まれる。なお、通常、エポキシ樹脂を主体とする熱硬化性樹脂組成物の屈折率は約1.5である。

[0039] 本発明の異方性導電接着剤を構成する熱硬化性樹脂組成物としては、従来の異方性導電接着剤や異方性導電フィルムにおいて使用されているものを利用することができる。一般に、このような熱硬化性樹脂組成物は、絶縁性バインダー樹脂に硬化剤を配合したものである。絶縁性バインダー樹脂としては、脂環式エポキシ樹脂や複素環系エポキシ化合物や水素添加エポキシ樹脂などを主成分としたエポキシ系樹脂が好ましく挙げられる。

[0040] 脂環式エポキシ化合物としては、分子内に2つ以上のエポキシ基を有するものが好ましく挙げられる。これらは液状であっても、固体状であってもよい。具体的には、グリシジルヘキサヒドロビスフェノールA、3,4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3',4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレート等を挙げることができる。中でも、硬化物にLED素子の実装等に適した光透過性を確保でき、速硬化性にも優れている点から、グリシジル

ヘキサヒドロビスフェノールA、3, 4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3', 4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレートを好ましく使用することができる。

[0041] 複素環系エポキシ化合物としては、トリアジン環を有するエポキシ化合物を挙げることができ、特に好ましくは1, 3, 5-トリス(2, 3-エポキシプロピル)-1, 3, 5-トリアジン-2, 4, 6-(1H, 3H, 5H)-トリオンを挙げることができる。

[0042] 水素添加エポキシ化合物としては、前述の脂環式エポキシ化合物や複素環系エポキシ化合物の水素添加物や、その他公知の水素添加エポキシ樹脂を使用することができる。

[0043] 本発明において、脂環式エポキシ化合物や複素環系エポキシ化合物や水素添加エポキシ化合物は、単独で使用してもよいが、2種以上を併用することができる。また、これらのエポキシ化合物に加えて、本発明の効果を損なわない限り、他のエポキシ化合物を併用してもよい。例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、テトラメチルビスフェノールA、ジアリールビスフェノールA、ヒドロキノン、カテコール、レゾルシン、クレゾール、テトラブロモビスフェノールA、トリヒドロキシビフェニル、ベンゾフェノン、ビスレゾルシノール、ビスフェノールヘキサフルオロアセトン、テトラメチルビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールF、トリス(ヒドロキシフェニル)メタン、ビキシレノール、フェノールノボラック、クレゾールノボラックなどの多価フェノールとエピクロルヒドリンとを反応させて得られるグリシジルエーテル； グリセリン、ネオペンチルグリコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、チレングリコール、ヘキシレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールなどの脂肪族多価アルコールとエピクロルヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエーテル； p-オキシ安息香酸、β-オキシナフトエ酸のようなヒドロキシカルボン酸とエピクロルヒドリンとを反応させて得られるグリシジルエーテルエステル； フタル酸、メチルフタル酸、イソフタ

ル酸、テレフタル酸、テトラヒドロフタル酸、エンドメチレンテトラヒドロフタル酸、エンドメチレンヘキサヒドロフタル酸、トリメリット酸、重合脂肪酸のようなポリカルボン酸から得られるポリグリシジルエステル；

アミノフェノール、アミノアルキルフェノールから得られるグリシジリアミノグリシジルエーテル； アミノ安息香酸から得られるグリシジリアミノグリシジルエステル； アニリン、トルイジン、トリブロムアニリン、キシリレンジアミン、ジアミノシクロヘキサン、ビスアミノメチルシクロヘキサン、4, 4' -ジアミノジフェニルメタン、4, 4' -ジアミノジフェニルスルホンなどから得られるグリシジリアミン； エポキシ化ポリオレフィン等の公知のエポキシ樹脂類が挙げられる。

[0044] 硬化剤としては、酸無水物、イミダゾール化合物、ジシアンなどを使用することができる。中でも、硬化物を変色させ難い酸無水物、特に脂環式酸無水物系硬化剤を好ましく使用できる。具体的には、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物（Me HHPA）等を好ましく使用することができる。

[0045] 本発明の異方性導電接着剤の熱硬化性樹脂組成物において、脂環式エポキシ化合物と脂環式酸無水物系硬化剤とを使用する場合、それぞれの使用量は、脂環式酸無水物系硬化剤が少なすぎると未硬化エポキシ化合物が多くなって硬化不良を生じ、多すぎると余剰の硬化剤の影響で被着体材料の腐食が促進される傾向があるので、脂環式エポキシ化合物100質量部に対し脂環式酸無水物系硬化剤を好ましくは80～120質量部、より好ましくは95～105質量部の割合で使用する。

[0046] 本発明の異方性導電接着剤は、光反射性導電粒子と熱硬化性樹脂組成物とを均一に混合することにより製造することができる。また、異方性導電接着剤を異方性導電フィルムとして使用する場合には、それらをトルエン等の溶媒とともに分散混合し、剥離処理したPETフィルムに所期の厚さとなるように塗布し、約80℃程度の温度で乾燥すればよい。

[0047] 次に、本発明の発光装置について図2を参照しながら説明する。発光装置200は、基板21上の接続端子22と、発光素子としてLED素子23の

n電極24とp電極25とのそれぞれに形成された接続用のバンプ26との間に、前述の本発明の異方性導電接着剤を塗布し、基板21とLED素子23とがフリップチップ実装されている発光装置である。ここで、異方性導電接着剤の硬化物100は、光反射性導電粒子10が熱硬化性樹脂組成物の硬化物11中に分散してなるものである。なお、必要に応じて、LED素子23の全体を覆うように透明モールド樹脂で封止してもよい。

[0048] このように構成されている発光装置200においては、LED素子23が発した光のうち、基板21側に向かって発した光は、異方性導電接着剤の硬化物100中の光反射性導電粒子10で反射し、LED素子23の上面から出射する。従って、発光効率の低下を防止することができる。

## 実施例

[0049] 実施例1

(光反射性導電粒子の作成)

平均粒子径0.5 $\mu$ mの酸化チタン粉末(KR-380、チタン工業(株))4質量部と、外観色が茶色の平均粒径5 $\mu$ mのAu被覆樹脂導電粒子(平均粒径4.6 $\mu$ mの球状アクリル樹脂粒子に0.2 $\mu$ m厚の無電解金メッキを施した粒子:ブライト20GNB4.6EH、日本化学工業(株))20質量部とを、メカノフュージョン装置(AMS-GMP、ホソカワミクロン(株))に投入し、回転速度1000rpm、回転時間20分という条件で導電粒子の表面に、酸化チタン粒子からなる約0.3 $\mu$ m厚の光反射層を成膜することにより、実施例1の光反射性導電粒子を得た。この光反射性導電粒子の外観色は灰色であった。

[0050] (被覆率測定)

得られた光反射性粒子の光反射層による被覆率を、前述した被覆率測定B法に従って測定した。得られた結果を表1に示す。

[0051] (光反射率測定)

得られた光反射性導電粒子15質量部と、屈折率が約1.5の無色透明な熱硬化型エポキシ系バインダー組成物(YX-8000、JER(株))1

00質量部とを真空脱泡攪拌装置を用いて均一に混合することにより、実施例1の異方性導電接着剤を得た。

[0052] 得られた異方性導電接着剤を、セラミック製の白色板に乾燥厚で100 $\mu$ mとなるように塗布し、200 $^{\circ}$ Cで1分間加熱し、硬化させた。この硬化物について、分光光度計（U3300、（株）日立製作所）を用いて、波長450nmの光に対する反射率（JIS K7105）を測定した。得られた結果を表1及び図3に示す。

[0053] （電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験）

光反射率評価試験の際に調製した異方性導電接着剤を用いて、50 $\mu$ mピッチの銅配線にNi/Au（5.0 $\mu$ m厚/0.3 $\mu$ m厚）メッキ処理した配線を有するガラスエポキシ基板に、15 $\mu$ m高の金バンプを有する6mm角の試験用ICチップ（導体接続面積/導体スペース=1600 $\mu$ m<sup>2</sup>/50 $\mu$ mP）を200 $^{\circ}$ C、60秒、1Kg/チップという条件でフィリップチップ実装し、テスト用ICモジュールを得た。

[0054] 1. 導通信頼性

得られたテスト用ICモジュールに対し、低温（-40 $^{\circ}$ C）と高温（100 $^{\circ}$ C）の温度に交互に加熱・冷却する温度サイクル試験（TCT）（JIS C5030）を行い、初期と500サイクル後の4端子法による抵抗値を測定した。抵抗値が1 $\Omega$ 未満の場合を良好「○」と評価し、1 $\Omega$ 以上となった場合を不良「×」と評価した。得られた結果を表1に示す。

[0055] 2. 絶縁信頼性

別途作成したテスト用ICモジュールに対し、85 $^{\circ}$ C、85%RHの環境下に1000時間放置というエージング試験を行い、初期と1000時間後の抵抗値を測定した。抵抗値が10<sup>6</sup> $\Omega$ 以上の場合を良好「○」と評価し、10<sup>6</sup> $\Omega$ 未満となった場合を不良「×」と評価した。得られた結果を表1に示す。

[0056] 実施例2

メカノフュージョン装置（AMS-GMP、ホソカワミクロン（株））の

回転速度を1000rpmから700rpmに変更し且つ回転時間を20分から10分に変更すること以外、実施例1と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例1と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表1に示す。

[0057] 実施例3

Au被覆樹脂導電粒子に代えて、平均粒子径5.0 $\mu$ mのNi被覆樹脂導電粒子（52NR-4.6EH、日本化学工業（株））を使用すること以外、実施例1と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例1と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表1に示す。

[0058] 実施例4

平均粒子径0.5 $\mu$ mの酸化チタン粉末（KR-380、チタン工業（株））4質量部と、接着剤粒子として平均粒子径0.2 $\mu$ mのポリスチレン（PS）粒子（グロスデール204S、三井化学（株））3質量部と、平均粒径5 $\mu$ mの導電粒子（平均粒径4.6 $\mu$ mの球状アクリル樹脂粒子に0.2 $\mu$ m厚の無電解金メッキを施した粒子：ブライト20GNB4.6EH、日本化学工業（株））20質量部とを、メカノフュージョン装置（AMS-GMP、ホソカワミクロン（株））に投入し、回転速度1000rpm、回転時間20分という条件で導電粒子の表面に、スチレンと酸化チタン粒子とからなる約1 $\mu$ m厚の光反射層を成膜することにより、外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例1と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表1に示す。

[0059] 実施例5

Au被覆樹脂導電粒子に代えて、平均粒子径5.0 $\mu$ mのNi被覆樹脂導電粒子（52NR-4.6EH、日本化学工業（株））を使用すること以外

、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、更に、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0060] 実施例 6

平均粒子径 0.2  $\mu\text{m}$  のポリスチレン粒子（グロスデール 204 S、三井化学（株））に代えて、平均粒子径 0.2  $\mu\text{m}$  のポリエチレン（PE）粒子（アミパール WF 300、三井化学（株））を使用すること以外、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0061] 実施例 7

平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化チタン粉末に代えて、平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化亜鉛粉末（酸化亜鉛 1 種、ハクスイテック（株））を使用すること以外、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0062] 実施例 8

平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化チタン粉末に代えて、平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化アルミニウム粉末（AE-2500SI、（株）アドマテックス）を使用すること以外、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0063] 実施例 9

平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化チタン粉末に代えて、平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$

の炭酸マグネシウムを使用すること以外、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0064] 実施例 10

平均粒子径 0.5  $\mu\text{m}$  の酸化チタン粉末に代えて、平均粒子径 0.2  $\mu\text{m}$  の酸化チタン粉末（JR405、テイカ（株））を使用すること以外、実施例 3 と同様にして外観色が灰色の光反射性導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0065] 比較例 1

外観色が茶色の Au 被覆樹脂導電粒子（平均粒径 4.6  $\mu\text{m}$  の球状アクリル樹脂粒子に 0.2  $\mu\text{m}$  厚の無電解金メッキを施した粒子：ブライト 20GNB4.6EH、日本化学工業（株））を用い、実施例 1 と同様に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0066] 比較例 2

Au 被覆樹脂導電粒子に代えて、外観色が茶色の平均粒子径 5.0  $\mu\text{m}$  の Ni 被覆樹脂導電粒子（52NR-4.6EH、日本化学工業（株））を使用すること以外、比較例 1 と同様に異方性導電接着剤を得た。また、実施例 1 と同様に、反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表 1 に示す。

[0067] 比較例 3

平均粒子径 0.2  $\mu\text{m}$  のポリスチレン系粒子（グロスデール 204S、三井化学（株））3 質量部と、平均粒径 5  $\mu\text{m}$  の導電粒子（平均粒径 4.6  $\mu\text{m}$  の球状アクリル樹脂粒子に 0.2  $\mu\text{m}$  厚の無電解金メッキを施した粒子：

ブライト20GNB4.6EH、日本化学工業（株）20質量部とを、メカノフュージョン装置（AMS-GMP、ホソカワミクロン（株））に投入し、回転速度1000rpm、回転時間20分という条件で導電粒子の表面に、0.2 $\mu$ m厚のスチレン層を成膜することにより、外観色が茶色の樹脂被覆導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例1と同様に、反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表1に示す。

[0068] 比較例4

平均粒子径0.5 $\mu$ mの酸化チタン粉末に代えて、屈折率が1.45で平均粒子径0.5 $\mu$ mの酸化ケイ素（シリカ）粉末（シーホスターKEP-30、（株）日本触媒）を使用すること以外、実施例3と同様にして外観色が茶色の導電粒子を得、更に異方性導電接着剤を得た。また、実施例1と同様に、被覆率及び反射率を測定し、更に電気特性（導通信頼性、絶縁信頼性）評価試験を行った。得られた結果を表1に示す。

[0069]

[表1]

|          |        | 実施例              |                  |                  |                  |                  |                  |                  |                                |                   |                  | 比較例 |     |     |     |                  |
|----------|--------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|--------------------------------|-------------------|------------------|-----|-----|-----|-----|------------------|
|          |        | 1                | 2                | 3                | 4                | 5                | 6                | 7                | 8                              | 9                 | 10               | 1   | 2   | 3   | 4   |                  |
| 原料導電粒子   | 表面金屬   | Au               | Au               | Ni               | Au               | Ni               | Au               | Au               | Au                             | Au                | Au               | Au  | Au  | Ni  | Au  | Au               |
|          | 粒径(μm) | 5.0              | 5.0              | 5.0              | 5.0              | 5.0              | 5.0              | 5.0              | 5.0                            | 5.0               | 5.0              | 5.0 | 5.0 | 5.0 | 5.0 | 5.0              |
| 接着剤粒子    | 種類     | -                | -                | -                | PS               | PS               | PE               | PS               | PS                             | PS                | PS               | PS  | PS  | -   | -   | PS               |
|          | 粒径(μm) | -                | -                | -                | 0.2              | 0.2              | 0.1              | 0.2              | 0.2                            | 0.2               | 0.2              | 0.2 | 0.2 | -   | -   | 0.2              |
| 無機粒子     | 種類     | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | TiO <sub>2</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | MgCO <sub>3</sub> | TiO <sub>2</sub> | -   | -   | -   | -   | SiO <sub>2</sub> |
|          | 粒径(μm) | 0.5              | 0.5              | 0.5              | 0.5              | 0.5              | 0.5              | 0.5              | 0.5                            | 0.5               | 0.2              | -   | -   | -   | -   | 0.5              |
|          | 屈折率n1  | 2.71             | 2.71             | 2.71             | 2.71             | 2.71             | 2.71             | 1.95             | 1.76                           | 1.52              | 2.71             | -   | -   | -   | -   | 1.45             |
| 光反射性導電粒子 | 色      | 灰色               | 灰色               | 灰色               | 灰色               | 灰色               | 灰色               | 灰色               | 灰色                             | 灰色                | 灰色               | 灰色  | 灰色  | 黒色  | 茶色  | 茶色               |
|          | 被覆率(%) | >90              | 75               | >90              | >90              | >90              | >90              | >90              | >90                            | >90               | >90              | >90 | >90 | -   | -   | >90              |
| 導通信頼性    | 反射率(%) | 30               | 20               | 32               | 30               | 32               | 30               | 22               | 17                             | 15                | 30               | 8   | 9   | 8   | 9   | 9                |
|          | 初期     | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                              | ○                 | ○                | ○   | ○   | ○   | ○   | ○                |
| 絶縁信頼性    | TCT後   | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                              | ○                 | ○                | ○   | ○   | ○   | ○   | ○                |
|          | 初期     | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                              | ○                 | ○                | ○   | ○   | ×   | ○   | ○                |
|          | E-シフト後 | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                | ○                              | ○                 | ○                | ○   | ○   | ×   | ×   | ○                |

[0070] 表1から解るように、実施例1～10の光反射性導電粒子を使用した異方性導電接着剤は、光反射層による被覆率が70%以上あり、光反射率がいずれも15%以上あり、450nmの光の青色がそのままの色で反射していた。しかも導通信頼性及び絶縁信頼性も良好な結果であった。

[0071] それに対し、比較例1～3の場合、導電粒子の表面に光反射層を設けていないため、光反射率は10%にも届かず、比較例1、2についてはショートが初期から発生し、比較例3の場合には、エージング後にショートが発生し、絶縁信頼性に問題があった。また、比較例4の場合、光反射層による被覆率が70%以上であるものの、無機粒子として屈折率が1.52未満の酸化ケイ素を使用したので、無機粒子層を形成した後も導電粒子の色が茶色となっており、光反射率が10%程度であった。これは、酸化ケイ素と異方性導電接着剤のバインダー組成物との間の屈折率差が0.02未満であったためと考えられる。

### 産業上の利用可能性

[0072] 本発明の光反射性導電粒子は、発光ダイオード(LED)素子等の発光素子を配線板に異方性導電接着剤を用いてフリップチップ実装して発光装置を製造する際に、製造コストの増大を招くような光反射層を発光素子に設けることなく、発光効率を低下させずに、しかも発光素子の発光色と反射光色との間に色相差を生じさせないようにできる。よって、本発明の異方性導電接着剤は、LED素子をフリップチップ実装する際に有用である。

### 符号の説明

- [0073] 1 コア粒子  
2 光反射性無機粒子  
3 光反射層  
4 熱可塑性樹脂  
10、20 光反射性導電粒子  
11 熱硬化性樹脂組成物の硬化物  
21 基板

- 2 2 接続端子
- 2 3 LED素子
- 2 4 n電極
- 2 5 p電極
- 2 6 バンプ
- 1 0 0 異方性導電接着剤の硬化物
- 2 0 0 発光装置

## 請求の範囲

- [請求項1] 発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤用の光反射性導電粒子であって、金属材料で被覆されているコア粒子と、その表面に屈折率が1.52以上の光反射性無機粒子から形成された光反射層とからなり、該コア粒子表面の光反射層による被覆率が70%以上である光反射性導電粒子。
- [請求項2] コア粒子を被覆する金属材料が、金、ニッケル又は銅である請求項1記載の光反射性導電粒子。
- [請求項3] コア粒子そのものが、金、ニッケル又は銅の粒子である請求項1記載の光反射性導電粒子。
- [請求項4] コア粒子が、樹脂粒子を金、ニッケル又は銅で被覆したものである請求項1又は2記載の光反射性導電粒子。
- [請求項5] コア粒子の粒子径が1~20 $\mu$ mであり、光反射層の層厚がコア粒子径の0.5~50%である請求項1~4のいずれかに記載の光反射性導電粒子。
- [請求項6] 光反射性無機粒子が、酸化チタン粒子、酸化亜鉛粒子又は酸化アルミニウム粒子から選択された少なくとも一種の無機粒子である請求項1~5のいずれかに記載の光反射性導電粒子。
- [請求項7] 光反射層が、熱可塑性樹脂を含有する請求項1~6のいずれかに記載の光反射性導電粒子。
- [請求項8] 熱可塑性樹脂が、ポリオレフィンである請求項7記載の光反射性導電粒子。
- [請求項9] 発光素子を配線板に異方性導電接続するために使用する異方性導電接着剤であって、請求項1~8のいずれかに記載の光反射性導電粒子を、波長380~750nmの可視光に対して光路長1cmの光透過率(JIS K7105)が80%以上である硬化物を与える熱硬化性樹脂組成物に分散させてなる異方性導電接着剤。
- [請求項10] 熱硬化性樹脂組成物100質量部に対する光反射性導電粒子の配合

量が、1～100質量部である請求項9記載の異方性導電接着剤。

[請求項11] 異方性導電接着剤の100 $\mu$ m厚の硬化物の波長450nmの光に対する反射率（JIS K7105）が、少なくとも15%である請求項9又は10記載の異方性導電接着剤。

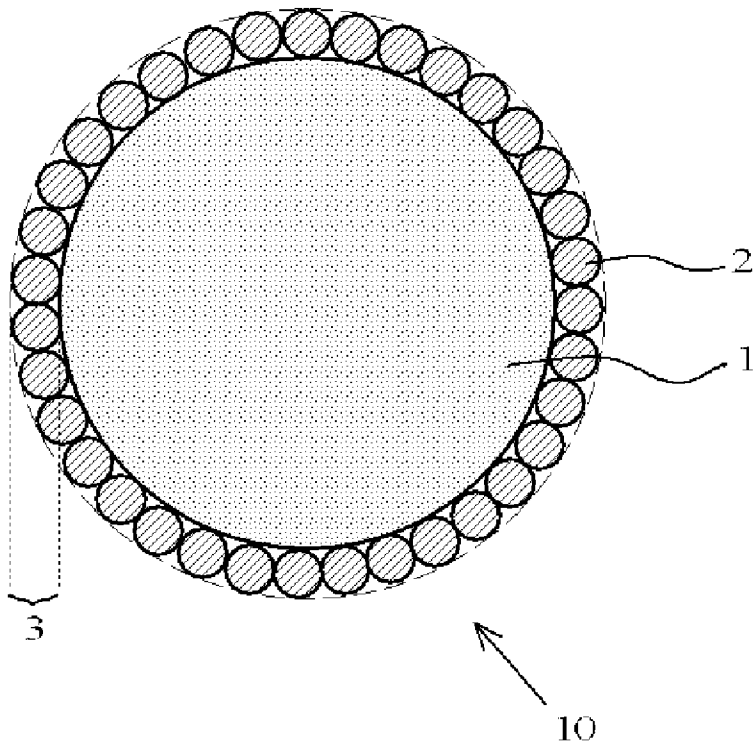
[請求項12] 熱硬化性樹脂組成物と光反射性無機粒子との間の屈折率の差が0.02以上である請求項9～11のいずれかに記載の異方性導電接着剤。

[請求項13] 熱硬化性樹脂組成物が、エポキシ樹脂と酸無水物系硬化剤とを含有する請求項9～12のいずれかに記載の異方性導電接着剤。

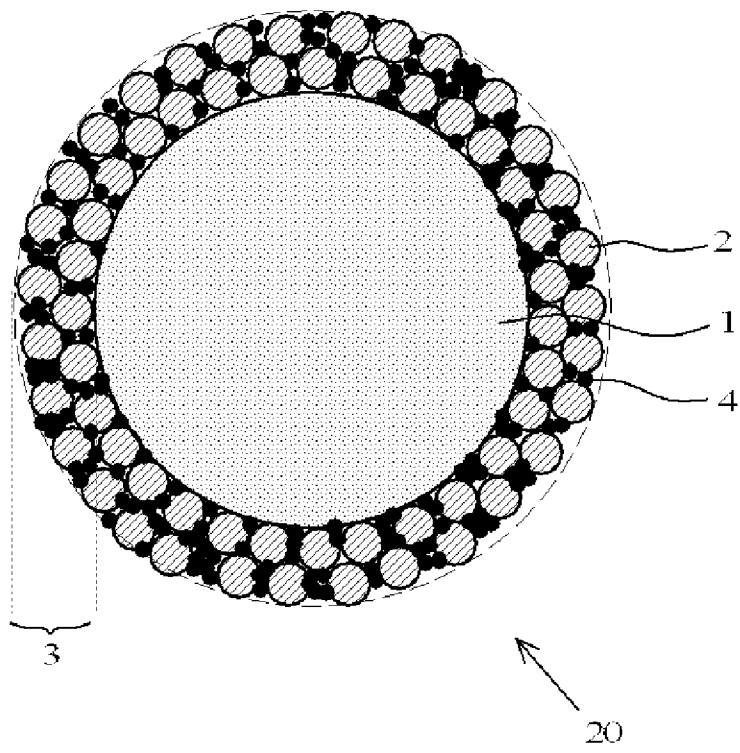
[請求項14] 請求項9～13のいずれかに記載の異方性導電接着剤を介して、発光素子をフリップチップ方式で配線板に実装されている発光装置。

[請求項15] 発光素子が、発光ダイオードである請求項14記載の発光装置。

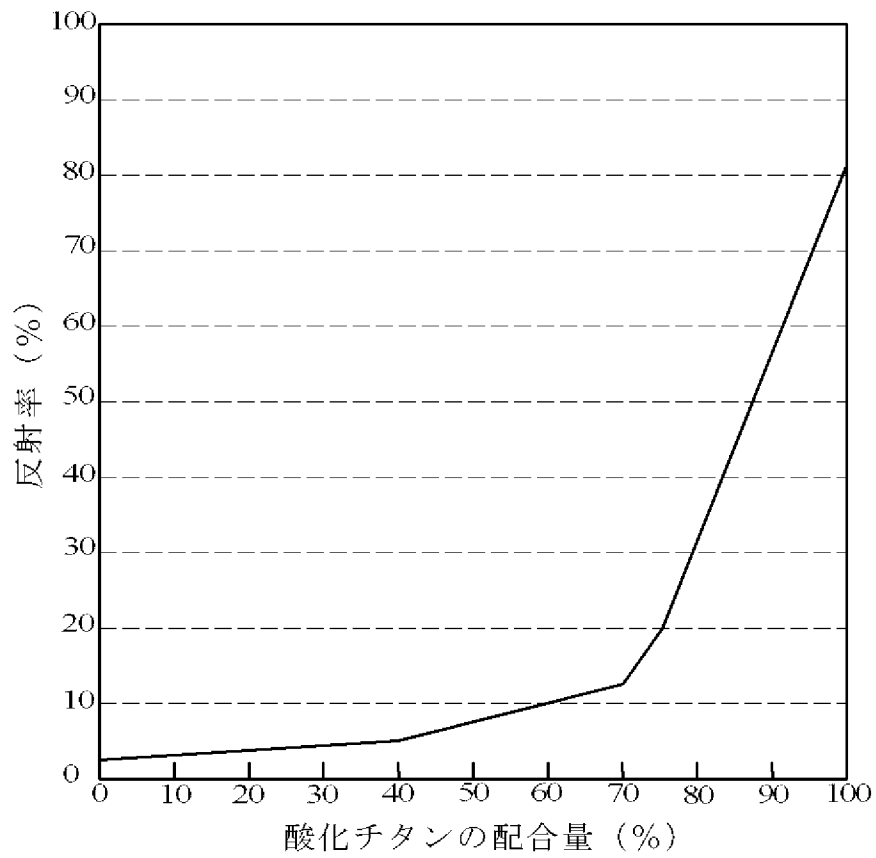
[図1A]



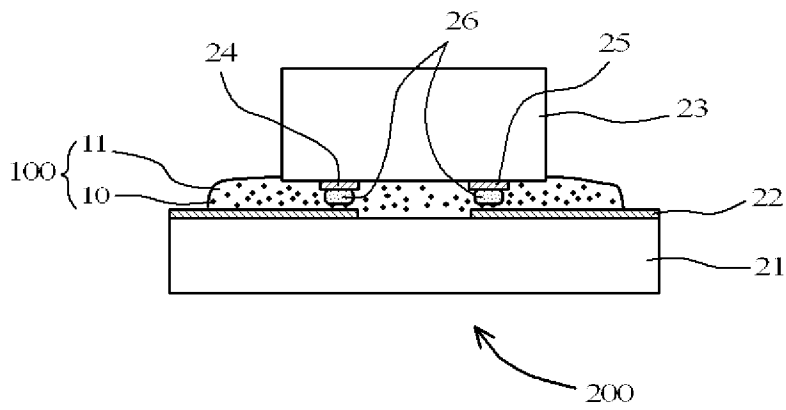
[図1B]



[図1C]

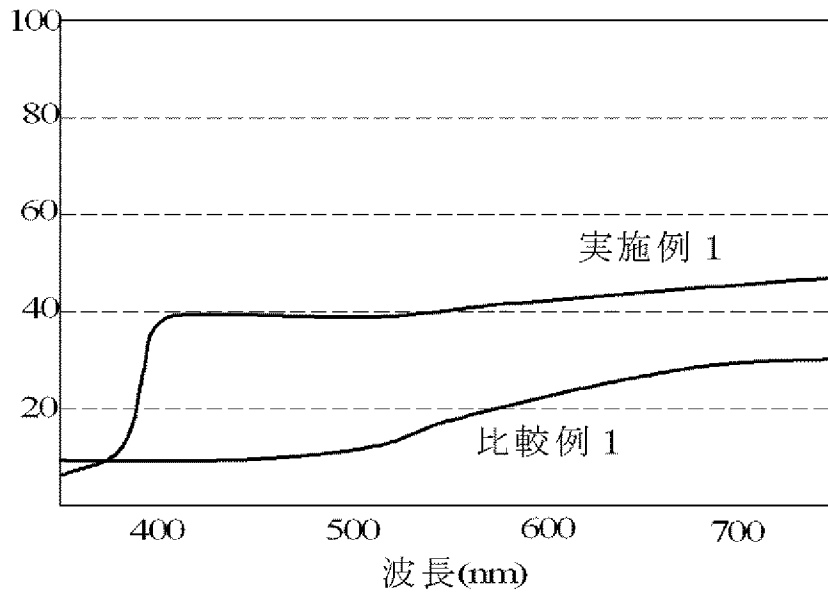


[図2]

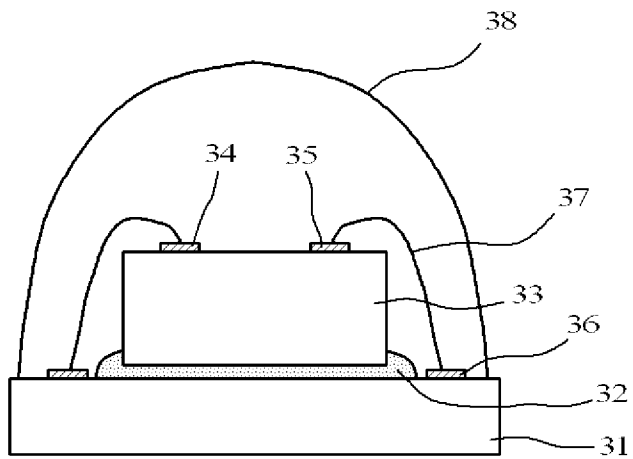


[図3]

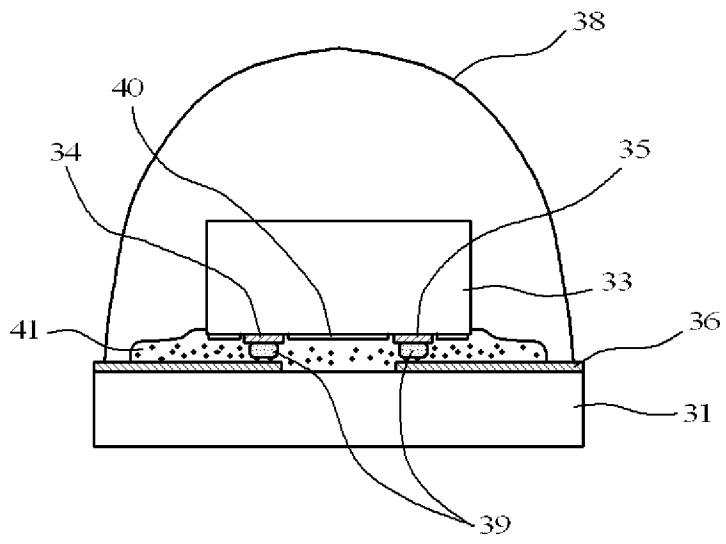
反射率(%)



[図4]



[図5]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/059724

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L33/60(2010.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, H01B1/22(2006.01)i, H01B5/00(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H01L33/62(2010.01)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)

H01L33/00-33/64, C09J1/00-5/10, C09J9/00-201/10, H01B1/00-1/24, H01B5/00-5/16

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 | 1996-2011 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2011 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2011 |

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         | JP 2011-057917 A (Sony Chemical & Information Device Corp.),<br>24 March 2011 (24.03.2011),<br>paragraphs [0030] to [0050], [0069]; fig. 1, 2<br>(Family: none) | 1-15                  |
| A         | JP 2007-123613 A (Nichia Chemical Industries, Ltd.),<br>17 May 2007 (17.05.2007),<br>entire text; all drawings<br>(Family: none)                                | 1-15                  |

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  
16 May, 2011 (16.05.11)

Date of mailing of the international search report  
24 May, 2011 (24.05.11)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/059724

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| A         | JP 2007-157940 A (Nichia Chemical Industries, Ltd.),<br>21 June 2007 (21.06.2007),<br>paragraph [0056]<br>& US 2007/0126356 A1 & CN 1976079 A<br>& KR 10-2007-0058346 A | 1-15                  |
| A         | JP 2007-258324 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.),<br>04 October 2007 (04.10.2007),<br>paragraph [0019]<br>(Family: none)                                     | 1-15                  |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L33/60(2010.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, H01B1/22(2006.01)i, H01B5/00(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H01L33/62(2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L33/00-33/64, C09J1/00-5/10, C09J9/00-201/10, H01B1/00-1/24, H01B5/00-5/16

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 | 1971-2011年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2011年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2011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<br>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<br>請求項の番号 |
|-----------------|---|----------------|
| X               | JP 2011-057917 A (ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社) 2011.03.24, 【0030】 - 【0050】, 【0069】、図 1, 2 (ファミリーなし)           | 1-15           |
| A               | JP 2007-123613 A (日亜化学工業株式会社) 2007.05.17, 全文、全図 (ファミリーなし)   | 1-15           |
| A               | JP 2007-157940 A (日亜化学工業株式会社) 2007.06.21, 【0056】 & US 2007/0126356 A1 & CN 1976079 A & KR 10-2007-0058346 A | 1-15           |

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16.05.2011

国際調査報告の発送日

24.05.2011

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)     | 2K   | 3412 |
| 小林 謙仁                |      |      |
| 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<br>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<br>請求項の番号 |
| A                     | JP 2007-258324 A (松下電器産業株式会社) 2007. 10. 04, 【0019】<br>(ファミリーなし) | 1-15           |