

(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
2020年10月8日(08.10.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/203295 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 9/02 (2006.01) *C09J 163/00* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) *C09J 7/35* (2018.01)
C09J 11/08 (2006.01)

Akifumi); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目
11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8
階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/011982

(22) 国際出願日: 2020年3月18日(18.03.2020)

(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 2019-068612 2019年3月29日(29.03.2019) JP

(71) 出願人: デクセリアルズ株式会社(**DEXERIALS CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階 Tokyo (JP).

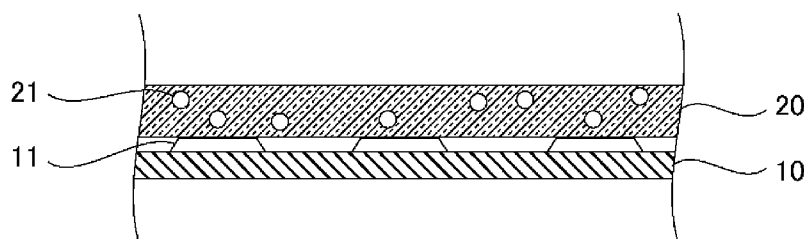
(72) 発明者: 佐藤 大祐(**SATO, Daisuke**); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 樋口 明史(**HIGUCHI,**

(74) 代理人: 野口 信博 (**NOGUCHI, Nobuhiro**); 〒1010054 東京都千代田区神田錦町3-16-11 エルヴァージュ神田錦町2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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 接着剤組成物



(57) Abstract: Provided is an adhesive composition that can achieve high reliability. An adhesive composition that contains silicone particles, a silane coupling agent, a polymerizable compound, and a curing agent. The total surface area of perfectly spherical particles as calculated from the average particle size of the silicone particles is at least $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ per 100 g of the composition. The adhesive composition can thereby improve moisture permeability and achieve high reliability.

(57) 要約: 高い信頼性が得られる接着剤組成物を提供する。接着剤組成物は、シリコーン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、前記シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物100g当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である。これにより、透湿性が向上し、高い信頼性を得ることができる。

[続葉有]



WO 2020/203295 A1

(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:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称： 接着剤組成物

技術分野

[0001] 本技術は、例えばＩＣ(Integrated Circuit)チップとフレキシブル配線板とを接続させる接着剤組成物に関する。本出願は、日本国において２０１９年３月２９日に出願された日本特許出願番号特願２０１９－０６８６１２を基礎として優先権を主張するものであり、この出願は参照されることにより、本出願に援用される。

背景技術

[0002] 従来、例えばＬＣＤ(Liquid Crystal Display)ドライバＩＣをフレキシブル配線板に接続させたデバイスにおいて、デバイスが加熱されると、デバイス内部に侵入した水分が急激に膨張してデバイスを破壊させることがあった。

[0003] これを解決するために、特許文献１には、ディスプレイパネルの内部から引き出され、露出した配線に対して、透湿度が $5 \sim 6 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下の封止材を使用することが提案されている。

[0004] また、特許文献２には、フレキシブル配線板の電極接続部のベースフィルム上に透湿防止材を設けて、その上にリード電極を形成する形態、フレキシブル配線基板の電極接続部に形成されているリード電極の間を透湿防止材にて被覆する形態などが記載され、透湿防止材として、透湿度が $10 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下のものを使用することが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献１：特開２０００－０９０８４０号公報

特許文献２：特開２００４－３２７８７３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 前述の特許文献 1、2 に記載された方法は、配線（アウターリード）に透湿度の低い封止樹脂を使用して耐湿性を向上させるものである。しかしながら、透湿度の低い封止樹脂の使用では、材料点数の増加や材料選定の限界が生じてしまうため、耐湿性評価の試験法の一つである H A S T（Highly Accelerated Temperature and Humidity Stress Test）において、高い信頼性を得ることは困難である。

[0007] 本技術は、前述した課題を解決するものであり、高い信頼性が得られる接着剤組成物を提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者は、デバイス内部に侵入した水分を即座に排出させるために、高い透湿度が得られる接着剤組成物の配合の研究を進めた。その結果、所定量のシリコーン系粒子と、シランカップリング剤とを配合することにより、透湿度が向上するとの知見に基づき、本技術を完成するに至った。

[0009] すなわち、本技術に係る接着剤組成物は、シリコーン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、前記シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である。

[0010] また、本技術に係る接続体の製造方法は、シリコーン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、前記シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物を介して第 1 の電子部品と第 2 の電子部品とを配置する配置工程と、圧着ツールにより前記第 2 の電子部品を前記第 1 の電子部品に圧着させるとともに、前記接着剤組成物を硬化させる硬化工程とを有する。

[0011] また、本技術に係る接続体は、第 1 の電子部品と、第 2 の電子部品と、前記第 1 の電子部品と前記第 2 の電子部品とが接着された接着膜とを備え、前記接着膜は、シリコーン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、前記シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される

真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物が硬化してなり、透湿度が $80 \text{ g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h r}$ 以上である。

発明の効果

[0012] 本技術によれば、所定量のシリコン系粒子と、シランカップリング剤とを配合することにより、透湿性が向上し、高い信頼性を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]図1は、本実施の形態に係る接続体の製造方法の配置工程を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本技術の実施の形態について、図面を参照しながら下記順序にて詳細に説明する。

1. 接着剤組成物
2. 接続体の製造方法
3. 実施例

[0015] <1. 接着剤組成物>

本実施の形態に係る接着剤組成物は、シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である。これにより、透湿性が向上し、耐湿性評価の試験法の一つである HAST (Highly Accelerated Temperature and Humidity Stress Test) において、高い信頼性を得ることができる。

[0016] 接着剤組成物は、フィルム状、又はペースト状のいずれであってもよい。取り扱いのし易さからはフィルム状であることが好ましく、コストの面からはペースト状であることが好ましい。また、接着剤組成物の硬化型としては、熱硬化型、光硬化型、光熱併用硬化型などが挙げられ、用途に応じて適宜選択することができる。

[0017] 以下、熱硬化型の接着剤組成物を例に挙げて説明する。熱硬化型としては

、例えば、カチオン硬化型、アニオン硬化型、ラジカル硬化型、又はこれらを併用することができる。重合性化合物としては、イオン重合基（カチオン重合、アニオン重合）を有するエポキシ化合物、オキセタン化合物、ラジカル重合基を有する（メタ）アクリル化合物などが挙げられ、これらを単独又は2種以上を組み合わせる用いることができる。また、シランカップリング剤としては、エポキシ基、（メタ）アクリル基、ビニル基などの官能基を有するシランカップリング剤が挙げられ、重合性化合物の種類に応じて適宜選択することができる。

[0018] 熱硬化型の具体例として、アニオン硬化型のエポキシ系樹脂組成物を示す。具体例として示す接着剤組成物は、シリコン系粒子と、エポキシ系シランカップリング剤と、エポキシ化合物と、エポキシ硬化剤とを含有する。これにより、高い透湿度を有するエポキシ系接着剤を得ることができる。

[0019] シリコン系粒子としては、例えば、オルガノポリシロキサンを架橋した構造を有するシリコンゴムパウダー、シロキサン結合が $(R Si O_{3/2})_n$ で表される三次元網目状に架橋した構造を有するシリコンレジンパウダー、球状シリコンゴムパウダーの表面をシリコンレジンで被覆した球状粉末であるシリコン複合パウダーなどが挙げられ、これらの中から1種を単独で、又は2種以上を組み合わせる用いることができる。これらの中でも分散性の観点から、シリコン系粒子は、シリコン複合パウダーを含むことが好ましい。市場で入手可能なシリコン複合パウダーの具体例としては、信越化学工業（株）の商品名「KMP-600」、「KMP-605」、「X-52-7030」などを挙げることができる。

[0020] シリコン系粒子の平均粒子径は、好ましくは5 μm 以下、より好ましくは3 μm 以下、さらに好ましくは1 μm 以下である。これにより、接着剤組成物中のシリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計値を大きくすることが可能となる。

[0021] シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計は、組成物100 g当たり $10 \times 10^3 m^2$ 以上、より好ましくは組成物100

g 当たり $25 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上 $150 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以下、さらに好ましくは組成物 100 g 当たり $50 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上 $150 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以下である。シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が大きくなるほど、透湿度が高くなるが接着強度が低下する傾向にある。

[0022] なお、接着剤組成物中のシリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計は、例えば、シリコン系粒子の比表面積と、シリコン系粒子の添加量とから算出することができる。また、シリコン系粒子の比表面積は、例えば、平均粒子径より算出した粒子 1 個当たりの表面積と、平均粒子径及び真比重より算出した粒子 1 個当たりの質量とから求めることができる。

[0023] シリコン系粒子の配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物 100 質量部に対し、例えば 1～30 質量部とすることが好ましく、5～30 質量部とすることがより好ましく、10～30 質量部とすることがさらに好ましい。なお、接着剤組成物に導電粒子を配合する場合には、導電粒子を除く接着剤組成物 100 質量部に対する質量部の範囲である。

[0024] エポキシ系シランカップリング剤は、エポキシ基と、加水分解性基の両者を有する有機ケイ素化合物であり、シリコン系粒子とマトリックス樹脂であるエポキシ樹脂とを化学結合させ、分散性を向上させる。

[0025] エポキシ系シランカップリング剤としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、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等のエポキシ構造を有するシラン化合物を挙げることができる。市場で入手可能なエポキシ系シランカップリング剤の具体例としては、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン（合）の「A-187」などを挙げることができる。

[0026] エポキシ系シランカップリング剤の配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物 100 質量部に対し、例えば 0.1～10 質量部とすることが好ましく、0.1～5 質量部とすることがより好ましく、0.5～1 質量部とすることがさらに好ましい。

[0027] エポキシ化合物としては、特に限定されず、ナフタレン型エポキシ化合物、グリシジルエーテル型エポキシ化合物、グリシジルエステル型エポキシ化合物、脂環型エポキシ化合物、ビスフェノールA型エポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物、ノボラックフェノール型エポキシ化合物、ビフェニル型エポキシ化合物などが挙げられ、これらの中から1種を単独で、又は2種以上を組み合わせる用いることができる。市場で入手可能なナフタレン型2官能性エポキシ樹脂の具体例としては、DIC（株）の「HP4032D」などを挙げることができる。

[0028] エポキシ化合物の配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物100質量部に対し、例えば1～30質量部とすることが好ましく、1～20質量部とすることがより好ましく、1～10質量部とすることがさらに好ましい。

[0029] エポキシ硬化剤としては、イミダゾール類、多価フェノール類、酸無水物類、アミン類、ヒドラジド類、ポリメルカプタン、ルイス酸－アミン錯体などが挙げられ、これらの中から1種を単独で、又は2種以上を組み合わせる用いることができる。これらの中でも保存安定性と硬化物の耐熱性の観点から、エポキシ硬化剤は、イミダゾール類を含むことがより好ましい。また、保存安定性、可使時間の観点から、エポキシ硬化剤をポリウレタン系、ポリエステル系の高分子物質等で被覆してマイクロカプセル化したマイクロカプセル型の潜在性硬化剤を用いることが好ましい。市場で入手可能なイミダゾール系の潜在性硬化剤としては、旭化成ケミカルズ（株）の「HP3941」などを挙げることができる。

[0030] エポキシ硬化剤の配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物100質量部に対し、例えば5～70質量部とすることが好ましく、10～60質量部とすることがより好ましく、20～50質量部とすることがさらに好ましい。

[0031] また、具体例として示す接着剤組成物は、ポリマー、ゴム成分を含有する

ことが好ましい。

[0032] ポリマーとしては、ビスフェノールA型フェノキシ樹脂、ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、ビスフェノールS型フェノキシ樹脂、フルオレン骨格を有するフェノキシ樹脂、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、ポリフェニレンスルフィド、ポリテトラフルオロエチレン、ポリカーボネートなどが挙げられ、これらは単独又は2種以上を組み合わせ用いることができる。これらの中でも、膜形成状態、接続信頼性等の観点からビスフェノールA型フェノキシ樹脂が好適に用いられる。フェノキシ樹脂は、ビスフェノール類とエピクロルヒドリンより合成されるポリヒドロキシポリエーテルである。市場で入手可能なフェノキシ樹脂の具体例としては、新日鐵住金化学（株）の商品名「Y P - 5 0」などを挙げるができる。

[0033] ポリマーの配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物100質量部に対し、例えば質量部とすることが好ましく、10～60質量部とすることがより好ましく、20～50質量部とすることがさらに好ましい。

[0034] ゴム成分としては、アクリルゴム（ACR）、ブタジエンゴム（BR）、ニトリルゴム（NBR）などが挙げられ、これらは単独又は2種以上を組み合わせ用いることができる。これらの中でも、膜形成状態、接続信頼性等の観点からアクリルゴムが好適に用いられる。市場で入手可能なアクリルゴムの具体例としては、長瀬ケムテックス（株）の商品名「SG80H」などを挙げるができる。

[0035] また、ゴム成分として、弾性粒子を含有することが好ましい。弾性粒子は、内部応力を吸収することができ、また、硬化阻害を起こさないため、高い接続信頼性を与えることができる。弾性粒子としては、架橋アクリロニトリルブタジエンゴム粒子、架橋スチレンブタジエンゴム粒子、アクリルゴム粒子、シリコン粒子などが挙げられる。市場で入手可能な架橋アクリロニトリルブタジエンゴム粒子の具体例としては、XER-91（平均粒子径0.5 μ m、JSR社製）などが挙げられる。

[0036] ゴム成分の配合量は、シリコン系粒子を除く接着剤組成物100質量部

に対し、例えば1～30質量部とすることが好ましく、5～25質量部とすることがより好ましく、10～20質量部とすることがさらに好ましい。

[0037] 接着剤組成物の最低溶融粘度は、 $1 \sim 100000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であることが好ましく、 $10 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であることがより好ましい。最低溶融粘度が高すぎると、熱圧着時に電極間のバインダーが十分に排除できないため、接続抵抗が上昇する傾向にある。一方、最低溶融粘度が低すぎると、熱圧着時の加重による接着剤組成物の変形が大きくなるため、加圧解放時に接着剤組成物の復元力が接続部界面等に剥離方向の力として加わる。このため、熱圧着直後に接続抵抗が上昇したり、接続部に気泡が発生したりする傾向がある。

[0038] このような構成の接着剤組成物は、硬化後の 40°C の温度及び90%の相対湿度の条件で測定される透湿度が、好ましくは $80 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上、より好ましくは $85 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上、さらに好ましくは $90 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上である。これにより、接着剤組成物で接着したデバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができ、HASTにおいて、高い信頼性を得ることができる。なお、透湿度は、JIS Z 0208の防湿包装材料の透湿度試験方法（カップ法）に準拠し、 40°C 、相対湿度90%の条件で測定することができる。

[0039] このような接着剤組成物によれば、デバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができるため、優れた接続信頼性を得ることができる。耐水性を持たせた場合には、浸入した水分が滞留することになる。本発明態様を換言すると、一定の水分の浸入を許容する代わりに、接着性の劣化を過度に進行させる水分の保持は許容しないものとも言える。求められる耐水条件を調整できる点で、デバイス及びそれを組み込む機器類の設計条件の選択性を広げる効果がある。例えば、耐候性が求められる携帯端末やウェアラブル端末の他にも、より高い耐候性が求められると想定されるバイクや自動車、飛行装置（ドローンや飛行機など）、船舶類といった移動体、乗り物の電装に使用できる利点が挙げられる。

[0040] また、接着剤組成物は、シリコン系粒子の平均粒子径よりも大きい平均粒子径を有する導電粒子をさらに含有した導電性接着剤としてもよい。導電粒子を含有する場合、導電粒子の平均粒子径は、挟持を阻害しないよう、導電粒子以外の固形配合物の平均粒子径よりも大きいことが好ましい。シリコン粒子の平均粒子径に対する導電粒子の平均粒子径の比は、導電性の観点から、好ましくは1.5以上、より好ましくは2.0以上、さらに好ましくは3.5以上である。これは、シリコン系粒子が導電粒子の圧縮や扁平化を阻害しないためには数値は大きい方がよい。一方、導電粒子が電極間に挟持される場合に、電極上の酸化物などを突き破るのを補助するためには、圧縮や扁平化した導電粒子と一緒にシリコン系粒子を挟持することが好ましい場合もあるため、数値は小さい方がよい場合もある。好ましくは1.1以下、より好ましくは1.07以下、更により好ましくは1.05以下である。これらは、目的に合わせて適宜調整すればよい。

[0041] 導電性接着剤は、フィルム状の導電性フィルム、又はペースト状の導電性ペーストのいずれであってもよい。取り扱いのし易さからは導電性フィルムが好ましく、コストの面からは導電性ペーストが好ましい。また、導電接着剤及び導電性フィルムは、異方性導電接着剤及び異方性導電フィルムとして用いることもできる。また、これらの構造体は、異方性接続構造体であってもよい。

[0042] 導電粒子としては、導電性フィルムにおいて使用されている公知の導電粒子を用いることができる。例えば、ニッケル、鉄、銅、アルミニウム、錫、鉛、クロム、コバルト、銀、金等の各種金属や金属合金の粒子、金属酸化物、カーボン、グラファイト、ガラス、セラミック、プラスチック等の粒子の表面に金属をコートしたもの、これらの粒子の表面に更に絶縁薄膜をコートさせる、絶縁性微粒子を付着させる、といった絶縁処理をしたもの等が挙げられる。これらの中から2種以上を混在させてもよい。樹脂粒子の表面に金属をコートしたものである場合、樹脂粒子としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリル樹脂、アクリロニトリル・スチレン（AS）樹

脂、ベンゾグアナミン樹脂、ジビニルベンゼン系樹脂、スチレン系樹脂等の粒子を用いることができる。

[0043] 導電粒子の平均粒径としては、通常 $1 \sim 30 \mu\text{m}$ 、好ましくは $2 \sim 20 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $2.5 \sim 15 \mu\text{m}$ である。また、バインダー樹脂中の導電粒子の平均粒子密度は、接続信頼性及び絶縁信頼性の観点から、好ましくは $100 \sim 100000 \text{個}/\text{mm}^2$ 、より好ましくは $500 \sim 80000 \text{個}/\text{mm}^2$ である。例えば、フィルム状にしてフィルム面を光学顕微鏡や金属顕微鏡により得られた観察結果を、画像解析ソフト WinROOF（三谷商事（株））により、求めることができる。

[0044] また、導電粒子は、絶縁性樹脂中に分散されていてもよく、フィルム状の場合では、フィルム平面視において個々に独立していてもよく、また任意に配置されて存在していてもよい。導電粒子が配置される場合、接続される電極のサイズやレイアウトに応じて、個数密度や導電粒子間距離などを設定することができる。このため、捕捉向上、ショート抑制などに効果があり、歩留まりの向上などコスト削減効果も見込まれる。

[0045] 導電性接着剤の最低溶融粘度は、 $1 \sim 100000 \text{Pa} \cdot \text{s}$ であることが好ましく、 $10 \sim 10000 \text{Pa} \cdot \text{s}$ であることがより好ましい。最低溶融粘度の適性化は、導電粒子の圧縮変形特性にも依存するが、最低溶融粘度が高すぎると、熱圧着時に導電粒子と電極との間のバインダーが十分に排除できないため、接続抵抗が上昇する傾向にある。特に、突起を有する導電粒子は、熱圧着時に導電粒子と電極との間のバインダーを十分に排除するのが困難となる。一方、最低溶融粘度が低すぎると、熱圧着時の加重による導電性接着剤の変形が大きくなるため、加圧解放時に導電性接着剤の復元力が接続部界面等に剥離方向の力として加わる。このため、熱圧着直後に接続抵抗が上昇したり、接続部に気泡が発生したりする傾向がある。

[0046] このような構成の導電性接着剤は、硬化後の 40°C の温度及び 90% の相対湿度の条件で測定される透湿度が、好ましくは $80 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{hr}$ 以上、より好ましくは $85 \text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{hr}$ 以上、さらに好ましくは $90 \text{g}/\text{m}$

$2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上である。これにより、導電性接着剤で接着したデバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができ、HASTにおいて、高い信頼性を得ることができる。なお、透湿度は、JIS Z 0208の防湿包装材料の透湿度試験方法（カップ法）に準拠し、 40°C 、相対湿度90%の条件で測定することができる。

[0047] このような導電性接着剤によれば、デバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができるため、優れた接続信頼性を得ることができる。

[0048] <2. 接続体の製造方法>

本実施の形態に係る接続体の製造方法は、シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、組成物100g当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物を介して第1の電子部品と第2の電子部品とを配置する配置工程と、圧着ツールにより第2の電子部品を第1の電子部品に圧着させるとともに、接着剤組成物を硬化させる硬化工程とを有する。ここで、圧着ツールとは、第1の電子部品もしくは第2の電子部品、またはその両方から加圧するものを指す。また、圧着ツールの形状や材質は特に限定はされないが、一例として、加熱機構を備えた金属製の平坦状のものが挙げられる。これは、公知の熱圧着装置に使用されるものであってもよい。また、光を照射する機構を備えてもよい。

[0049] また、本実施の形態に係る接続体は、第1の電子部品と、第2の電子部品と、第1の電子部品と第2の電子部品とが接着された接着膜とを備え、接着膜は、シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物100g当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物が硬化してなり、透湿度が $80 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上である。

[0050] 本実施の形態に係る接続体は、第1の電子部品と第2の電子部品とが接着された接着膜が、高い透湿度を有するため、デバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができ、HASTにおいて、高い信頼性を得ることが

できる。

[0051] 以下、接着フィルムを用いた接続体の製造方法について説明する。図1は、本実施の形態に係る接続体の製造方法の配置工程を模式的に示す断面図である。なお、接着フィルムを構成する接着剤組成物は、前述と同様のため、ここでは説明を省略する。

[0052] [配置工程 (S1)]

図1に示すように、配置工程 (S1) では、第1の電子部品10上にシリコン系粒子21を含有する接着フィルム20を配置する。第1の電子部品10は、第1の端子列11を備える。第1の電子部品10は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。第1の電子部品10としては、例えば、LCD (Liquid Crystal Display) パネル、有機EL (OLED) などのフラットパネルディスプレイ (FPD) 用途、タッチパネル用途などの透明基板、プリント配線板 (PWB)、フレキシブル基板 (FPC: Flexible Printed Circuits) などが挙げられる。プリント配線板の材質は、特に限定されず、例えば、FR-4 基材などのガラエポでもよく、熱可塑性樹脂などのプラスチック、セラミックなども用いることができる。また、透明基板は、透明性の高いものであれば特に限定はなく、ガラス基板、プラスチック基板などが挙げられる。これらの中でも、耐熱性の観点からセラミック基板が好適に用いられる。

[0053] また、第1の電子部品に対向する第2の電子部品としては、ICやフレキシブル基板等のメッキバンプが形成されていることが好ましい。メッキバンプは、ディンプルが低い、もしくはないことが好ましく、又は表面がフラットであることが好ましい。また、メッキバンプの表面は、圧着時に接触面積を増大させる観点からレベリングされていることが好ましい。また、配線基板には、スタッドバンプが形成されていてもよい。

[0054] 接着フィルム20は、前述した接着剤組成物をフィルム状にしてものであるため、ここでは詳細な説明を省略する。接着フィルム20の厚みは、1~100 μm であることが好ましく、10~50 μm であることがより好まし

い。単層の場合にも、多層にした場合においても、この範囲は同様となる。
また、ペースト状の場合には、接続に使用する際の厚みを指す。

[0055] 〔硬化工程（S2）〕

硬化工程（S2）では、接着フィルム20上に第2の電子部品を配置し、
圧着ツールにより第2の電子部品を第1の電子部品10に加圧して、熱を加
えながら圧着させる。また、硬化工程（S2）では、圧着ツールを用いて、
好ましくは250℃以下の温度、より好ましくは220℃以下の温度、さら
に好ましくは200℃以下の温度で押圧する。これにより、圧着ツールの熱
により樹脂が溶融し、圧着ツールにより第2の電子部品が十分に押し込まれ
、樹脂が熱硬化するため、優れた接着性を得ることができる。この場合、圧
着ツールには、加熱機構が組み込まれていることを前提としているが、圧着
ツールに加熱機構が組み込まれていない方法により接着フィルム20を加熱
させ硬化させてもよい。

[0056] 第2の電子部品は、第1の端子列11に対向する第2の端子列を備える。
第2の電子部品は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ
る。第2の電子部品としては、例えば、IC（Integrated Circuit）、フレ
キシブル基板（FPC：Flexible Printed Circuits）、テープキャリアパッ
ケージ（TCP）基板などが挙げられる。ICをFPCに実装した場合には
、COF（Chip On Film）となる。

[0057] また、硬化工程（S2）では、圧着ツールと第2の電子部品との間に緩衝
材を使用してもよい。緩衝材としては、ポリテトラフルオロエチレン（PT
FE：polytetrafluoroethylene）、ポリイミド、ガラスクロス、シリコンラ
バーなどを用いることができる。

[0058] このような接続体の製造方法によれば、第1の電子部品と第2の電子部品
とを接着させる接着膜が、高い透湿度を有するものとなるため、デバイス内
部に侵入した水分を即座に排出させることができ、HASTにおいて、高い
信頼性を得ることができる。

[0059] 〔変形例〕

なお、上述した実施の形態では、接着フィルムを用いて第1の電子部品と第2の電子部品とを接続することとしたが、これに限られることなく、導電粒子を含有した導電性接着フィルムを用いて第1の電子部品と第2の電子部品とを接続するようにしてもよい。また、導電性接着フィルムは、導電粒子を含有する層（便宜的に、導電粒子含有層とする）と、導電粒子を含有しない層（便宜的に、導電粒子非含有層とする）からなる2層以上の構成であってもよい。また、ペースト状の場合にも、接続時に同様の構成をとることができる。

<3. 実施例>

実施例

[0060] 以下、本技術の実施例について説明する。第1の実施例では、接着剤組成物の一形態として接着フィルムを作製し、接続体を作製した。そして、硬化後の接着フィルムの透湿度、接続体の初期の接着強度、及び信頼性試験後の接着強度、並びに、接続体の初期の導通抵抗、及び信頼性試験後の導通抵抗を測定した。

[0061] [接着フィルムの作製、及び透湿度の測定]

表1に示す材料を配合して厚み $35\mu\text{m}$ の接着フィルムを作製した。また、透湿度の測定のために、接着フィルムを温度 200°C で硬化させて試料フィルムを作製した。透湿度は、JIS Z 0208の防湿包装材料の透湿度試験方法（カップ法）に準拠し、 40°C 、相対湿度90%の条件で測定した。具体的には、カップに塩化カルシウム（無水）を封入し、試料フィルムでカバーしたカップを、恒温恒湿状態に静置し、一定時間毎に秤量操作を繰り返す、カップの質量増加を水蒸気の透過量として評価した。

[0062] [接続体の作製]

ベアチップ（ICチップ）は、厚み 0.4mm 、幅 6mm 、長さ 6mm （ $6\text{mm}\times 6\text{mm}$ ）であり、導通測定用配線（バンプサイズ： $50\times 50\mu\text{m}$ 、ピッチ： $85\mu\text{m}$ （バンプ間スペース $35\mu\text{m}$ ）、金バンプ高さ $h=15\mu\text{m}$ ）を形成した測定用TEG（Test Element Group）を用いた。金バンプ

は、メッキバンプであり、ディンプルのない平滑なものを用いた。

[0063] フレキシブル配線板 (FPC: Flexible Printed Circuits) は、基材がポリイミドであり、厚みが $25\ \mu\text{m}$ 、ピッチ: $85\ \mu\text{m}$ ($L/S = 45/40$)、Top: $40\ \mu\text{m}$ である導通測定用配線を形成した測定用 TEG を用いた。

[0064] 接着フィルムを用いてフレキシブル配線板上にベアチップを実装した。熱圧着条件は、温度 200°C 、圧力 100MPa 、 10sec とした。また、熱圧着時に、緩衝材として厚み $50\ \mu\text{m}$ のポリテトラフルオロエチレンシートをベアチップ上に配置した。

[0065] [接着強度の測定]

接続体のフレキシブル配線板を引っ張り速度 50mm/sec で 90° 方向に引き剥がし、その引き剥がしに要したピール強度の最大値を接着強度とした。初期の接続体、及び信頼性試験後の接続体について測定した。信頼性試験は、JEDEC (JESD22-A110) に準拠し、温度 110°C 、湿度 85% 、時間 264hr の条件とした。

[0066] [導通抵抗の測定]

ベアチップとフレキシブル配線板との接続状態について、デジタルマルチメータを使用して、接続初期及び信頼性試験後における導通抵抗 (Ω) を測定した。導通抵抗値の測定は、ベアチップのバンプに接続されたフレキシブル配線板の配線にデジタルマルチメータを接続し、4端子法にて電流を 1mA 流して導通抵抗値を測定した。信頼性試験は、JEDEC (JESD22-A110) に準拠し、温度 110°C 、湿度 85% 、時間 264hr の条件とした。

[0067]

[表1]

[illegible]

ポリマー：Y P - 5 0（新日鐵住金化学（株））

エポキシ硬化剤：H P 3 9 4 1（旭化成ケミカルズ（株））

エポキシ化合物：H P 4 0 3 2 D（D I C（株））

ゴム粒子：X E R - 9 1（J S R（株））

ゴム成分：S G 8 0 H（ナガセケムテックス（株））

カップリング剤：A - 1 8 7（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン（合））

シリコーン系粒子A：X - 5 2 - 7 0 3 0（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $0.8\mu\text{m}$ 、真比重 1.01

シリコーン系粒子B：K M P - 6 0 5（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $2\mu\text{m}$ 、真比重 0.99

シリコーン系粒子C：K M P - 6 0 0（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $5\mu\text{m}$ 、真比重 0.99

[0068] なお、シリコーン系粒子の比表面積は、平均粒子径より算出した粒子1個当たりの表面積と、平均粒子径及び真比重より算出した粒子1個当たりの質量とから求めた。

[0069] 表1に示すように、シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、組成物 100g 当たり $10\times 10^3\text{m}^2$ 以上であることにより（実施例1～8）、 $80\text{g}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以上の透湿度を得ることができた。また、シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、組成物 100g 当たり $50\times 10^3\text{m}^2$ 以上であることにより（実施例5～7）、 $90\text{g}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以上の透湿度を得ることができた。シリコーン系粒子を配合しない場合、透湿度は $75\text{g}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ となった（比較例1）。

[0070] [第2の実施例]

第2の実施例では、接着剤組成物の一形態として導電性フィルムを作製し、接続体を作製した。そして、硬化後の導電性フィルムの透湿度、接続体の初期の接着強度、及び信頼性試験後の接着強度、並びに、接続体の初期の導

通抵抗、及び信頼性試験後の導通抵抗を測定した。

[0071] [導電性フィルムの作製、及び透湿度の測定]

表1に示す材料を配合して厚み $35\mu\text{m}$ の導電性フィルムを作製した。また、透湿度の測定のために、導電性フィルムを温度 200°C で硬化させて試料フィルムを作製した。透湿度は、JIS Z 0208の防湿包装材料の透湿度試験方法（カップ法）に準拠し、 40°C 、相対湿度 90% の条件で測定した。具体的には、カップに塩化カルシウム（無水）を封入し、試料フィルムでカバーしたカップを、恒温恒湿状態に静置し、一定時間毎に秤量操作を繰り返し、カップの質量増加を水蒸気の透過量として評価した。

[0072] [接続体の作製]

ベアチップ（ICチップ）は、厚み 0.4mm 、幅 6mm 、長さ 6mm （ $6\text{mm}\times 6\text{mm}$ ）であり、導通測定用配線（バンプサイズ： $50\times 50\mu\text{m}$ 、ピッチ： $85\mu\text{m}$ （バンプ間スペース $35\mu\text{m}$ ）、金バンプ高さ $h=15\mu\text{m}$ ）を形成した測定用TEG（Test Element Group）を用いた。金バンプは、メッキバンプであり、ディンプルのない平滑なものを用いた。

[0073] 導電性フィルムを用いてフレキシブル配線板上にベアチップを実装した。熱圧着条件は、温度 200°C 、圧力 100MPa 、 10sec とした。また、熱圧着時に、緩衝材として厚み $200\mu\text{m}$ のシリコンラバーをベアチップ上に配置した。

[0074] [接着強度の測定]

接続体のフレキシブル配線板を引っ張り速度 $50\text{mm}/\text{sec}$ で 90° 方向に引き剥がし、その引き剥がしに要したピール強度の最大値を接着強度とした。初期の接続体、及び信頼性試験後の接続体について測定した。信頼性試験は、JEDEC（JESD22-A110）に準拠し、温度 110°C 、湿度 85% 、時間 264hr の条件とした。

[0075] [導通抵抗の測定]

ベアチップとフレキシブル配線板との接続状態について、デジタルマルチメータを使用して、接続初期及び信頼性試験後における導通抵抗（ Ω ）を測

定した。導通抵抗値の測定は、ベアチップの bumps に接続されたフレキシブル配線板の配線にデジタルマルチメータを接続し、4端子法にて電流を 1 mA 流して導通抵抗値を測定した。信頼性試験は、JEDEC (JESD22-A110) に準拠し、温度 110℃、湿度 85%、時間 264 hr の条件とした。

[0076]

[表2]

	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	比較例2	比較例3	比較例4
ポリマー	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36
エポキシ硬化剤	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36	36
エポキシ化合物	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
ゴム粒子	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
ゴム成分	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
カップリング剤	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
導電粒子A 平均粒子径5 μm	20	20	—	—	—	—	—	—	—	—	—	20
導電粒子B 平均粒子径3.5 μm	—	—	20	—	20	20	20	20	20	20	20	—
導電粒子C 平均粒子径3 μm	—	—	—	20	—	—	—	—	—	—	—	—
シリコン系粒子A (比表面積7.43[$\times 10^3 \text{m}^2/\text{g}$] 平均粒子径0.8 μm)	3	6	6	6	12	20	30	—	—	—	—	—
シリコン系粒子B (比表面積3.03[$\times 10^3 \text{m}^2/\text{g}$] 平均粒子径2 μm)	—	—	—	—	—	—	—	6	12	—	12	12
シリコン系粒子C (比表面積1.22[$\times 10^3 \text{m}^2/\text{g}$] 平均粒子径5 μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	6	6
合計【質量部】	123	126	126	126	132	140	150	126	132	120	138	138
導電粒子径/シリコン系粒子径	4.4	4.4	6.3	3.8	4.4	4.4	4.4	1.8	1.8	—	0.7	1.0
100g当たりのシリコン系粒子の表面積の合計 [$\times 10^3 \text{m}^2$]	17.8	35.5	35.5	35.5	67.3	105.8	148.0	14.4	27.3	0.0	31.3	31.3
透湿度 [$\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hr}$]	80	85	85	83	90	99	112	80	85	75	85	85
初期接着強度 [N/cm]	10	9	9	9	8	8	7	9	8	11	8	8
信頼性試験後接着強度 [N/cm]	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊	材料破壊
初期抵抗値 MAX [$\text{m}\Omega$]	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	300	300
信頼性試験後抵抗値 MAX [$\text{m}\Omega$]	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	100以下	150	500	500

ポリマー：Y P - 5 0（新日鐵住金化学（株））

エポキシ硬化剤：H P 3 9 4 1（旭化成ケミカルズ（株））

エポキシ化合物：H P 4 0 3 2 D（D I C（株））

ゴム粒子：X E R - 9 1（J S R（株））

ゴム成分：S G 8 0 H（ナガセケムテックス（株））

カップリング剤：A - 1 8 7（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン（合））

導電粒子A：N i / A u メッキアクリル樹脂粒子、平均粒子径 $5 \mu\text{m}$ 、日本化学（株）

導電粒子B：N i / A u メッキアクリル樹脂粒子、平均粒子径 $3.5 \mu\text{m}$ 、日本化学（株）

導電粒子C：N i / A u メッキアクリル樹脂粒子、平均粒子径 $3 \mu\text{m}$ 、日本化学（株）

シリコーン系粒子A：X - 5 2 - 7 0 3 0（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $0.8 \mu\text{m}$ 、真比重 1.01

シリコーン系粒子B：K M P - 6 0 5（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $2 \mu\text{m}$ 、真比重 0.99

シリコーン系粒子C：K M P - 6 0 0（信越シリコーン（株））、平均粒子径 $5 \mu\text{m}$ 、真比重 0.99

[0077] なお、シリコーン系粒子の比表面積は、平均粒子径より算出した粒子1個当たりの表面積と、平均粒子径及び真比重より算出した粒子1個当たりの質量とから求めた。

[0078] 表2に示すように、シリコーン系粒子の平均粒子径が、導電粒子の平均粒子径よりも小さく、シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、組成物100g当たり $10 \times 10^3 \text{m}^2$ 以上であることにより（実施例9～17）、 $80 \text{g/m}^2 \cdot 24 \text{hr}$ 以上の透湿度を得ることができた。また、シリコーン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、100g当たり $50 \times 10^3 \text{m}^2$ 以上であることにより（実施

例 13～15)、 $90 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上の透湿度を得ることができた。シリコン系粒子を配合しない場合、透湿度は $75 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ となった(比較例2)。また、シリコン系粒子の平均粒子径が、導電粒子の平均粒子径以上である場合、抵抗値が高くなった(比較例3、4)。

[0079] 実施例9～17のように導電膜の透湿度を $80 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以上とすることにより、信頼性試験後の抵抗上昇を抑制することができた。これは、導電膜の高い透湿度により、デバイス内部に侵入した水分を即座に排出させることができたためであると考えられる。

符号の説明

[0080] 10 第1の電子部品、11 第1の端子列、20 接着フィルム、21 シリコン系粒子、

請求の範囲

- [請求項1] シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、
前記シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物。
- [請求項2] 前記シリコン系粒子の平均粒子径が、 $5 \mu\text{m}$ 以下である請求項 1 記載の接着剤組成物。
- [請求項3] 前記シリコン系粒子が、球状シリコンゴムパウダーの表面をシリコンレジンで被覆した球状粉末であるシリコン複合パウダーを含む請求項 1 又は 2 記載の接着剤組成物。
- [請求項4] 前記重合性化合物が、エポキシ化合物であり、
前記硬化剤が、エポキシ硬化剤であり、
前記シランカップリング剤が、エポキシ系シランカップリング剤である請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載の接着剤組成物。
- [請求項5] 当該組成物の硬化後の 40°C の温度及び 90 % の相対湿度の条件で測定される透湿度が、 $80 \text{ g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h r}$ 以上である請求項 4 記載の接着剤組成物。
- [請求項6] 導電粒子をさらに含有し、
前記シリコン系粒子の平均粒子径が、前記導電粒子の平均粒子径よりも小さい請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載の接着剤組成物。
- [請求項7] フィルム状である請求項 1 乃至 6 のいずれか 1 項に記載の接着剤組成物。
- [請求項8] シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、
前記シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物 100 g 当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物を介して第 1 の電子部品と第 2 の電子部品とを配置する

配置工程と、

圧着ツールにより前記第2の電子部品を前記第1の電子部品に圧着させるとともに、前記接着剤組成物を硬化させる硬化工程とを有する接続体の製造方法。

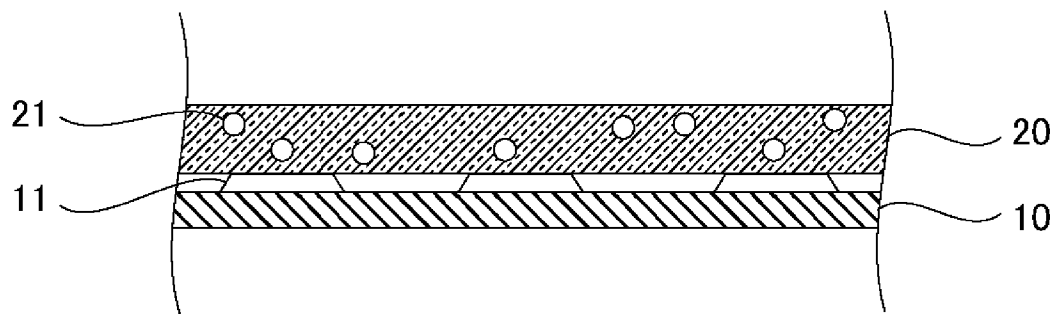
[請求項9] 前記接着剤組成物が、導電粒子をさらに含有する請求項8記載の接続体の製造方法。

[請求項10] 第1の電子部品と、第2の電子部品と、前記第1の電子部品と前記第2の電子部品とが接着された接着膜とを備え、

前記接着膜は、シリコン系粒子と、シランカップリング剤と、重合性化合物と、硬化剤とを含有し、前記シリコン系粒子の平均粒子径から算出される真球粒子の表面積の合計が、当該組成物100g当たり $10 \times 10^3 \text{ m}^2$ 以上である接着剤組成物が硬化してなり、透湿度が $80 \text{ g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h r}$ 以上である接続体。

[請求項11] 前記接着剤組成物が、導電粒子をさらに含有する請求項10記載の接続体。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/011982

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C09J9/02(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J11/08(2006.01)i,
C09J163/00(2006.01)i, C09J7/35(2018.01)i

FI: C09J163/00, C09J11/06, C09J11/08, C09J9/02, C09J7/35

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C09J9/02, C09J11/06, C09J11/08, C09J163/00, C09J7/35

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020

Registered utility model specifications of Japan 1996-2020

Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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 2012-23025 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 02.02.2012 (2012-02-02), claims 1-5, paragraphs [0084]-[0102], examples	1-11
X A	JP 2016-21033 A (NAMICS CORP.) 04.02.2016 (2016- 02-04), claim 1, examples 1-15, paragraphs [0060]- [0071]	1-4 5-11
A	JP 2015-185399 A (DEXERIALS CORP.) 22.10.2015 (2015-10-22), paragraph [0049]	1-11
A	JP 2018-104653 A (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 05.07.2018 (2018-07-05), entire text	1-11
A	JP 2010-180334 A (SHIN ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 19.08.2010 (2010-08-19), entire text	1-11
P, A	JP 2019-77740 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 23.05.2019 (2019-05-23), entire text	1-11

☐ 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
03.06.2020

Date of mailing of the international search report
16.06.2020

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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/011982

JP 2012-23025 A	02.02.2012	KR 10-2011-0136730 A entire text CN 102382581 A TW 201222568 A
JP 2016-21033 A	04.02.2016	(Family: none)
JP 2015-185399 A	22.10.2015	KR 10-2015-0111278 A entire text TW 201537585 A
JP 2018-104653 A	05.07.2018	(Family: none)
JP 2010-180334 A	19.08.2010	(Family: none)
JP 2019-77740 A	23.05.2019	(Family: none)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09J 9/02(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 11/08(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; C09J 7/35(2018.01)i FI: C09J163/00; C09J11/06; C09J11/08; C09J9/02; C09J7/35		
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）） C09J9/02; C09J11/06; C09J11/08; C09J163/00; C09J7/35 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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020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 2012-23025 A（日立化成工業株式会社）02.02.2012（2012-02-02） 請求項1-5, 段落0084-0102, 実施例	1-11
X	JP 2016-21033 A（ナミックス株式会社）04.02.2016（2016-02-04） 請求項1, 実施例1-15, 段落0060-0071	1-4
A		5-11
A	JP 2015-185399 A（デクセリアルズ株式会社）22.10.2015（2015-10-22） 段落0049	1-11
A	JP 2018-104653 A（日立化成株式会社）05.07.2018（2018-07-05） 全文	1-11
A	JP 2010-180334 A（信越化学工業株式会社）19.08.2010（2010-08-19） 全文	1-11
P, A	JP 2019-77740 A（日本化薬株式会社）23.05.2019（2019-05-23） 全文	1-11
☐ 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抵触するものではなく、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 03.06.2020		国際調査報告の発送日 16.06.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 山本 悦司 4Z 1200 電話番号 03-3581-1101 内線 3480

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/011982

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2012-23025	A	02.02.2012	KR 10-2011-0136730 全文 CN 102382581 TW 201222568	A A A
JP	2016-21033	A	04.02.2016	(ファミリーなし)	
JP	2015-185399	A	22.10.2015	KR 10-2015-0111278 全文 TW 201537585	A A
JP	2018-104653	A	05.07.2018	(ファミリーなし)	
JP	2010-180334	A	19.08.2010	(ファミリーなし)	
JP	2019-77740	A	23.05.2019	(ファミリーなし)	