

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2008 年 11 月 6 日 (06.11.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/133293 A1

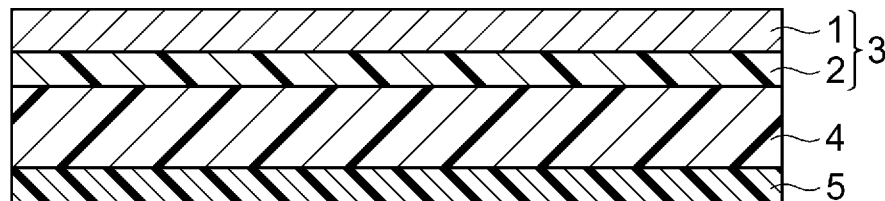
- (51) 国際特許分類:
C09J 7/02 (2006.01) C09J 175/04 (2006.01)
C09J 163/00 (2006.01) C09J 179/08 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/057909
- (22) 国際出願日: 2008 年 4 月 24 日 (24.04.2008)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2007-115470 2007 年 4 月 25 日 (25.04.2007) JP
特願2007-247785 2007 年 9 月 25 日 (25.09.2007) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1630449 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松浦 佳嗣 (MAT-SUURA, Yoshitsugu) [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小川 1 5 0 0 番地日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 小畑 和仁 (OBATA, Kazuhito) [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小川 1 5 0 0 番地日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 竹内 雅記 (TAKEUCHI, Masaki)
- [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小川 1 5 0 0 番地日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA, Yoshiki et al.); 〒1040061 東京都中央区銀座一丁目 1 0 番 6 号銀座ファーストビル 創英国際特許法律事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) Title: ADHESIVE SHEET

(54) 発明の名称: 接着シート

[図1]

10



(57) Abstract: Disclosed is an adhesive sheet comprising a base (3) and an adhesive resin layer (4) formed on one surface of the base (3). The adhesive resin layer (4) has a glass transition temperature of 170-200°C and an elastic modulus after curing of 100-500 MPa.

(57) 要約: 基材 3 と、該基材 3 の一方の面上に形成された接着樹脂層 4 と、を備え、上記接着樹脂層 4 は、ガラス転移温度が 170~200°C であり、且つ、硬化後の弾性率が 100~500 MPa である層である、接着シート。

明 細 書

接着シート

技術分野

[0001] 本発明は、接着シートに関する。

背景技術

[0002] 近年の電子機器の小型化、高密度化、軽量化に伴い、それらに用いられるフレキシブルプリント配線板やリジッド配線板は、携帯電話のモジュールボードなどを中心に採用が増大している。

[0003] フレキシブルプリント配線板としては、一般に、ポリイミド前駆体を銅箔に直接塗布して高温下で縮合させた2層CCLタイプ(例えば、特許文献1参照)、ポリイミド系接着剤やその他の接着剤を介して銅箔とポリイミドフィルムとを貼り合わせた3層CCLタイプ、ポリイミド樹脂フィルム上にスパッタやめっきにより銅層を析出させたメタライジングタイプが知られている。

[0004] ここで、2層CCLタイプは、耐熱性には優れるものの高温長時間での加熱工程が必要となるため、一般には高価格である。

[0005] 3層CCLタイプは、ポリイミド系接着剤を用いると貼り合わせ時に高温高压長時間の接着工程が必要となるため生産性が悪く、その他の接着剤を用いた場合は一般に2層CCLタイプより安価であるが、耐熱性が低下する。

[0006] メタライジングタイプは、銅層の形成にコストがかかり銅箔の厚膜化が難しい。また、銅と絶縁層との間の密着力が小さく、密着力信頼性も劣るなどの欠点がある。しかし、ベースとなるポリイミドフィルム上に薄い導体層を形成するため耐熱性に優れ、高精度化にも有効であるという利点がある。

[0007] これら各フレキシブルプリント配線板は、それぞれが持つ特徴に応じて用途別に使い分けられるが、一般的には各種モジュールの接続部分のみに使用されている。

[0008] 一方、広く一般に用いられている、ガラス布にエポキシ樹脂を含浸させたリジッド配線板は、材料が安価で、比較的低温での接着が可能であり、多層化にも対応可能であるが、多層硬化後にリジッド配線板単独で曲げ加工を施すことは困難である。また

、このリジッド配線板からなる多層配線板の形成に用いられる、Bステージ状態にしたプリプレグ、樹脂付き銅箔、及び、接着フィルムは、常温雰囲気下で保管すると樹脂のフロー量が低下し、成形性及び接着性が低下するという問題がある。そのため、これらの材料は、成形性及び接着性を維持するために冷蔵保管が必要になるなど保管上の問題がある。

[0009] また、フレキシブル配線板とリジッド配線板とを用いた多層配線板の形態として、フレキシブルリジッド配線板がある。これは、多層部分に上述のガラス布にエポキシ樹脂等を含浸させた硬質なリジッド基板を用い、接続部分に上述のフレキシブル配線板を用いることで、多層化及び曲げ加工の双方を可能にした基板である。

[0010] 特許文献1:特開平03-104185号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0011] しかし、上述したフレキシブルリジッド配線板は、多層部分に通常のリジッド配線板を用いるため、高密度化には有効であるものの、基板全体の薄型化に対応する上では製法としての限界がある。また、フレキシブル配線板部分とリジッド配線板部分とを接着する工程が複雑であるため、生産効率やコストにも問題がある。

[0012] そのため、薄型化が可能なフレキシブル配線板を、リジッド配線板と組み合わせずに多層化することが求められている。しかしながら、フレキシブル配線板同士を接着して多層化する際には、一般にはTgが100～160℃の接着剤が用いられるため、フレキシブル配線板の高耐熱性が十分に生かせない。また、Tgが160℃以上の接着剤を用いると、フレキシブル配線板と接着剤との密着力が不十分であったり、積層温度が高温になるなどの問題がある。

[0013] こうした問題を改善するため、曲げ加工性、耐熱性及び接着性に優れるとともに、回路埋め込み性にも優れた接着シートが要求されている。

[0014] 本発明は、上記従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、フレキシブル配線板を多層化してなる多層配線板の製造に使用され、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性に優れた接着シートを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

- [0015] 上記目的を達成するために、本発明は、基材と、該基材の一方の面上に形成された接着樹脂層と、を備え、上記接着樹脂層は、ガラス転移温度が170～200℃であり、且つ、硬化後の弾性率が100～500MPaである層である、接着シートを提供する。
- [0016] かかる接着シート及び接着樹脂付き金属箔によれば、ガラス転移温度及び硬化後の弾性率が上記特定の範囲内である接着樹脂層を備える構成を有することにより、フレキシブル配線板を多層化してなる多層配線板の製造に好適に使用することができ、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性の全てを高水準で達成することができる。更に、本発明の接着シートを用いることにより、多層配線板の薄型化が可能であるとともに、優れた成型性を得ることができる。
- [0017] また、本発明の接着シートは、上記接着樹脂層中にエポキシ樹脂を含み、且つ、該エポキシ樹脂の含有量が上記接着樹脂層の固形分全量を基準として15～40質量％であることが好ましい。接着樹脂層がエポキシ樹脂を上記特定の割合で含有することにより、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性をより向上させることができるとともに、多層化の際に接着樹脂層を構成する樹脂の流れ出しを十分に抑制して、得られる多層配線板の厚さを容易に調節することが可能となる。
- [0018] また、本発明の接着シートは、上記接着樹脂層中に、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリウレタン樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の樹脂を含有することが好ましい。特に、本発明の接着シートは、上記接着樹脂層中にシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を含み、且つ、該シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂のシロキサン変性率が25～45質量％であることが好ましい。接着樹脂層が上記特定の樹脂、特に上記特定のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を含有することにより、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性をより向上させることができる。
- [0019] また、本発明の接着シートにおいて、上記基材は、金属層を含むものであることが好ましい。ここで、上記金属層は、厚さ0.5～25 μ mの銅層であることが好ましい。かかる金属層を有する基材を用いた場合、該金属層を配線材料として利用することができるため、接着シートは、多層配線板の製造により好適に使用することが可能となる。

[0020] また、本発明の接着シートにおいて、上記基材は、厚さ5～200 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルムであることも好ましい。基材としてポリエチレンテレフタレートフィルムを用いた場合には、フレキシブル配線板に接着シートを仮固定した後に、回路加工を施したフレキシブル配線板を接着することができるため、多層板の構成設計の自由度が増し、多層配線板の製造により好適に使用することができる。なお、ポリエチレンテレフタレートフィルムを基材とする接着シートを用いて多層配線板を形成する場合、上記基材を剥離して接着樹脂層により配線板同士の接着を行う。

[0021] また、本発明の接着シートにおいて、上記接着樹脂層の厚さは、100 μ m以下であることが好ましい。これにより、多層化時の樹脂染み出し量を必要最低限に抑えることができ、また、多層配線板の薄型化にも寄与する。

[0022] また、本発明の接着シートは、上記基材及び上記接着樹脂層の合計の厚さが100 μ m以下であることが好ましい。これにより、良好な曲げ加工性が得られるとともに、多層配線板の薄型化にも寄与する。

発明の効果

[0023] 本発明によれば、フレキシブル配線板を多層化してなる多層配線板の製造に使用され、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性に優れた接着シートを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]本発明の接着シートの好適な一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]本発明の接着シートの他の好適な一実施形態を示す模式断面図である。

[図3]本発明の接着シートを用いた多層配線板(4層板)の好適な一実施形態を示す模式断面図である。

符号の説明

[0025] 1…導電体層、2…樹脂層、3…基材、4…接着樹脂層、5…セパレータ、6…配線部材、7…フレキシブルプリント配線板、8…硬化層、10, 20…接着シート、100…多層配線板。

発明を実施するための最良の形態

[0026] 以下、場合により図面を参照しつつ、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。なお、図面中、同一又は相当部分には同一符号を付し、重複する説明は省略する。

[0027] 本発明の接着シートは、基材と、該基材の一方の面上に形成された接着樹脂層と、を備え、上記接着樹脂層のガラス転移温度(T_g)が $170\sim 200^{\circ}\text{C}$ であり、且つ、上記接着樹脂層の硬化後の弾性率が $100\sim 500\text{MPa}$ であるものである。

[0028] ここで、図1は、本発明の接着シートの好適な一実施形態を示す模式断面図である。図1に示す接着シート10は、導電体層1及び樹脂層2からなる基材3と、該基材3の一方の面上に形成された接着樹脂層4と、該接着樹脂層4の基材3とは反対側の面上に形成されたセパレータ5と、を備えている。

[0029] また、図2は、本発明の接着シートの他の好適な一実施形態を示す模式断面図である。図2に示す接着シート20は、プラスチックフィルムからなる基材3と、該基材3の一方の面上に形成された接着樹脂層4と、該接着樹脂層4の基材3とは反対側の面上に形成されたセパレータ5と、を備えている。

[0030] そして、図1及び図2に示した接着シート10及び20において、接着樹脂層4は、ガラス転移温度が $170\sim 200^{\circ}\text{C}$ であり、且つ、硬化後の弾性率が $100\sim 500\text{MPa}$ である層となっている。以下、接着シート10及び20を構成する各層について詳細に説明する。

[0031] 接着樹脂層4は、上述したガラス転移温度及び硬化後の弾性率の条件を満たすものであれば特に制限されないが、エポキシ樹脂を含有することが好ましく、更にエポキシ樹脂以外の他の樹脂成分を含有することが好ましい。

[0032] エポキシ樹脂以外の他の樹脂成分としては、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリウレタン樹脂が好ましく、ポリアミドイミド樹脂がより好ましく、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂であることが特に好ましい。

[0033] ここで、接着樹脂層4に用いられるシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂は、カルボキシル基、アミノ基、酸無水物基、及び、メルカプト基からなる群より選択される少なくとも一種の官能基を末端に有するものであることが好ましい。これらの官能基を有することにより、接着樹脂層4の耐熱性をより向上させることができる。また、シロキサン変性

ポリアミドイミド樹脂のシロキサン変性率は、25～45質量%であることが好ましく、35～45質量%であることがより好ましい。このシロキサン変性率が25質量%未満では、接着樹脂層4形成時の乾燥工程での溶媒の揮発が不十分となり、接着樹脂層4表面の粘着性が増大する傾向がある。また、シロキサン変性率が45質量%を超えると接着樹脂層4形成時の乾燥工程での溶媒の揮発量にばらつきが生じ、安定した特性が得られ難くなる傾向がある。

[0034] また、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂のガラス転移温度は、200～300℃であることが好ましく、210～230℃であることがより好ましい。上記範囲内のガラス転移温度を有するシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を用いることにより、耐熱性の向上に寄与するとともに、接着樹脂層4のガラス転移温度を170～200℃の範囲内に調節することが容易に可能となり、接着性の向上及び加圧接着時の樹脂の流れ出しの抑制に寄与する。

[0035] 接着樹脂層4において、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂の含有量は、接着樹脂層4の固形分全量を基準として35～85質量%であることが好ましく、45～70質量%であることがより好ましい。この含有量が35質量%未満では、接着樹脂層4が硬くなり曲げ加工性が劣る傾向があり、85質量%を超えると、接着樹脂層4が柔らかくなりすぎて、成形時に所定の厚みを有することが困難となる傾向がある。

[0036] 接着樹脂層4に用いられるエポキシ樹脂としては、2個以上のエポキシ基を有する多官能エポキシ化合物が好ましい。多官能エポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA、ノボラック型フェノール樹脂、オルトクレゾールノボラック型フェノール樹脂等の多価フェノール又は1,4-ブタンジオール等の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、フタル酸及びヘキサヒドロフタル酸等の多塩基酸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ステル、アミン、アミド又は複素環式窒素塩基を有する化合物のN-グリシジル誘導体、並びに、脂環型及びビフェニル型エポキシ樹脂等が挙げられる。これらの中でも、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂等の脂環型エポキシ樹脂が特に好ましい。これらのエポキシ樹脂は、1種類を単独で又は2種類以上を組み合わせて用いられる。

[0037] 接着樹脂層4において、エポキシ樹脂の含有量は、接着樹脂層4の固形分全量を

基準として15～40質量%であることが好ましく、25～40質量%であることがより好ましい。この含有量が15質量%未満では、接着樹脂層4の硬化物の弾性率が低下して100MPa未満になる恐れがあり、プレスによる加圧接着時に樹脂が流れ出して所定の板厚が得られ難くなる傾向がある。また、含有量が40質量%を超えると、接着樹脂層4の硬化物の弾性率が上昇して500MPa以上となる恐れがあり、耐熱性は向上するものの硬化状態での樹脂が硬くなり過ぎ、曲げ加工時にクラックが生じやすくなる傾向がある。

[0038] また、接着樹脂層4の構成材料としてエポキシ樹脂を用いる場合、エポキシ樹脂の硬化剤、硬化促進剤等を更に用いてもよい。かかる硬化剤及び硬化促進剤としては、エポキシ樹脂と反応するものや、硬化を促進させるものであれば特に制限されない。

[0039] 硬化剤としては、例えば、アミン類、イミダゾール類、多官能フェノール類、及び、酸無水物類等を使用することができる。ここで、アミン類としては、例えば、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、グアニル尿素等が挙げられる。多官能フェノール類としては、例えば、ヒドロキノン、レゾルシノール、ビスフェノールA、及びこれらのハロゲン化合物、さらにホルムアルデヒドとの縮合物であるノボラック型フェノール樹脂、レゾール型フェノール樹脂等が挙げられる。酸無水物類としては、例えば、無水フタル酸ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、及び、メチルハイミック酸等が挙げられる。

[0040] また、硬化促進剤としては、例えば、アルキル基イミダゾール、ベンゾイミダゾール等のイミダゾール類等を使用することができる。

[0041] 接着樹脂層4のガラス転移温度は、170～200℃であることが必要であり、180～200℃であることがより好ましい。このガラス転移温度が170℃未満であると、プレスによる加圧接着時に樹脂の流れ出しが生じ、配線板として所定の板厚が得られない。また、ガラス転移温度が200℃を超えると、ラミネートやプレスでの積層時にボイドが発生しやすく、接着性が不十分となる。接着樹脂層4のガラス転移温度は、例えば、シロキサン変性ポリアミドイミドのシロキサン変性率や、エポキシ樹脂の配合量等により調整することができる。

[0042] 接着樹脂層4の硬化後の弾性率は、100～500MPaであることが必要であり、300

～500MPaであることがより好ましい。ここで、硬化後の弾性率とは、接着樹脂層4に含有される硬化性樹脂を完全に硬化させた後の弾性率である。硬化の条件は使用する樹脂や硬化剤の種類等により異なるが、エポキシ樹脂とその硬化剤を用いた場合には、例えば240℃で1時間の熱処理により完全に硬化させることができる。この硬化後の弾性率が100MPa未満であると、配線板としての強度が不足し、多層配線板の形成が困難となる。また、硬化後の弾性率が500MPaを超えると、配線板としては硬くなり、曲率の小さい曲げ加工時にクラックが生じる。接着樹脂層4の硬化後の弾性率は、例えば、シロキサン変性ポリアミドイミドと、エポキシ樹脂等の熱硬化性成分との配合比率等により調整することができる。

[0043] 接着樹脂層4は、例えば、上述したようなシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂、エポキシ樹脂及びその他の成分を溶剤中に溶解又は分散させて接着剤ワニスの状態とし、この接着剤ワニスを基材3上に塗布することにより形成することができる。この時に用いる溶剤としては、例えば、N-メチル-2-ピロリドン(NMP)、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)、N,N-ジメチルホルムアミド(DMAC)、ジメチルスルホキシド(DMSO)、硫酸ジメチル、スルホラン、クレゾール、フェノール、ハロゲン化フェノール、シクロヘキサン、及びジオキサン等が挙げられる。これらの中でも、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂の合成に用いた溶媒を、接着剤ワニスの溶媒としても用いることが好ましい。

[0044] 接着樹脂層4の塗工時の硬化率は、10～80%の範囲であることが好ましい。この硬化率が10%未満の場合、配線板積層時の熱により樹脂のフロー量が増大し、厚さ制御が困難になる傾向がある。また、硬化率が80%を超える場合には、積層時にフロー量が不足し、回路加工した配線板と接着樹脂層4との間の密着力が著しく低下するとともに、積層時に接着樹脂層4の折れや割れが発生して作業性が低下する傾向がある。

[0045] 接着樹脂層4の厚さは、100 μ m以下であることが好ましく、10～100 μ mであることがより好ましい。

[0046] 基材3としては特に制限されず、各種のプラスチックフィルム、ポリイミドフィルム、金属、有機物、それらの複合物等、目的に応じて適宜選択して使用することができる。

なお、図1に示した接着シート10においては、基材3は導電体層1と樹脂層2とで構成されており、図2に示した接着シート20においては、基材3はプラスチックフィルムで構成されている。

[0047] これらの中でも、基材3としては、図1に示したような導電体層1と樹脂層2とを備えるものが好ましい。導電体層1と樹脂層2とを備える基材3として具体的には、導電体層にポリイミド樹脂をダイレクトコートして硬化させた、日立化成工業株式会社製の耐熱接着フィルムMCF-5000I(商品名)等が挙げられる。このような基材を用いることにより、柔軟で、耐熱性、加工性及び電気特性に優れた多層用配線板材料を得ることができる。

[0048] ここで、導電体層1としては、導電性を有する層であれば特に限定されず、金属、有機物、及びそれらの複合物等、目的に応じて適宜選択されるが、金属からなる層であることが好ましい。また、一般的には銅が配線板材料として使用されており、本発明においても銅からなる層を導電体層1とすることがより好ましい。このとき、導電体層1の厚さは、 $3\sim 75\mu\text{m}$ の範囲内で目的に応じて広く選択することができる。また、 $8\mu\text{m}$ 以上の厚さの導電体層1については、電解銅箔、圧延銅箔を用いることができる。

[0049] また、樹脂層2としては、特に制限されないが、上記MCF-5000Iに用いられるようなポリイミド層であることが好ましい。このポリイミド層の厚さとしては、 $0.5\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。この厚さが $0.5\mu\text{m}$ 未満では、導電体層1をエッチング除去した後の耐熱性が低下する可能性がある。

[0050] また、基材3が図2に示したようなプラスチックフィルムからなるものである場合、プラスチックフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム、ポリエチレンフィルム、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリプロピレンフィルム等が挙げられる。これらの中でも、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムが好ましい。

[0051] また、接着樹脂層4を形成する基材3の表面には、接着樹脂層4の濡れ性、特に、接着剤ワニスを経基材3上に塗布して接着樹脂層4を形成する場合の接着剤ワニスの濡れ性を向上させ、はじきやむら等の外観悪化を防止したり、密着力を向上又は安定化させるために、必要に応じて各種の表面処理を施すことができる。表面処理の方法としては、例えば、UV照射、コロナ放電処理、バフ研磨、サンドブラスト、各種ド

ライエッチング、各種ウェットエッチング等の処理方法が挙げられる。中でも、連続処理のしやすさ、処理効果の安定性、及び、効果の大きさから、酸素プラズマ処理によるドライエッチング法を用いることが好ましい。

[0052] セパレータ5は、接着樹脂層4を保護するためのものであり、必要に応じて接着樹脂層4の基材3とは反対側の面上に形成される。セパレータ5としては特に制限されないが、例えば、上述したようなポリエチレンテレフタレートフィルム等のプラスチックフィルムが用いられる。

[0053] また、接着シート10及び20において、基材3及び接着樹脂層4の合計の厚さは、100 μ m以下であることが好ましく、10～60 μ mであることがより好ましい。

[0054] 以上、本発明の接着シートの好適な実施形態について、図1及び図2を用いて詳細に説明したが、本発明の接着シートは上記実施形態に限定されるものではない。例えば、図1及び図2に示す接着シート10及び20において、セパレータ5が設けられていなくてもよい。また、基材3は、図1及び図2に示したもの以外の構成を有していてもよい。更に、接着シートは、上述した基材3、接着樹脂層4及びセパレータ5以外の他の層を有していてもよい。また、接着シートは、シート状に限定されることもなく、ロール状に巻かれていて、連続的な機械加工、貼り付けに供することもできる。

[0055] 上述した本発明の接着シートを用いて配線板を積層する場合、その積層方法は特に制限されず、例えば、プレス積層法、熱ロールによる連続積層法などを用いることができる。中でも、接着樹脂層4を被着体の片面又は両面に効率よく、特性のばらつきを抑えつつ、均一に貼り付け、多層配線板とするためには、真空中での熱プレスにより積層することが好ましい。

[0056] このとき、図1に示した接着シート10を用いる場合には、セパレータ5は剥離するが、基材3は剥離することなくそのまま配線材料として用いることもでき、また必要に応じて金属層1を回路加工することもできる。一方、図2に示した接着シート20の場合、セパレータ5及び基材3の双方とも剥離する必要がある。

[0057] 熱ロールによる連続積層法を用いる場合、接着樹脂層4の硬化方法としては、熱硬化、紫外線硬化、電子線硬化等の方法を用いることができる。これらの硬化方法は、接着樹脂層4の硬化反応に十分なエネルギー量を与えられる方法であれば特に制

限されないが、熱硬化による連続硬化法が好ましく、熱ロールによる連続ラミネートを行い、連続熱硬化炉に横搬送して、硬化後に巻き取り作業を行う方法が、硬化後の接着樹脂層4の硬化収縮によるシワや折れ等の発生を抑制する観点から好ましい。なお、場合によっては上記の硬化、巻き取り後に、品質安定化のために所定時間の後加熱処理を施すことも可能である。

[0058] ここで、図3は、図1に示した接着シート10を用いて形成した多層配線板(4層板)の好適な一実施形態を示す模式断面図である。図3に示すように、多層配線板100は、樹脂層2とその両面に形成された導電性の配線部材6とを備えるフレキシブルプリント配線板7の両面に、導電体層1及び樹脂層2からなる基材3が、接着樹脂層4を硬化させてなる硬化層8を介して接着された構造を有している。かかる多層配線板100においては、基材3における導電体層1が配線部材として用いられ、4層の配線パターンが形成可能となっている。また、配線部材6の構成材料としては、導電体層1と同様のものが用いられる。

[0059] かかる多層配線板100は、上述した本発明の接着シートを用いて形成されることにより、耐熱性、寸法安定性、接着信頼性、加工性、曲げ特性及び取り扱い性に優れたものとなる。

実施例

[0060] 以下、実施例及び比較例に基づいて本発明をより具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0061] (実施例1)

(1)接着樹脂層形成用ワニスの調製

Tg200℃、シロキサン変性率35質量%に調整したシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)70質量部、ビフェニル型エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン株式会社製、商品名:YX4000)21質量部、硬化剤(大日本インキ化学工業株式会社製、商品名:KA-1165)9質量部、及び、硬化促進剤(四国化成工業株式会社製、商品名:2-エチル-4-メチルイミダゾール)0.35質量部を配合し、接着樹脂層形成用ワニスを調製した。

[0062] (2)接着樹脂層の形成

(1)で調製した接着樹脂層形成用ワニスを、ポリイミド層及びその一方の面上に形成された銅箔層からなる基材(MCF-5000I(商品名)の片面板、日立化成工業株式会社製、銅箔層の厚さ:35 μ m、ポリイミド層の厚さ:25 μ m)のポリイミド層上に塗工機により塗工し、150°Cの乾燥炉で、ライン速度0.5m/minにて乾燥させた。これにより、乾燥後の厚さが50 μ mの接着樹脂層を備える接着シートを得た。得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは185°Cであり、接着樹脂層を240°Cで1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、300MPaであった。

[0063] (3)銅張り積層板の作製

ポリイミド層の両面に回路加工を施した銅箔層を形成した基材(MCF-5000I(商品名)の両面板、日立化成工業株式会社製、銅箔層の厚さ:35 μ m、ポリイミド層の厚さ:30 μ m)の両面に、(2)で作製した接着シートを、100t真空プレス機を用いて240°C、4MPaの条件で40分間加熱加圧して接着し、図3に示す構造を有する多層配線板(4層板)を得た。

[0064] (実施例2)

実施例1で調製した接着樹脂層形成用ワニスを塗布するMCF-5000Iの片面板の厚さ構成を、銅箔層の厚さ:9 μ m、ポリイミド層の厚さ:6 μ mに変更し、それ以外は実施例1と同様にして、接着シートを作製した。作製した接着シートを、ポリイミド層の両面に回路加工を施した銅箔層を形成した基材(MCF-5000I(商品名)の両面板、日立化成工業株式会社製、銅箔層の厚さ:9 μ m、ポリイミド層の厚さ:9 μ m)の両面に、100t真空プレス機を用いて240°C、4MPaの条件で40分間加熱加圧して接着し、図3に示す構造を有する多層配線板(4層板)を得た。

[0065] (実施例3)

実施例1と同様にして、接着樹脂層形成用ワニスを作製した。この接着樹脂層形成用ワニスを、基材としてのシリコーン離型処理したPETフィルム(帝人株式会社製、商品名:ピューレックスA31-75、厚さ:125 μ m)上に塗工機により塗工し、150°Cの乾燥炉で、ライン速度0.5m/minにて乾燥させた。これにより、乾燥後の厚さが50 μ mの接着樹脂層を備える接着シートを得た。

[0066] 得られた接着シートから基材(ピューレックスA31-75)を剥離し、接着樹脂層を、

ポリイミド層の両面に回路加工を施した銅箔層を形成した基材(MCF-5000I(商品名)の両面板、日立化成工業株式会社製、銅箔層の厚さ: $9\mu\text{m}$ 、ポリイミド層の厚さ: $9\mu\text{m}$)の両面に配置し、更にその両側に古河サーキットフoil社製の電解銅箔(商品名:F2WS $9\mu\text{m}$)を配置し、100t真空プレス機を用いて 240°C 、4MPaの条件で40分間加熱加圧して接着し、多層配線板(4層板)を得た。

[0067] (実施例4)

Tg 200°C 、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂に代えて、Tg 200°C 、シロキサン変性率23質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)を用いたこと以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは 185°C であり、接着樹脂層を 240°C で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、300MPaであった。

[0068] (実施例5)

Tg 200°C 、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂に代えて、Tg 200°C 、シロキサン変性率47質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)を用いたこと以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは 185°C であり、接着樹脂層を 240°C で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、300MPaであった。

[0069] (比較例1)

Tg 200°C 、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂に代えて、Tg 180°C 、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)を用いたこと以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは 160°C であり、接着樹脂層を 240°C で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、275MPaであった。

[0070] (比較例2)

Tg 200°C 、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂に代

えて、Tg225℃、シロキサン変性率35質量%のシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)を用いたこと以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは210℃であり、接着樹脂層を240℃で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、340MPaであった。

[0071] (比較例3)

Tg185℃、シロキサン変性率35質量%に調整したシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)85質量部、ビフェニル型エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン株式会社製、商品名:YX4000)11質量部、硬化剤(大日本インキ化学工業株式会社製、商品名:KA-1165)4質量部、硬化促進剤(四国化成工業株式会社製、商品名:2-エチルー4-メチルイミダゾール)0.35質量部を配合し、接着樹脂層形成用ワニス調製した。この接着樹脂層形成用ワニスを用いた以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは180℃であり、接着樹脂層を240℃で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、50MPaであった。

[0072] (比較例4)

Tg185℃、シロキサン変性率35質量%に調整したシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂(日立化成工業株式会社製、商品名:KT10-TMA)35質量部、ビフェニル型エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン株式会社製、商品名:YX4000)45質量部、硬化剤(大日本インキ化学工業株式会社製、商品名:KA-1165)20質量部、硬化促進剤(四国化成工業株式会社製、商品名:2-エチルー4-メチルイミダゾール)0.35質量部を配合し、接着樹脂層形成用ワニス調製した。この接着樹脂層形成用ワニスを用いた以外は実施例1と同様にして、接着シート及び多層配線板(4層板)を作製した。なお、得られた接着シートにおいて、接着樹脂層のTgは170℃であり、接着樹脂層を240℃で1時間熱処理して硬化させた硬化層の弾性率は、650MPaであった。

[0073] (基材の外観の評価)

実施例及び比較例で得られた4層板の外層銅箔をエッチングして、基板の外観を目視にて観察した。内層回路が良好に埋め込まれているものをOKと判断し、内層にボイドが発生していたり、樹脂が流れすぎて回路の凹凸が著しいものはNGとした。その結果を表1、2に示す。

[0074] (銅箔接着性の測定)

実施例及び比較例で得られた4層板の片面からサンドペーパーを用いて基板を研磨し、第二層目の内層銅箔を露出させたのちに銅箔を部分的にエッチングして、1mm幅の銅箔ラインを形成した。次に、銅箔ラインを、接着面に対して90° 方向に50mm/分の速度で引き剥がして、その際の荷重を測定し、最大荷重を引き剥がし強さ(銅箔接着性)とした。その結果を表1、2に示す。

[0075] (半田耐熱性の評価)

実施例及び比較例で得られた4層板を50mm四方の正方形に切り出して試験片を得た。その試験片を、288℃の半田浴中に浸漬して、その時点から試験片の膨れが目視で認められる時点までに経過した時間を測定した。その結果を表1、2に示す。なお、表中「5分以上」とは、5分以上経過しても、膨れが認められなかったことを意味する。

[0076] (粘着性の評価)

実施例及び比較例で得られた接着シートの接着樹脂層について、プローブタック試験法により粘着性の評価を行った。具体的には、40℃に加熱したステージ上に置いた接着シートの接着樹脂層に、40℃の加熱プローブを押し付けた後、引き剥がしたときの最大荷重を測定し、5点測定した平均値を粘着性として求めた。このとき、プローブ径を5mm、プローブ速度を30mm/分、プローブを押し付ける荷重を100gf、プローブ接触時間を2秒とした。また、測定装置は、JISZ0237-1991に準じたプローブタックテスト(株式会社レスカ製のタックテスト)を用いた。その結果を表1、2に示す。なお、実施例5では測定値のばらつきが大きく、5点の粘着性測定値の最小値が5g、最大値が24gであった。

[0077] (樹脂染み出し量の評価)

実施例及び比較例において4層板を作製する際に、プレス後の基材4辺の中央部

分の樹脂染み出し量を測定目盛0.5mmの金尺を用いて測定し、4点の平均値を染み出し量とした。その結果を表1、2に示す。なお、実施例5では測定値のばらつきが大きく、4点の染み出し量測定値の最小値が3mm、最大値が7mmであった。

[0078] (曲げ加工性の評価)

実施例及び比較例で得られた4層板の両面の銅箔を全面エッチングした配線板から、幅10mm×長さ100mmのサイズの試験片を切り出した。この試験片を、直径(R)がそれぞれ0.10mm、0.25mm又は0.50mmのピンを挟んで台上に置いた。そして、ピンが挟まれている部分の試験片上でローラーを往復させることによって、試験片を局所的に折り曲げたときの硬化後の接着樹脂層におけるクラックの発生の有無を観察した。評価は下記の基準で行った。クラック(白化)の発生が少ないほど、曲げ加工性(可とう性)が高いことを意味する。その結果を表1、2に示す。

A:異常なし、

B:一部クラックにより白化、

C:全面クラックにより白化。

[0079] (回路埋め込み性の評価)

実施例及び比較例で得られた4層板を切断し、エポキシ樹脂で注型した後に切断面を耐水ペーパーにて研磨して試験片を作製した。切断面の内層銅箔近傍の接着樹脂の充填状態を光学顕微鏡にて観察した。内層銅箔の周囲に完全に接着樹脂が充填されている状態を良好と判断し、銅箔周囲に僅かでもボイドが確認される場合には不良と判断した。その結果を表1、2に示す。

[0080] (寸法変化率の測定)

実施例及び比較例で得られた4層板を250mm角に切断し、4隅から中心方向に向って10mmの位置に0.5mmのドリル穴を空けた。ドリル穴を評点とし、評点間の距離を銅箔の目方向(MD)、目方向に対して90度交差する方向(TD)とし、最小目盛り1 μ mの三次元寸法測定機を用い測定した。その後、試験片の両側の銅箔をエッチングにより除去し、24時間風乾した後に再度評点間距離を三次元寸法測定機で測定し、寸法変化率(%)を下記式;

寸法変化率(%) = {(銅箔除去後の評点間距離 - 銅箔除去前の評点間距離) / 銅

箔除去前の評点間距離) $\} \times 100$

にて求めた。その結果を表1、2に示す。なお、比較例3では樹脂の流れ出しが大きく、表面にうねり、凹凸があり、測定機に平滑に試験片を取り付けられないため、測定不能であった。

[0081] [表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
4層板の厚さ(μm)		250	104	135	250	250
シロキサン変性率(質量%)		35	35	35	23	47
エポキシ樹脂配合量 (質量部)		21	21	21	21	21
接着樹脂層の $T_g(^{\circ}\text{C})$		185	185	185	185	185
接着樹脂層の硬化後の 弾性率(MPa)		300	300	300	300	300
基材の外観		良好	良好	良好	良好	良好
銅箔接着性(kN/m)		0.70	0.70	0.70	0.70	0.60
半田耐熱性		5分以上	5分以上	5分以上	5分以上	3分
接着樹脂層の 粘着性(g)	平均値	5	5	5	40	14
	バラツキ	2.5~7.5	2.5~7.5	2.5~7.5	30~50	4~24
プレス時の樹脂 染み出し量(mm)	平均値	5	5	5	8	6
	バラツキ	4.5~5	4.5~5	4.5~5	7~9	3~7
ビンゲージ 曲げ	R=0.1mm	A	A	A	A	A
	R=0.25mm	A	A	A	A	A
	R=0.5mm	A	A	A	A	A
回路埋め込み性		良好	良好	良好	良好	良好
寸法安定性 (%)	MD	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
	TD	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01

[0082] [表2]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
4層板の厚さ(μm)		250	250	200	250
シロキサン変性率(質量%)		35	35	35	35
エポキシ樹脂配合量 (質量部)		21	21	11	45
接着樹脂層の $T_g(^{\circ}\text{C})$		160	210	180	170
接着樹脂層の硬化後の 弾性率(MPa)		275	340	50	650
基材の外観		良好	良好	不良	良好
銅箔接着性(kN/m)		0.30	0.60	0.60	0.60
半田耐熱性		30 秒	5 分以上	3 分	5 分以上
接着樹脂層の 粘着性(g)	平均値	12	2	7	3
	パラツキ	10~14	1~3	3~10	2~4
プレス時の樹脂 染み出し量(mm)	平均値	5	1.5	15	4
	パラツキ	4.5~5	0.5~1.5	13~17	4~4.5
ピンゲージ曲げ	R=0.1mm	A	A	A	C
	R=0.25mm	A	A	A	C
	R=0.5mm	A	A	A	B
回路埋め込み性		良好	不良	不良	良好
寸法安定性 (%)	MD	0.05	0.01	測定不能	0.01
	TD	0.05	0.01	測定不能	0.01

[0083] 実施例1~3で得られた接着シート及び4層板は、銅箔接着性、回路埋め込み性、耐熱性、寸法安定性、曲げ加工性等に優れることが確認された。また、実施例4で得られた接着シートは、接着樹脂層を形成する際の乾燥工程にて溶媒が十分に揮発せず、接着樹脂層表面の粘着性が大きく取り扱い性が悪かったが、得られた4層板は、銅箔接着性、回路埋め込み性、耐熱性、寸法安定性、曲げ加工性等に優れることが確認された。また、実施例5で得られた接着シートは、接着樹脂層を形成する際の乾燥工程にて溶媒の揮発量のばらつきが大きく、接着樹脂層の粘着性やプレス時の樹脂染み出し量にばらつきが生じたが、得られた4層板は、銅箔接着性、回路埋め込み性、耐熱性、寸法安定性、曲げ加工性等に優れることが確認された。

[0084] 一方、比較例1で得られた接着シート及び4層板は、銅箔接着力及び耐熱性に劣ることが確認された。また、比較例2で得られた接着シート及び4層板は、耐熱性には優れるものの、プレス時の接着樹脂層の流動性が不十分であり、回路埋め込み性に劣ることが確認された。また、比較例3で得られた接着シート及び4層板は、多層化時のプレスによる加熱接着時に樹脂が流れ出してしまい、所定の板厚みが得られず(

すなわち、同様の基材を用いた実施例1等では板厚みが $250\mu\text{m}$ であったのに対し、比較例3では板厚みが $200\mu\text{m}$ であった)、多層化配線板の製造に適していないことが確認された。また、比較例4で得られた接着シート及び4層板は、ピンゲージ曲げ試験において硬化後の接着樹脂層にマイクロクラックが発生することが確認された。

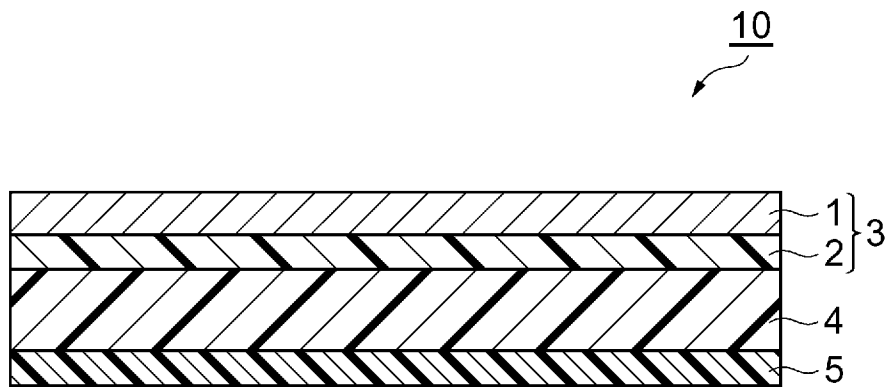
産業上の利用可能性

[0085] 以上説明したように、本発明によれば、フレキシブル配線板を多層化してなる多層配線板の製造に使用され、曲げ加工性、耐熱性、接着性及び回路埋め込み性に優れた接着シートを提供することができる。

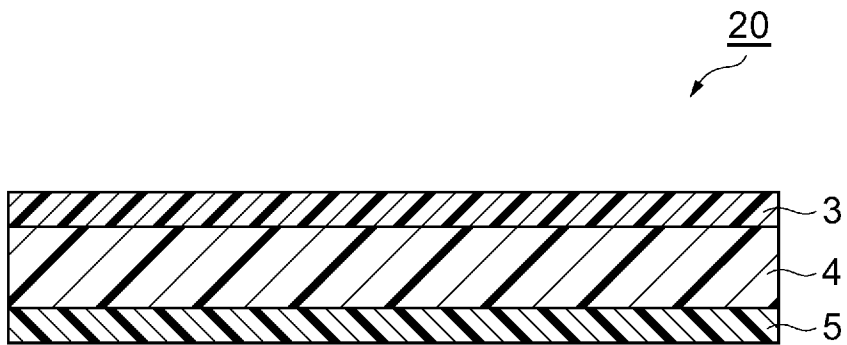
請求の範囲

- [1] 基材と、該基材の一方の面上に形成された接着樹脂層と、を備え、
前記接着樹脂層は、ガラス転移温度が170～200℃であり、且つ、硬化後の弾性率が100～500MPaである層である、接着シート。
- [2] 前記接着樹脂層中にエポキシ樹脂を含み、且つ、該エポキシ樹脂の含有量が前記接着樹脂層の固形分全量を基準として15～40質量%である、請求項1記載の接着シート。
- [3] 前記接着樹脂層中に、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリウレタン樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の樹脂を含有する、請求項1又は2記載の接着シート。
- [4] 前記接着樹脂層中にシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を含み、且つ、該シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂のシロキサン変性率が25～45質量%である、請求項1～3のいずれか一項に記載の接着シート。
- [5] 前記基材が金属層を含むものである、請求項1～4のいずれか一項に記載の接着シート。
- [6] 前記金属層が厚さ0.5～25 μm の銅層である、請求項5記載の接着シート。
- [7] 前記基材が厚さ5～200 μm のポリエチレンテレフタレートフィルムである、請求項1～4のいずれか一項に記載の接着シート。
- [8] 前記接着樹脂層の厚さが100 μm 以下である、請求項1～7のいずれか一項に記載の接着シート。
- [9] 前記基材及び前記接着樹脂層の合計の厚さが100 μm 以下である、請求項1～8のいずれか一項に記載の接着シート。

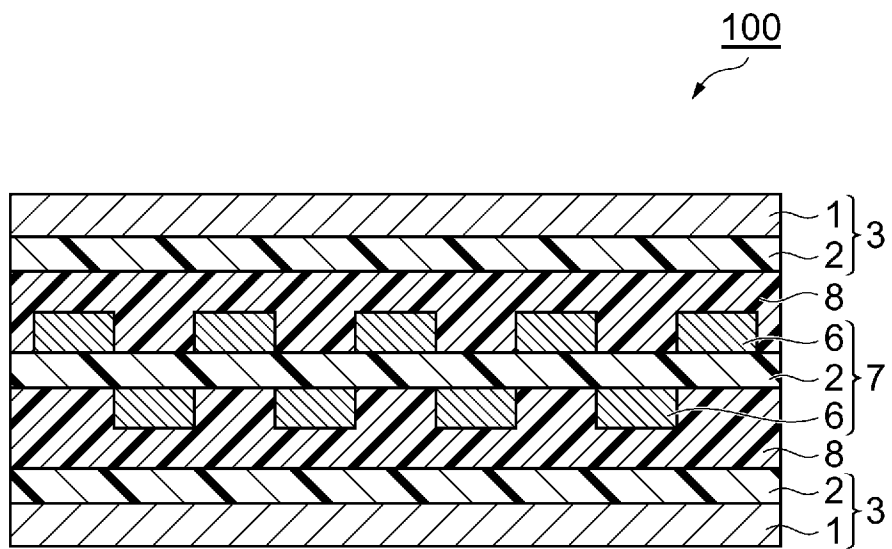
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/057909

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J7/02(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, C09J175/04(2006.01)i,
C09J179/08(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)

C09J7/02, C09J163/00, C09J175/04, C09J179/08, C08L79/08

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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 11-217503 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), Claim 6; Par. Nos. [0020], [0023], [0028]; example 10 & JP 2003-292778 A & US 6252010 B1 & US 6475629 B1 & EP 913429 A2 & EP 1496094 A2	1-5, 8, 9 6, 7
X Y A	JP 11-263912 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 28 September, 1999 (28.09.99), Claims 8, 9; Par. Nos. [0022], [0029], [0030]; example 10 (Family: none)	1-3, 5, 6, 8, 9 6, 7 4

☒ 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
26 June, 2008 (26.06.08)

Date of mailing of the international search report
08 July, 2008 (08.07.08)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/057909

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-244150 A (Ajinomoto Co., Inc.), 08 September, 2005 (08.09.05), Par. Nos. [0060], [0062], [0075] & JP 2005-240019 A & US 2005/0187311 A1 & US 2005/0186434 A1	7
Y	JP 2007-51226 A (Ajinomoto Co., Inc.), 01 March, 2007 (01.03.07), Par. Nos. [0034], [0055] (Family: none)	7
Y	JP 10-330696 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 15 December, 1998 (15.12.98), Par. No. [0046] & US 6090468 A & EP 831528 A2	7
A	JP 2002-146325 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 22 May, 2002 (22.05.02), Claims 1, 7; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2004-51910 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 19 February, 2004 (19.02.04), Claim 3; Par. No. [0023]; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2001-152015 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 05 June, 2001 (05.06.01), Claims 1, 6; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2001-123060 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 08 May, 2001 (08.05.01), Claim 1; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2004-182792 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 02 July, 2004 (02.07.04), Claim 5; examples (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09J7/02(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, C09J175/04(2006.01)i, C09J179/08(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. C09J7/02, C09J163/00, C09J175/04, C09J179/08, C08L79/08

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 8 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 請求の範囲の番号
X Y	JP 11-217503 A (日立化成工業株式会社) 1999.08.10, 請求項 6、 段落【0020】、【0023】、【0028】、実施例 10 & JP 2003-292778 A & US 6252010 B1 & US 6475629 B1 & EP 913429 A2 & EP 1496094 A2	1-5, 8, 9 6, 7
X Y A	JP 11-263912 A (日立化成工業株式会社) 1999.09.28, 請求項 8、 9、段落【0022】、【0029】、【0030】、実施例 10 (ファ ミリーなし)	1-3, 5, 6, 8, 9 6, 7 4

☒ 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

2 6 . 0 6 . 2 0 0 8

国際調査報告の発送日

0 8 . 0 7 . 2 0 0 8

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 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

松本 直子

4 H

4 0 4 7

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 4 3

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 請求の範囲の番号
Y	JP 2005-244150 A (味の素株式会社) 2005.09.08, 段落【0060】、 【0062】、【0075】 & JP 2005-240019 A & US 2005/0187311 A1 & US 2005/0186434 A1	7
Y	JP 2007-51226 A (味の素株式会社) 2007.03.01, 段落【0034】、 【0055】 (ファミリーなし)	7
Y	JP 10-330696 A (日立化成工業株式会社) 1998.12.15, 段落【00 46】 & US 6090468 A & EP 831528 A2	7
A	JP 2002-146325 A (日立化成工業株式会社) 2002.05.22, 請求項1、 7、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2004-51910 A (日立化成工業株式会社) 2004.02.19, 請求項3、 段落【0023】、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2001-152015 A (日立化成工業株式会社) 2001.06.05, 請求項1、 6、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2001-123060 A (日立化成工業株式会社) 2001.05.08, 請求項1、 実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2004-182792 A (日立化成工業株式会社) 2004.07.02, 請求項5、 実施例 (ファミリーなし)	1-9