

(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
2011 年 2 月 10 日(10.02.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/016356 A1

- (51) 国際特許分類:
C08F 220/02 (2006.01) G02B 1/04 (2006.01)
C08F 220/10 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C08F 220/26 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
C08F 290/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/062551
- (22) 国際出願日: 2010 年 7 月 26 日(26.07.2010)
- (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 2009-181841 2009 年 8 月 4 日(04.08.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 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): 岩崎 猛 (IWASAKI, Takeshi) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1 Chiba (JP). 小川 大地 (OGAWA, Daichi) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1 Chiba (JP). 小幡 寛 (OBATA, Yutaka) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1 Chiba (JP). 武部 智明 (TAKEBE, Tomoaki) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 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, 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, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, 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 (条約第 21 条(3))

(54) Title: ACRYLATE COMPOSITION

(54) 発明の名称: アクリレート系組成物

(57) Abstract: Provided is a composition that is suitable for use as a starting material for sealants, lenses, and the like. While meeting existing standards for transparency and heat-resistance, said composition, when cured, has excellent adhesiveness to surrounding base materials. The provided composition contains: (A) at least one (meth)acrylate compound selected from a group comprising a polyalkylene glycol (meth)acrylate having a number-average molecular weight of at least 400, a (meth)acrylate modified silicone oil, and a long-chain alkyl (meth)acrylate; (B) a (meth)acrylate compound to which an alicyclic hydrocarbon group having at least 6 carbon atoms is ester-linked; (C) a (meth)acrylate compound having a (meth)acrylic acid or a polar group; and (D) a radical polymerization initiator.

(57) 要約: 封止材やレンズ等の原料として好適に用いられる組成物であって、透明性や耐熱性に関して従来の水準を有しながら、周りの基材との密着性に優れる硬化物を与える (A) (メタ) アクリレート変性シリコンオイル、長鎖アルキル (メタ) アクリレートおよび数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートから選ばれる一種以上の (メタ) アクリレート化合物、(B) 炭素数 6 以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した (メタ) アクリレート化合物、(C) (メタ) アクリル酸又は極性基を有する (メタ) アクリレート化合物並びに (D) ラジカル重合開始剤を含む組成物を提供する。



WO 2011/016356 A1

明 細 書

発明の名称 : アクリレート系組成物

技術分野

[0001] 本発明はアクリレート系化合物を含有する組成物に関し、さらに詳しくは、封止材やレンズ等の原料として好適に用いられる組成物およびその硬化物に関する。

背景技術

[0002] 結晶基板の上に成長させた半導体層で p-n 結合を形成して、この接合域を発光層とする LED（発光ダイオード）チップを発光素子として備えた光半導体装置（半導体発光装置）が各種ディスプレイ装置、表示用機器などに広く利用されている。

この光半導体装置の例としては、例えば、GaN、GaAlN、InGaN および InAlGaIn 等の窒化ガリウム系化合物半導体を用いた可視光発光デバイスや高温動作電子デバイスがあり、最近では、青色発光ダイオード、紫外発光ダイオードの分野で開発が進んでいる。

LEDチップを発光素子として備える光半導体装置は、リードフレームの発光面側に LEDチップを搭載して、LEDチップとリードフレームとをワイヤボンディングにより電氣的に接続して、さらに、発光素子の保護およびレンズ機能を兼ねた樹脂により封止されている。

[0003] 近年、新たな光源として白色 LED が注目されており、今後、照明用途を中心に大きく市場が広がると言われている。白色 LED は GaN のベアチップに YAG 蛍光体を塗布し、GaN の青色発光と蛍光体の黄色発光を混色して白色発光させるタイプと赤・緑・青の 3 チップを 1 パッケージ化して白色発光させるタイプが実用化されている。また、近年、色合いの改良から紫外 LED チップを光源にして、複数の蛍光体材料を組み合わせる方法も開発されている。さらに、照明用途等に LED を用いるためには、その耐久性を改良することが求められている。

[0004] 一方、ＬＥＤ（発光ダイオード）チップ等の発光素子を封止する際に用いられる封止材としては、エポキシ樹脂が利用される場合が多い。エポキシ樹脂は透明であること、加工性が良いこと等の要因から利用されている。一般にＬＥＤ封止用のエポキシ樹脂はビスフェノールＡグリシジルエーテルとメチルヘキサヒドロ無水フタル酸、アミン系もしくはリン系等の硬化促進剤からなるものが殆どである。しかし、これらの成分は紫外光の吸収によりカルボニル基を生成するため、可視光を吸収して黄変するといった欠点があった。これを解決するために水素化されたビスフェノールＡグリシジルエーテルを用いる方法（非特許文献１）が提案されているが性能は十分とはいえない。

[0005] 紫外光による黄変や輝度の低下を改良するために、シリコーン樹脂が広く用いられている。シリコーン樹脂は紫外領域における透明性に優れ、紫外光による黄変や透過率の低下が極めて少ない。しかし、シリコーン樹脂は屈折率が低いため光の取り出し効率が低いことや、極性が低いためリードフレームやリフレクタとの密着性に劣るという問題がある。

また、表面実装タイプのＬＥＤにおいては、リフローはんだ方式によるはんだ付けが行われる。リフロー炉内では、 260°C の熱に約１０秒間曝されるため、従来のエポキシ樹脂やシリコーン樹脂では熱による変形、割れが発生することがある。

[0006] また、特許文献１には、炭素数１０以上の脂環式アクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステルを単独重合または共重合させることにより光学特性、耐熱性および耐水性に優れた重合物が得られることが開示されている。この重合物の用途として、発光ダイオードの封止材が記載されているが、密着性などの改良が更に必要である。

特許文献２には、紫外線や熱に対して安定で黄変が発生しにくく、かつ、密着性にも優れた硬化物を与える光半導体用の透明封止材料等が記載されている。しかしながら、この硬化物は周りの基材（反射材樹脂や金属フレーム）との密着性に劣る場合があり、さらなる技術開発が求められていた。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開平2－67248号公報

特許文献2：国際公開パンフレットWO2007／129536号公報

非特許文献

[0008] 非特許文献1：NEDO「高効率電光変換化合物半導体開発 成果報告 平成13年度21世紀のあかり計画」

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は上記事情に鑑みなされたもので、封止材やレンズ等の原料として好適に用いられる組成物であって、透明性や耐熱性に関して従来の水準を維持しながら、周りの基材との密着性に優れる硬化物を与える組成物を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、特定のアクリレート系化合物を含有する組成物によって前記課題が解決することを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち本発明は、

1. (A) (メタ) アクリレート変性シリコンオイル、長鎖アルキル (メタ) アクリレートおよび数平均分子量400以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートから選ばれる一種以上の (メタ) アクリレート化合物、(B) 炭素数6以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した (メタ) アクリレート化合物、(C) (メタ) アクリル酸又は極性基を有する (メタ) アクリレート化合物並びに (D) ラジカル重合開始剤を含むことを特徴とする組成物、
2. 前記 (A) 成分が炭素数12以上のアルキル基を有する (メタ) アクリレートから選ばれる長鎖アルキル (メタ) アクリレート、および／又は前記

数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートである前記 1 に記載の組成物、

3. 前記（A）成分が、水素化ポリブタジエンジ（メタ）アクリレートおよび水素化ポリイソプレンジ（メタ）アクリレートから選ばれる長鎖アルキル（メタ）アクリレート、および／又は数平均分子量 400 以上のポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレートである前記 1 または 2 に記載の組成物、

4. 前記（B）成分が、アダマンチル基、ノルボルニル基、イソボニル基、ジシクロペンタニル基およびシクロヘキシル基から選ばれる一種以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した（メタ）アクリレート化合物である前記 1 ～ 3 のいずれかに記載の組成物、

5. 前記（C）成分が、水酸基、エポキシ基、グリシジルエーテル基、テトラヒドロフルフリル基、イソシアネート基、カルボキシル基、アルコキシシリル基、リン酸エステル基、ラクトン基、オキセタン基およびテトラヒドロピラニル基から選ばれる極性基を有する（メタ）アクリレート化合物である前記 1 ～ 4 のいずれかに記載の組成物、

6. （A）成分、（B）成分および（C）成分の合計を基準として、（A）成分が 10 ～ 90 質量%、（B）成分が 5 ～ 90 質量%、（C）成分が 0.5 ～ 50 質量%であり、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計 100 質量部に対して、（D）成分の量が 0.01 ～ 10 質量部である前記 1 ～ 5 のいずれかに記載の組成物、

7. 前記 1 ～ 6 のいずれかに記載の組成物を硬化して得られる硬化物、

8. 前記 7 に記載の硬化物を用いた封止材、

9. 光半導体用または受光素子用の封止材である前記 8 に記載の封止材、

10. 前記 7 に記載の硬化物を用いたレンズ、および

11. 半導体分野用または光学分野用のレンズである前記 10 に記載のレンズ

を提供するものである。

発明の効果

- [0011] 本発明によれば、封止材やレンズ等の原料として好適に用いられる組成物であって、透明性および耐熱性に優れるとともに、反射材樹脂や金属フレーム等の周りの基材との密着性に優れる硬化物を与える組成物が提供される。

発明を実施するための最良の形態

- [0012] 本発明の組成物は、(A) (メタ) アクリレート変性シリコーンオイル、長鎖アルキル (メタ) アクリレートおよび数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートから選ばれる一種以上の (メタ) アクリレート化合物、(B) 炭素数 6 以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した (メタ) アクリレート化合物、(C) (メタ) アクリル酸又は極性基を有する (メタ) アクリレート化合物並びに (D) ラジカル重合開始剤を含むものである。

- [0013] (A) 成分の (メタ) アクリレート変性シリコーンオイルは、アクリル基および／またはメタクリル基を末端に有し、ジアルキルポリシロキサンを骨格に含む化合物である。この (A) 成分の (メタ) アクリレート変性シリコーンオイルは、多くの場合ジメチルポリシロキサンの変性物であるが、メチル基に代えてフェニル基やメチル基以外のアルキル基によりジアルキルポリシロキサン骨格中のアルキル基の全部、あるいは一部が置換されていても良い。メチル基以外のアルキル基としてはエチル基、プロピル基などが挙げられる。このようなものとして具体的には、信越化学工業株式会社製の X-24-8201、X-22-174DX、X-22-2426、X-22-2404、X-22-164A、X-22-164C、東レ・ダウコーニング株式会社の BY16-152D、BY16-152、BY16-152C 等が挙げられる。

- [0014] また、(A) 成分の (メタ) アクリレート変性シリコーンオイルとして、アクリロキシアルキル末端やメタクリロキシアルキル末端を持つポリジアルキルシロキサンを用いることができ、具体的には、メタクリロキシプロピル末端ポリジメチルシロキサン、(3-アクリロキシ-2-ヒドロキシプロピ

ル) 末端ポリジメチルシロキサン、アクリロキシ末端エチレンオキシドジメチルシロキサンーエチレンオキシドA B Aブロック共重合体、メタクリロキシプロピル末端分岐ポリジメチルシロキサン等が挙げられる。

これらの中では、硬化後の透明性から、(3-アクリロキシ-2-ヒドロキシプロピル) 末端ポリジメチルシロキサンおよびアクリロキシ末端エチレンオキシドジメチルシロキサンーエチレンオキシドA B Aブロック共重合体が好適に用いられる。

[0015] (A) 成分の長鎖アルキル(メタ)アクリレートは、長鎖アルキル基を含有する(メタ)アクリレートである。長鎖アルキル基としては、炭素数12以上のアルキル基が挙げられ、具体的には、例えば、ドデシル基、ラウリル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基(ステアシル基を含む)、エイコシル基、トリアコンチル基およびテトラコンチル基等が挙げられる。また、炭素数12以上のアルキル基は、ポリブタジエンやポリイソプレン等の重合体の水素化物に由来するアルキル基であってもよい。炭素数12以上のアルキル基を含有する(メタ)アクリレートを用いることにより優れた密着性が得られる。

長鎖アルキル(メタ)アクリレートの具体例としては、水素化ポリブタジエンジ(メタ)アクリレート、水素化ポリイソプレンジ(メタ)アクリレート等の水素化ポリブタジエンや水素化ポリイソプレン骨格を有するアクリルまたはメタクリル化合物、あるいはステアシルメタクリレート等が挙げられる。

これらの中では、密着性の点で、水素化ポリブタジエンジ(メタ)アクリレート、水素化ポリイソプレンジ(メタ)アクリレートが好ましい。

[0016] (A) 成分の数平均分子量400以上のポリアルキレングリコール(メタ)アクリレートとしては、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリブチレングリコールジ(メタ)アクリレート、エトキシ化トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、エトシキ化ペンタエリストールテトラ(メタ)アクリレ

ート等が挙げられる。数平均分子量400以上のポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートを用いることにより優れた靱性や密着性が得られる。数平均分子量の最大値は特に限定されないが、（B）成分との相溶性の観点から、数平均分子量10000以下のものが好ましい。

[0017] 本発明においては、（A）成分として、前記（メタ）アクリレート変性シリコンオイルの中から選ばれる少なくとも一種、前記長鎖アルキル（メタ）アクリレートの中から選ばれる少なくとも一種、又は前記数平均分子量400以上のポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートの中から選ばれる少なくとも一種を用いても良いし、或いは、前記の（メタ）アクリレート変性シリコンオイル、長鎖アルキル（メタ）アクリレートおよび数平均分子量400以上のポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートの中から適当に選び組み合わせてもよい。

[0018] 本発明の組成物は、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計を基準として、（A）成分が通常10～90質量%、好ましくは15～80質量%である。（A）成分を10質量%以上にする事で優れた密着性や靱性が得られる。

[0019] （B）成分の炭素数6以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した（メタ）アクリレート化合物の脂環式炭化水素基としては、シクロヘキシル基、2-デカヒドロナフチル基、アダマンチル基、1-メチルアダマンチル基、2-メチルアダマンチル基、ビアダマンチル基、ジメチルアダマンチル基、ノルボルニル基、1-メチルノルボルニル基、5,6-ジメチルノルボルニル基、イソボルニル基、テトラシクロ[4.4.0.12,5.17,10]ドデシル基、9-メチルテトラシクロ[4.4.0.12,5.17,10]ドデシル基、ボルニル基、ジシクロペンタニル基などが挙げられ、耐熱性の観点から、これらの中で、シクロヘキシル基、アダマンチル基、ノルボルニル基、イソボルニル基およびジシクロペンタニル基が好ましい。中でもアダマンチル基が更に好ましく、1-アダマンチル基が特に好ましい。

[0020] （B）成分の前記（メタ）アクリレート化合物としては、前記の脂環式炭

化水素基を持つ（メタ）アクリレート、例えばシクロヘキシルアクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、1-アダマンチル（メタ）アクリレート、ノルボルニル（メタ）アクリレート、イソボニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレートなどが挙げられる。本発明においては、（B）成分として、前記（メタ）アクリレート化合物を一種用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

本発明においては脂環式炭化水素基の炭素数が6以上のものを用いることにより優れた耐熱性が得られる。また、エステル置換基が脂環式炭化水素基であり、芳香族等を含有しないので紫外線による劣化を引き起こしにくい。

[0021] 本発明の組成物は、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計を基準として、（B）成分が通常5～90質量%、好ましくは10～80質量%である。（B）成分を5質量%以上にする事で優れた剛性、耐熱性、透明性が得られる。

[0022] （C）成分としては、アクリル酸若しくはメタクリル酸または極性基を有する（メタ）アクリレート化合物が用いられる。（C）成分は極性を有するため、同じように極性を有する金属表面等と水素結合等を形成し、密着性が向上する。また極性基の存在によりぬれ性が向上する。なお、アルキレングリコール基が密着性付与に関与する場合もあり得るが、アルキレングリコール（メタ）アクリレートは（C）成分には含まれないものとする。極性基を有する（メタ）アクリレート化合物としては、炭素、水素以外の原子を含む置換基がエステル結合する（メタ）アクリレート化合物が挙げられ、置換基としては、水酸基、エポキシ基、グリシジルエーテル基、テトラヒドロフルフリル基、イソシアネート基、カルボキシル基、アルコキシシリル基、リン酸エステル基、ラクトン基、オキセタン基、テトラヒドロピラニル基、アミノ基等を挙げることができる。このようなものとして具体的には、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート（日本化成株式会社製、商品名4-HBA）、シ

クロヘキサンジメタノールモノ（メタ）アクリレート（日本化成株式会社製、商品名CHMMA）、グリシジル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレートグリシジリエーテル（日本化成株式会社製、商品名4-HBAGE）、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、2-イソシアナトエチル（メタ）アクリレート、2-（メタ）アクリロイロキシエチルコハク酸、2-（メタ）アクリロイロキシエチルヘキサヒドロフタル酸、3-（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-（メタ）アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-（メタ）アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-（メタ）アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、2-（メタ）アクリロイロキシエチルホスフェート、ジ（2-（メタ）アクリロイロキシエチル）ホスフェート、日本化薬株式会社のKAYAMER PM-21、 γ -ブチルラクトン（メタ）アクリレート、（メタ）アクリル酸（3-メチルー3-オキセタニル）、（メタ）アクリル酸（3-エチルー3-オキセタニル）、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

本発明においては、（C）成分として、前記（メタ）アクリル酸の中から選ばれる少なくとも一種、又は前記極性基を有する（メタ）アクリレート化合物の中から選ばれる少なくとも一種を用いても良いし、或いは、前記の（メタ）アクリル酸および極性基を有する（メタ）アクリレート化合物の中から適当に選び組み合わせてもよい。

[0023] 本発明の組成物は、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計を基準として、（C）成分が通常0.5～50質量%、好ましくは1～40質量%である。（C）成分を0.5質量%以上にすることで、光半導体の封止の際等において封止材と接触する樹脂材料や金属材料に対して優れた密着性を示す。

[0024] （D）成分のラジカル重合開始剤としては、メチルエチルケトンパーオキサイド、メチルイソブチルケトンパーオキサイド、アセチルアセトンパーオ

キサイド、シクロヘキサノンパーオキサイド、メチルシクロヘキサノンパーオキサイドなどのケトンパーオキサイド類、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルヒドロパーオキサイド、クメンヒドロパーオキサイド、t-ブチルヒドロパーオキサイドなどのヒドロパーオキサイド類、ジイソブチリルパーオキサイド、ビス-3, 5, 5-トリメチルヘキサノールパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、m-トルイルベンゾイルパーオキサイドなどのジアシルパーオキサイド類、ジクミルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキサン、1, 3-ビス(t-ブチルペルオキシイソプロピル)ヘキサン、t-ブチルクミルパーオキサイド、ジ-t-ブチルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキセンなどのジアルキルパーオキサイド類、1, 1-ジ(t-ブチルペルオキシ-3, 5, 5-トリメチル)シクロヘキサン、1, 1-ジ-t-ブチルペルオキシシクロヘキサン、2, 2-ジ(t-ブチルペルオキシ)ブタンなどのパーオキシケタール類、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルペルオキシネオジカーボネート、 α -クミルペルオキシネオジカーボネート、t-ブチルペルオキシネオジカーボネート、t-ヘキシルペルオキシピバレート、t-ブチルペルオキシピバレート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルペルオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-アミルペルオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルペルオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルペルオキシイソブチレート、ジ-t-ブチルペルオキシヘキサヒドロテレフタレート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルペルオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサネート、t-アミルペルオキシ3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、t-ブチルペルオキシ3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、t-ブチルペルオキシアセテート、t-ブチルペルオキシベンゾエート、ジブチルペルオキシトリメチルアジペートなどのアルキルパーエステル類、ジ-3-メトキシブチルペルオキシジカーボネート、ジ-2-エチルヘキシルペルオキシジカーボネート、ビス(1, 1-ブチルシクロヘキサオキシジカーボネート

）、ジイソプロピルオキシジカーボネート、*t*-アミルペルオキシイソプロピルカーボネート、*t*-ブチルペルオキシイソプロピルカーボネート、*t*-ブチルペルオキシ-2-エチルヘキシルカーボネート、1, 6-ビス（*t*-ブチルペルオキシカルボキシ）ヘキサンなどのパーオキシカーボネート類などが挙げられる。

[0025] （D）成分として光ラジカル重合開始剤も用いることが可能である。このようなものとして、イルガキュア651（Irgacure 651、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア184（Irgacure 184、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、ダロキュア1173（DAROCUR 1173、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア2959（Irgacure 2959、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア127（Irgacure 127、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア907（Irgacure 907、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア369（Irgacure 369、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア379（Irgacure 379、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、ダロキュアTPO（DAROCUR TPO、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア819（Irgacure 819、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガキュア784（Irgacure 784、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）等が挙げられる。

[0026] （D）成分のラジカル重合開始剤は、単独で使用してもよく、また、複数のラジカル重合開始剤を併用してもよい。その使用量は、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計100質量部に対して、通常、0.01～10質量部、好ましくは0.1～5.0質量部である。

[0027] 本発明の組成物は前記（A）～（D）成分の他に、（E）成分として無機粒子や蛍光体を含んでもよい。無機粒子としては各種のものが使用でき、その具体例としては、石英、無水ケイ酸、溶融シリカおよび結晶性シリカ等の

シリカ粒子、アルミナ、ジルコニア並びに酸化チタン等が挙げられる。また、これらの他にエポキシ樹脂等の従来の封止材の充填材として使用あるいは提案されている無機粒子等を挙げることができる。無機粒子に対して適宜表面処理をしてもよく、例えば、アルキル化処理、トリメチルシリル化処理、シリコーン処理、カップリング剤による処理等が挙げられる。

また、白色LED用の蛍光体として、YAG蛍光体、シリケート蛍光体等を使用できる。

(E) 成分の無機粒子や蛍光体は、単独で使用してもよく、また、複数の化合物を併用してもよい。その使用量は、(A) 成分、(B) 成分および(C) 成分の合計100質量部に対して、通常、1～100質量部、好ましくは10～50質量部である。

[0028] 本発明の組成物においては、強度の付与のために、(F) 成分として、その他の(メタ)アクリレート化合物〔(A)～(C)成分以外の(メタ)アクリレート化合物〕を1種以上加えてもよい。(F)成分の(メタ)アクリレート化合物としては、エ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、1,4-ブタンジオール(メタ)アクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ(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、ネオペンチルジオールジ(メタ)アクリレート、数平均分子量400未満のポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレートやポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、メトキシポリエチレンメタクリレートなどのアルコキシポリアルキレングリコール(メタ)アクリレート、エチレンオキシド変性ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、プロピレンオキシド変性ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、エピクロルヒドリン変性ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、プロピレンオキシド変性グリセリントリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ジトリメチロールプロパントトラ(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、トリス(アクリロイロキシエチル)イソシアヌレート、メトキ

シポリエチレングリコール（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0029] （F）成分の（メタ）アクリレート化合物は単独で使用してもよく、また、複数の化合物を併用してもよい。その含有量は、（A）成分、（B）成分および（C）成分の合計１００質量部に対して、通常、１００質量部以下、好ましくは５０質量部以下である。

[0030] 本発明の組成物においては、さらに公知の酸化防止剤や光安定剤等を使用することができる。酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤、ビタミン系酸化防止剤、ラクトン系酸化防止剤、アミン系酸化防止剤などが挙げられる。

[0031] フェノール系酸化防止剤としてはイルガノクス１０１０（Irganox 1010、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガノクス１０７６（Irganox 1076、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガノクス１３３０（Irganox 1330、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガノクス３１１４（Irganox 3114、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガノクス３１２５（Irganox 3125、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガノクス３７９０（Irganox 3790、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）BHT、シアノクス１７９０（Cyanox 1790、サイアナミド社、商標）、スミライザーGA-80（Sumilizer GA-80、住友化学社、商標）などの市販品を挙げることができる。

[0032] リン系酸化防止剤としては、イルガフォス１６８（Irgafos 168、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガフォス１２（Irgafos 12、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、イルガフォス３８（Irgafos 38、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標）、アデカスタブ３２９Ｋ（ADKSTAB 329K、ADEKA社、商標）、アデカスタブPEP36（ADKSTAB PEP36、ADEKA社、商標）、アデカスタブPEP-8（ADKSTAB PEP-8、AD

EKA社、商標)、Sardstab P-EPQ (クラリアント社、商標)、ウエストン618 (Weston 618、GE社、商標)、ウエストン619G (Weston 619G、GE社、商標)、ウエストン-624 (Weston-624、GE社、商標)などの市販品を挙げることができる。

イオウ系酸化防止剤としては、例えばDSTP (ヨシトミ) (吉富社、商標)、DLTP (ヨシトミ) (吉富社、商標)、DLTOIB (吉富社、商標)、DMTP (ヨシトミ) (吉富社、商標)、Seenox 412S (シプロ化成社、商標)、Cyanox 1212 (サイアナミド社、商標)、スミライザーTP-D (Sumilizer TP-D、住友化学社、商標)などの市販品を挙げることができる。

[0033] ビタミン系酸化防止剤としては、トコフェロール、イルガノクスE201 (Irganox E201、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標、化合物名；2, 5, 7, 8-テトラメチル-2 (4', 8', 12'-トリメチルトリデシル) クマロン-6-オール)などの市販品がある。

ラクトン系酸化防止剤としては、特開平7-233160号公報、特開平7-247278号公報に記載されているものを使用できる。また、HP-136 (チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標、化合物名；5, 7-ジ-tert-ブチル-3-(3, 4-ジメチルフェニル)-3H-ベンゾフラン-2-オン)などがある。

アミン系酸化防止剤としては、イルガスタブFS042 (チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社、商標)、GENOX EP (クロンプトン社、商標、化合物名；ジアルキル-N-メチルアミノオキサイド)などの市販品を挙げることができる。

[0034] これらの酸化防止剤は単独で使用してもよく、また、複数の化合物を併用してもよい。その含有量は、(A)成分、(B)成分および(C)成分の合計100質量部に対して、通常、0.005~5質量部、好ましくは0.02~2質量部である。

[0035] 光安定剤としては通常知られているものが使用できるが、好ましくは、ヒンダードアミン系光安定剤である。具体的には、商品名として、ADEKA社製のADK STAB LA-52、LA-57、LA-62、LA-63、LA-67、LA-68、LA-77、LA-82、LA-87、LA-94、CSC社製のTinuvin 123、144、440、662、Chimassorb 2020、119、944、Hoechst社製のHostavin N30、Cytec社製のCyasorb UV-3346、UV-3526、GLC社製のUval 299、Clariant社製のSanduvor PR-31等を挙げることができる。

[0036] これらの光安定剤は単独で使用してもよく、また、複数の化合物を併用してもよい。その含有量は、(A)成分、(B)成分および(C)成分の合計100質量部に対して、通常、0.005～5質量部、好ましくは0.002～2質量部である。

[0037] 本発明の組成物は、(D)成分からラジカルが発生する温度以上に加熱処理することにより(光ラジカル重合開始剤の場合は、光を照射することにより)硬化物を与える。硬化条件は開始剤の分解特性を勘案し、適宜採用すればよい。

本発明の組成物を硬化して得られる硬化物は封止材やレンズの材料として好ましく用いられる。

封止材としては光半導体用封止材や受光素子用封止材が挙げられ、封止される素子としては、例えば発光ダイオード(LED)チップ、半導体レーザー、フォトダイオード、フォトインタラプタ、フォトカプラ、フォトランジスタ、エレクトロルミネッセンス素子、CCD、太陽電池等が挙げられる。

レンズとしては、半導体分野用レンズや光学分野用のレンズが挙げられる。

実施例

[0038] 次に、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらの例

によって何ら限定されるものではない。

なお、各実施例および比較例において得られた硬化物の物性評価方法は以下の通りである。また数平均分子量はNMRにより測定した。

[0039] (1) 全光線透過率

試料として厚み3mmの試験片を用いてJIS K7105に準拠して測定した。測定装置はHGM-2DP（スガ試験機株式会社）を用いた。140℃の恒温槽に試験片を100時間置き、その前後の全光線透過率を測定した。

(2) 密着性試験

光半導体の封止を想定して密着性試験を行った。すなわち封止樹脂と接触する反射材樹脂（ポリアミド樹脂）およびリードフレームの金属に対する密着性を以下のように評価した。

ポリフタルアミド樹脂（アモデル A-4122NL、ソルベイアドバンスドポリマー株式会社）の板（幅25mm、長さ100mm、厚み2mm）2枚を1.25cm重ねて、重なる部分に実施例または比較例で得られた組成物を塗布して硬化させた試験片、および銀メッキした金属板（幅10mm、長さ75mm、厚み0.15mm）2枚を2cm重ねて、重なる部分に前記組成物を塗布して硬化させた試験片を用いてJIS K6850に準拠して測定した。測定装置は、（株）島津製作所製恒温槽付引張試験機オートグラフAG-10を用いた。測定温度23℃、湿度50%、引張り速度20mm/分、引張り荷重 ロードセル 10kN。

[0040] 実施例1

(A) 成分〔長鎖アルキル（メタ）アクリレート〕として、水素化ポリブタジエンジアクリレート（大阪有機化学工業株式会社製、商品名SPBDA-S30）5g、(B) 成分として、1-アダマンチルメタクリレート（出光興産株式会社製、商品名：アダマンテートM-104）5g、(C) 成分として、2-ヒドロキシエチルメタクリレート（東京化成工業株式会社製）0.5g、(D) 成分として、1, 1-ビス（t-ヘキシルペルオキシ）シ

クロヘキサン（日本油脂株式会社製、商品名：パーヘキサHC）0.1 gを使用し、これらを混合して組成物を得た。

この組成物を、2枚の鋼板に3 mm厚みのテフロン（登録商標）製スペーサと鋼板とスペーサの間に厚み0.3 mmのアルミ板を挟みこんで作成したセルに流し込み、オープンにて、110℃で3時間、次いで160℃で1時間加熱を行った後、室温に冷却することで、無色透明な厚み3 mmの板状硬化物を得た。また、同じ条件にて硬化させることにより、密着性試験用の試験片を得た。得られた硬化物の評価結果を第1表に示す。

[0041] 実施例 2

（C）成分として、メタクリル酸（和光純薬工業製）を用いた以外は実施例1と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第1表に示す。

[0042] 実施例 3

（C）成分として、グリシジルメタクリレート（和光純薬工業製）を用いた以外は実施例1と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第1表に示す。

[0043] 実施例 4

（C）成分として、2-イソシアナトエチルメタクリレート（昭和電工株式会社製 商品名：カレンズMOI）を用いた以外は実施例1と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第1表に示す。

[0044] 実施例 5

（C）成分として、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業製 商品名：KBM-503）を用いた以外は実施例1と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第1表に示す。

[0045] 実施例 6

（C）成分として、テトラヒドロフルフルルメタクリレート（サートマー製 商品名：SR203）を用いた以外は実施例1と同様にして組成物およ

び硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第 1 表に示す。

[0046] 実施例 7

(C) 成分として、リン酸エステル構造を持つメタクリレートである日本化薬株式会社の K A Y A M E R P M - 2 1 (商品名) を 0.1 g 用いた以外は実施例 1 と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第 1 表に示す。

[0047] 実施例 8

(A) 成分として、水素化ポリイソプレンジアクリレート (大阪有機化学工業社製、商品名 S P I D A) を用いた以外は実施例 3 と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第 1 表に示す。

[0048] 実施例 9

(A) 成分として、水素化ポリイソプレンジアクリレート (大阪有機化学工業社製、商品名 S P I D A) を用いた以外は実施例 5 と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第 1 表に示す。

[0049] 比較例 1

(C) 成分を用いなかった以外は実施例 1 と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第 1 表に示す。

[0050] [表 1]

第 1 表

		実施例									比較例
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	1
全光線透過率 (%)	初期	86	75	89	90	89	90	90	86	85	88
	140°C、100hr 後	86	75	88	86	88	88	86	85	85	87
接着性試験 最大点応力 (MPa)	ポリアミド樹脂	1.0	1.8	3.6	2.9	1.2	1.0	2.4	3.5	1.3	0.5
	銀メッキ金属板	3.3	3.4	3.5	3.3	3.2	3.5	3.4	3.4	3.3	2.9

[0051] 実施例 10

(A) 成分〔数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレート〕として、ポリエチレングリコール # 400 ジメタクリレート (新中村化学工業株式会社製、商品名 : N K エステル 9 G) 5 g、(B) 成分として、1-アダムンチルメタクリレート (出光興産株式会社製、商

品名：アダマンテートM-104) 5 g、(C)成分として、2-ヒドロキシエチルメタクリレート（東京化成工業株式会社製）0.5 gに、(D)成分として、1,1-ビス（t-ヘキシルペルオキシ）シクロヘキサン（日本油脂株式会社製、商品名：パーヘキサHC）0.1 gを使用し、これらを混合して組成物を得た。

この組成物を、2枚の鋼板に3 mm厚みのテフロン（登録商標）製スペーサと鋼板とスペーサの間に厚み0.3 mmのアルミ板を挟みこんで作成したセルに流し込み、オープンにて、110℃で3時間、次いで160℃で1時間加熱を行った後、室温に冷却することで、無色透明な厚み3 mmの板状硬化物を得た。また、同じ条件で硬化させることにより、密着性試験用の試験片を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0052] 実施例 1 1

(C)成分として、メタクリル酸（和光純薬工業製）を用いた以外は実施例10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0053] 実施例 1 2

(C)成分として、グリシジルメタクリレート（和光純薬工業製）を用いた以外は実施例10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0054] 実施例 1 3

(C)成分として、2-イソシアナトエチルメタクリレート（昭和電工株式会社製 商品名：カレンズMOI）を用いた以外は実施例10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0055] 実施例 1 4

(C)成分として、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業製 商品名：KBM-503）を用いた以外は実施例10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0056] 実施例 1 5

(C) 成分として、テトラヒドロフルフリルメタクリレート（サートマー製 商品名：SR203）を用いた以外は実施例 10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0057] 実施例 1 6

(C) 成分として、リン酸エステル構造を持つメタクリレートである日本化薬株式会社のKAYAMER PM-21（商品名）を0.1g用いた以外は実施例 10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0058] 比較例 2

(C) 成分を用いなかった以外は実施例 10と同様にして組成物および硬化物を得た。得られた硬化物の評価結果を第2表に示す。

[0059] [表2]

第2表

		実施例							比較例
		10	11	12	13	14	15	16	2
全光線透過率 (%)	初期	88	88	90	89	87	88	87	90
	140°C、100hr後	86	85	90	75	85	86	85	88
接着性試験 最大点応力 (MPa)	ポリアミド樹脂	—	0	1	0	0	—	—	0
	銀メッキ金属板	2	2	3	3	2	2	1	1

産業上の利用可能性

[0060] 本発明によれば、透明性および耐熱性に優れるとともに、反射材樹脂や金属フレーム等の周りの基材との密着性に優れる硬化物を与える組成物が提供される。本発明の組成物は光半導体装置における発光素子や受光素子などの封止材や半導体分野や光学分野で使用されるレンズ等の原料として好適に用いられる。

請求の範囲

- [請求項1] (A) (メタ) アクリレート変性シリコンオイル、長鎖アルキル (メタ) アクリレートおよび数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートから選ばれる一種以上の (メタ) アクリレート化合物、(B) 炭素数 6 以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した (メタ) アクリレート化合物、(C) (メタ) アクリル酸又は極性基を有する (メタ) アクリレート化合物並びに (D) ラジカル重合開始剤を含むことを特徴とする組成物。
- [請求項2] 前記 (A) 成分が炭素数 12 以上のアルキル基を有する (メタ) アクリレートから選ばれる長鎖アルキル (メタ) アクリレート、および／又は前記数平均分子量 400 以上のポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートである請求項 1 に記載の組成物。
- [請求項3] 前記 (A) 成分が、水素化ポリブタジエンジ (メタ) アクリレートおよび水素化ポリイソプレンジ (メタ) アクリレートから選ばれる長鎖アルキル (メタ) アクリレート、および／又は数平均分子量 400 以上のポリエチレングリコールジ (メタ) アクリレートである請求項 1 または 2 に記載の組成物。
- [請求項4] 前記 (B) 成分が、アダマンチル基、ノルボルニル基、イソボニル基、ジシクロペンタニル基およびシクロヘキシル基から選ばれる一種以上の脂環式炭化水素基がエステル結合した (メタ) アクリレート化合物である請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の組成物。
- [請求項5] 前記 (C) 成分が、水酸基、エポキシ基、グリシジルエーテル基、テトラヒドロフルフリル基、イソシアネート基、カルボキシル基、アルコキシシリル基、リン酸エステル基、ラクトン基、オキセタン基およびテトラヒドロピラニル基から選ばれる極性基を有する (メタ) アクリレート化合物である請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の組成物。
- [請求項6] (A) 成分、(B) 成分および (C) 成分の合計を基準として、(A) 成分が 10 ～ 90 質量%、(B) 成分が 5 ～ 90 質量%、(C)

成分が0.5～50質量%であり、(A)成分、(B)成分および(C)成分の合計100質量部に対して、(D)成分の量が0.01～10質量部である請求項1～5のいずれかに記載の組成物。

[請求項7] 請求項1～6のいずれかに記載の組成物を硬化して得られる硬化物。

[請求項8] 請求項7に記載の硬化物を用いた封止材。

[請求項9] 光半導体用または受光素子用の封止材である請求項8に記載の封止材。

[請求項10] 請求項7に記載の硬化物を用いたレンズ。

[請求項11] 半導体分野用または光学分野用のレンズである請求項10に記載のレンズ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/062551

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F220/02(2006.01)i, C08F220/10(2006.01)i, C08F220/26(2006.01)i,
C08F290/02(2006.01)i, G02B1/04(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31
(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)

C08C19/00-19/44, C08F6/00-246/00

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2006/051803 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 May 2006 (18.05.2006), entire text; all drawings & US 2008/97072 A1	1-11
A	JP 2008-127503 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 05 June 2008 (05.06.2008), entire text & US 2010/22733 A & EP 2088164 A1	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
10 August, 2010 (10.08.10)

Date of mailing of the international search report
24 August, 2010 (24.08.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08F220/02(2006.01)i, C08F220/10(2006.01)i, C08F220/26(2006.01)i, C08F290/02(2006.01)i, G02B1/04(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(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. C08C19/00-19/44, C08F6/00-246/00

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 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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)

CAplus (STN)

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
A	WO 2006/051803 A1 (出光興産株式会社) 2006.05.18, 全文, 全図 & US 2008/97072 A1	1-11
A	JP 2008-127503 A (出光興産株式会社) 2008.06.05, 全文 & US 2010/22733 A & EP 2088164 A1	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

1 0 . 0 8 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 4 . 0 8 . 2 0 1 0

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)

米村 耕一

4 J

3 7 5 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7