

(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
2018年2月15日(15.02.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/030435 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 201/00 (2006.01) *C09J 11/06* (2006.01)
C09J 4/00 (2006.01) *C09J 175/04* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/028837

(22) 国際出願日: 2017年8月8日(08.08.2017)

(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 2016-156503 2016年8月9日(09.08.2016) JP
特願 2016-177786 2016年9月12日(12.09.2016) JP
特願 2017-011406 2017年1月25日(25.01.2017) JP
特願 2017-082031 2017年4月18日(18.04.2017) JP

(71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 木田 拓身 (KIDA, Takumi); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 玉川 智一 (TAMAGAWA, Tomokazu); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 結城 彰 (YUUKI, Akira); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 高橋 徹 (TAKAHASHI, Toru); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (YASUTOMI & ASSOCIATES); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 Osaka (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, JP, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION, CURED BODY, ELECTRONIC COMPONENT, AND ASSEMBLY COMPONENT

(54) 発明の名称: 接着剤組成物、硬化体、電子部品及び組立部品

(57) Abstract: One purpose of the present invention is to provide an adhesive composition that exhibits superior adhesiveness and is easy to rework at low temperatures. Another purpose of the present invention is to provide a cured body of said adhesive composition, as well as an electronic component and assembly component comprising the cured body of said adhesive composition. The present invention is an adhesive composition containing a moisture-curing resin and a wax.

(57) 要約: 本発明は、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該接着剤組成物の硬化体、並びに、該接着剤組成物の硬化体を有する電子部品及び組立部品を提供することを目的とする。本発明は、湿気硬化型樹脂とワックスとを含有する接着剤組成物である。



WO 2018/030435 A1

明 細 書

発明の名称： 接着剤組成物、硬化体、電子部品及び組立部品

技術分野

[0001] 本発明は、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物に関する。また、本発明は、該接着剤組成物の硬化体、並びに、該接着剤組成物の硬化体を有する電子部品及び組立部品に関する。

背景技術

[0002] 近年、薄型、軽量、低消費電力等の特徴を有する表示素子として、液晶表示素子、有機EL表示素子等が広く利用されている。これらの表示素子では、通常、液晶又は発光層の封止、基板、光学フィルム、保護フィルム等の各種部材の接着等に光硬化型樹脂組成物が用いられている。また、携帯電話、携帯ゲーム機等、各種表示素子付きモバイル機器が普及している現代において、表示素子の小型化は最も求められている課題である。

しかしながら、表示素子の小型化に伴い、十分に光の届かない部分に光硬化型樹脂組成物が塗布されることがあり、その結果、光の届かない部分に塗布された光硬化型樹脂組成物は硬化が不十分となるという問題があった。そこで、光の届かない部分に塗布された場合でも十分に硬化できる樹脂組成物として光熱硬化型樹脂組成物を用い、光硬化と熱硬化とを併用することも行われているが、高温での加熱により素子等に悪影響を与えるおそれがあった。

[0003] また、近年、半導体チップ等の電子部品では、高集積化、小型化が要求されており、例えば、接着剤層を介して複数の薄い半導体チップを接合して半導体チップの積層体とすることが行われている。このような半導体チップの積層体は、例えば、一方の半導体チップ上に接着剤を塗布した後、該接着剤を介して他方の半導体チップを積層し、その後、接着剤を硬化させる方法、一定の間隔を空けて保持した半導体チップ間に接着剤を充填し、その後、接着剤を硬化させる方法等により製造されている。

このような電子部品の接着に用いられる接着剤として、例えば、特許文献1

には、数平均分子量が600～1000であるエポキシ化合物を含有する熱硬化型の接着剤が開示されている。しかしながら、特許文献1に開示されているような熱硬化型の接着剤は、熱により損傷する可能性のある電子部品の接着には適さないものであった。

[0004] 高温での加熱を行わずに樹脂組成物を硬化させる方法として、湿気硬化型樹脂組成物を用いる方法が検討されている。例えば、特許文献2には、樹脂中のイソシアネート基が空气中又は被着体中の湿気（水分）と反応することによって架橋硬化する湿気硬化型樹脂組成物が開示されている。しかしながら、特許文献1に開示されているような熱硬化型の接着剤は、熱により損傷する可能性のある電子部品の接着には適さないものであった。また、熱硬化型の接着剤は、長時間大きな荷重がかかると接着特性が低下しやすいため、信頼性の高い接着剤を得ることが困難であった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2000-178342号公報

特許文献2：特開2002-212534号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 今般、本発明者らは、リワーク性を付与した新しいタイプの湿気硬化型樹脂組成物の着想を得たが、上述したような湿気硬化型樹脂組成物は、接着性とリワーク性（再剥離性）とを両立させることが困難であった。特に、高温条件でリワークを実施すると電子部品等を損傷させるという問題があるため、固定時には高温での加熱を必要とせずに硬化して優れた接着性を有し、かつ、リワーク時には低温条件での加熱で容易に剥離することが可能な樹脂組成物の検討が必要であった。

本発明は、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該接着剤組成物の硬化体、並

びに、該接着剤組成物の硬化体を有する電子部品及び組立部品を提供する。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、湿気硬化型樹脂とワックスとを含有する接着剤組成物である。

以下に本発明を詳述する。

[0008] 本発明者らは、湿気硬化型樹脂組成物にワックスを配合することにより、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物を得ることができると見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] 本発明の接着剤組成物は、ワックスを含有する。

上記ワックスを含有することにより、本発明の接着剤組成物は、リワーク時の加熱により硬化体が軟化して接着力が著しく低下するため、リワーク性に優れるものとなる。

なお、本明細書において、上記「ワックス」とは、23℃で固体であり、加温することで液体となる有機物を意味する。

[0010] 上記ワックスの融点の好ましい下限は50℃、好ましい上限は140℃である。上記ワックスの融点がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が接着性とリワーク性とを両立する効果により優れるものとなる。上記ワックスの融点のより好ましい下限は70℃、より好ましい上限は110℃である。

なお、上記ワックスの融点は、示差走査熱量測定により得られたグラフにおいて、吸熱のピークトップを示す温度とする。

[0011] 上記ワックスは、本発明の接着剤組成物中に微粒子（以下、「ワックス微粒子」ともいう）で存在している場合、樹脂とワックスの接触面積が大きくなり、得られる接着剤組成物がリワーク性により優れるものとなるため好適である。

上記ワックス微粒子の粒子径は小さいほどよく、好ましい上限は300μmである。上記ワックス微粒子の粒子径が300μm以下であることにより、得られる接着剤組成物がリワーク性により優れるものとなる。上記ワックス微粒子の粒子径のより好ましい上限は250μmであり、更に好ましい上限

は100 μm であり、更により好ましい上限は50 μm であり、特に好ましい上限は10 μm である。

また、上記ワックス微粒子の粒子径の好ましい下限は特にはないが、実質的な下限は0.1 μm である。

なお、上記ワックス微粒子の粒子径は、原材料としてのワックス微粒子を測定する場合は、例えば、走査型電子顕微鏡、レーザー顕微鏡、レーザー回折式粒度分布測定装置、ディスク遠心式粒度分布測定装置、個数カウント式粒度分布測定装置等により測定することができる。本発明の接着剤組成物中に存在しているワックス微粒子を測定する場合は、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、レーザー顕微鏡等により測定することができる。好ましい測定方法としては、原材料としてのワックス微粒子を測定する場合は「レーザー回折式粒度分布測定装置」を用いる方法、本発明の接着剤組成物中に存在しているワックス微粒子を測定する場合は「走査型電子顕微鏡」を用いる方法である。

[0012] 上記ワックスとしては、具体的には例えば、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、マイクロクリスタリンワックス、酸化ポリエチレンワックス等のオレフィン系ワックス又はパラフィン系ワックスや、カルナバワックス、サゾールワックス、モンタン酸エステルワックス等の脂肪族エステル系ワックスや、脱酸カルナバワックスや、バルチミン酸、ステアリン酸、モンタン酸等の飽和脂肪族酸系ワックスや、プラシジン酸、エレオステアリン酸、バリナリン酸等の不飽和脂肪族酸系ワックスや、ステアリルアルコール、アラルキルアルコール、ベヘニルアルコール、カルナウビルアルコール、セリルアルコール、メリシルアルコール等の飽和アルコール系ワックス又は脂肪族アルコール系ワックスや、ソルビトール等の多価アルコール系ワックスや、リノール酸アミド、オレイン酸アミド、ラウリン酸アミド等の飽和脂肪酸アミド系ワックスや、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド等の飽和脂肪酸ビスアミド系ワックスや、エチレンビスオ

レイン酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、N, N' - ジオレイルアジピン酸アミド、N, N' - ジオレイルセバシン酸アミド等の不飽和酸アミド系ワックスや、m-キシレンビスステアリン酸アミド、N, N' - ジステアリルイソフタル酸アミド等の芳香族ビスアミド系ワックスや、スチレン等のビニル系モノマーをポリオレフィンにグラフト重合させたグラフト変性ワックスや、ベヘニン酸モノグリセリド等の脂肪酸と多価アルコールとを反応させた部分エステルワックスや、植物性油脂を水素添加して得られるヒドロキシル基を有するメチルエステルワックスや、エチレン成分の含有割合が高いエチレン／酢酸ビニル共重合体ワックスや、アクリル酸等の飽和ステアリルアクリレートワックス等の長鎖アルキルアクリレートワックスや、ベンジルアクリレートワックス等の芳香族アクリレートワックス等が挙げられる。なかでも、パラフィン系ワックス、サゾールワックスが好ましい。

[0013] 上記ワックスのうち市販されているものとしては、例えば、HSクリスター6100、HSクリスター7100（いずれも豊国製油社製）、H1、H1N6、C105、H105、C80、SPRAY30、SPRAY105、（いずれもSasol社製）、ParaffinWax-155、ParaffinWax-150、ParaffinWax-145、ParaffinWax-140、HNP-3、HNP-9、HNP-51、SP-0165、Hi-Mic-2095、Hi-Mic-1090、Hi-Mic-1080、Hi-Mic-1070、NPS-6010、FT115、SX105、FNP-0090（いずれも日本精蠟社製）等が挙げられる。

[0014] 本発明の接着剤組成物100重量部中における上記ワックスの含有量の好ましい下限は1重量部、好ましい上限は50重量部である。上記ワックスの含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が接着性とリワーク性とを両立する効果により優れるものとなる。上記ワックスの含有量のより好ましい下限は3重量部、より好ましい上限は40重量部、更に好ましい下限は5重量部、更に好ましい上限は30重量部である。

[0015] 本発明の接着剤組成物は、湿気硬化型樹脂を含有する。

上記湿気硬化型樹脂としては、例えば、湿気硬化型ウレタン樹脂、加水分解性シリル基含有樹脂等が挙げられる。なかでも、湿気硬化型ウレタン樹脂であることが好ましい。

上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、ウレタン結合とイソシアネート基とを有し、分子内のイソシアネート基が空气中又は被着体中の水分と反応して硬化する。

[0016] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、1分子中にイソシアネート基を1個のみ有していてもよいし、2個以上有していてもよい。なかでも、分子の主鎖両末端にイソシアネート基を有することが好ましい。

[0017] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、1分子中に2個以上の水酸基を有するポリオール化合物と、1分子中に2個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネート化合物とを反応させることにより、得ることができる。

[0018] 上記ポリオール化合物とポリイソシアネート化合物との反応は、通常、ポリオール化合物中の水酸基（OH）とポリイソシアネート化合物中のイソシアネート基（NCO）のモル比で $[NCO] / [OH] = 2.0 \sim 2.5$ の範囲で行われる。

[0019] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂の原料となるポリオール化合物としては、ポリウレタンの製造に通常用いられている公知のポリオール化合物を使用することができ、例えば、ポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、ポリアルキレンポリオール、ポリカーボネートポリオール等が挙げられる。これらのポリオール化合物は、単独で用いられてもよいし、2種以上を組み合わせ用いられてもよい。

[0020] 上記ポリエステルポリオールとしては、例えば、多価カルボン酸とポリオールとの反応により得られるポリエステルポリオール、 ϵ -カプロラク톤を開環重合して得られるポリ- ϵ -カプロラクトンポリオール等が挙げられる。

[0021] 上記ポリエステルポリオールの原料となる上記多価カルボン酸としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、1,5-ナフタル酸、2,6-ナフタ

ル酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカメチレンジカルボン酸、ドデカメチレンジカルボン酸等が挙げられる。

[0022] 上記ポリエステルポリオール为原料となる上記ポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1, 3-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、ジエチレングリコール、シクロヘキサジオール等が挙げられる。

[0023] 上記ポリエーテルポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、テトラヒドロフランの開環重合体、3-メチルテトラヒドロフランの開環重合体、及び、これら若しくはその誘導体のランダム共重合体又はブロック共重合体、ビスフェノール型のポリオキシアルキレン変性体等が挙げられる。

[0024] 上記ビスフェノール型のポリオキシアルキレン変性体は、ビスフェノール型分子骨格の活性水素部分にアルキレンオキシド（例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、イソブチレンオキシド等）を付加反応させて得られるポリエーテルポリオールであり、ランダム共重合体であってもよいし、ブロック共重合体であってもよい。上記ビスフェノール型のポリオキシアルキレン変性体は、ビスフェノール型分子骨格の両末端に、1種又は2種以上のアルキレンオキシドが付加されていることが好ましい。ビスフェノール型としては特に限定されず、A型、F型、S型等が挙げられ、好ましくはビスフェノールA型である。

[0025] 上記ポリアルキレンポリオールとしては、例えば、ポリブタジエンポリオール、水素化ポリブタジエンポリオール、水素化ポリイソプレンポリオール等が挙げられる。

[0026] 上記ポリカーボネートポリオールとしては、例えば、ポリヘキサメチレンカーボネートポリオール、ポリシクロヘキサジメチレンカーボネートポリオール等が挙げられる。

[0027] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂の原料となるポリイソシアネート化合物としては、芳香族ポリイソシアネート化合物、脂肪族ポリイソシアネート化合物が好適に用いられる。

上記芳香族ポリイソシアネート化合物としては、例えば、ジフェニルメタンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネートの液状変性物、ポリメリックMDI、トリレンジイソシアネート、ナフタレン-1, 5-ジイソシアネート等が挙げられる。

上記脂肪族ポリイソシアネート化合物としては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、リジンジイソシアネート、ノルボルナンジイソシアネート、トランスシクロヘキサン-1, 4-ジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート、水添ジフェニルメタンジイソシアネート、シクロヘキサンジイソシアネート、ビス（イソシアネートメチル）シクロヘキサン、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート等が挙げられる。

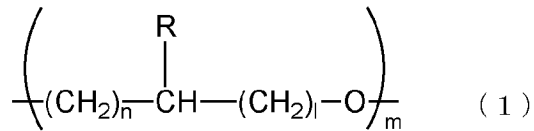
上記ポリイソシアネート化合物としては、なかでも、蒸気圧及び毒性の低い点、扱いやすさの点からジフェニルメタンジイソシアネート及びその変性物が好ましい。

上記ポリイソシアネート化合物は、単独で用いられてもよいし、2種以上を組み合わせ用いられてもよい。

[0028] また、上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、下記式（1）で表される構造を有するポリオール化合物を用いて得られたものであることが好ましい。下記式（1）で表される構造を有するポリオール化合物を用いることにより、接着性に優れる組成物、及び、柔軟で伸びがよい硬化物を得ることができ、後述するラジカル重合性化合物との相溶性に優れるものとなる。

なかでも、プロピレングリコール、テトラヒドロフラン（THF）化合物の開環重合化合物、又は、メチル基等の置換基を有するテトラヒドロフラン化合物の開環重合化合物からなるポリエーテルポリオールを用いたものが好ましい。

[0029] [化1]



[0030] 式(1)中、Rは、水素原子、メチル基、又は、エチル基を表し、lは、0～5の整数、mは、1～500の整数、nは、1～10の整数である。lは、0～4であることが好ましく、mは、50～200であることが好ましく、nは、1～5であることが好ましい。

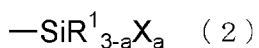
なお、lが0の場合とは、Rと結合した炭素が直接酸素と結合している場合を意味する。

[0031] 上記加水分解性シリル基含有樹脂は、分子内の加水分解性シリル基が空气中又は被着体中の水分と反応して硬化する。

上記加水分解性シリル基含有樹脂は、1分子中に加水分解性シリル基を1個のみ有していてもよいし、2個以上有していてもよい。なかでも、分子の主鎖両末端に加水分解性シリル基を有することが好ましい。

[0032] 上記加水分解性シリル基は、下記式(2)で表される。

[0033] [化2]



[0034] 式(2)中、R¹は、それぞれ独立に、置換されていてもよい炭素数1以上20以下のアルキル基、炭素数6以上20以下アリール基、炭素数7以上20以下のアラルキル基、又は、 $-\text{OSiR}^2_3$ (R²は、それぞれ独立に、炭素数1以上20以下の炭化水素基である)で示されるトリオルガノシロキシ基である。また、式(2)中、Xは、それぞれ独立に、ヒドロキシ基又は加水分解性基である。更に、式(2)中、aは、1～3の整数である。

[0035] 上記加水分解性基は特に限定されず、例えば、水素原子、ハロゲン原子、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アリールオキシ基、アシルオキシ基、ケトキシメート基、アミノ基、アミド基、酸アミド基、アミノオキシ基、メルカプト基等が挙げられる。なかでも、活性が高いことから、ハロゲン原子、

アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アシルオキシ基が好ましく、加水分解性が穏やかで取扱いやすいことから、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基がより好ましく、メトキシ基、エトキシ基が更に好ましい。また、安全性の観点からは、反応により脱離する化合物がそれぞれエタノール、アセトンである、エトキシ基、イソプロペノキシ基が好ましい。

[0036] 上記ヒドロキシ基又は上記加水分解性基は、1個のケイ素原子に対して、1～3個の範囲で結合することができる。上記ヒドロキシ基又は上記加水分解性基が1個のケイ素原子に対して2個以上結合する場合には、それらの基は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0037] 上記式(2)におけるaは、硬化性の観点から、2又は3であることが好ましく、3であることが特に好ましい。また、保存安定性の観点からは、aは、2であることが好ましい。

[0038] また、上記式(2)におけるR¹としては、例えば、メチル基、エチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基等のアリール基、ベンジル基等のアラルキル基、トリメチルシロキシ基、クロロメチル基、メトキシメチル基等があげられる。なかでも、メチル基が好ましい。

[0039] 上記加水分解性シリル基としては、例えば、メチルジメトキシシリル基、トリメトキシシリル基、トリエトキシシリル基、トリス(2-プロペニルオキシ)シリル基、トリアセトキシシリル基、(クロロメチル)ジメトキシシリル基、(クロロメチル)ジエトキシシリル基、(ジクロロメチル)ジメトキシシリル基、(1-クロロエチル)ジメトキシシリル基、(1-クロロプロピル)ジメトキシシリル基、(メトキシメチル)ジメトキシシリル基、(メトキシメチル)ジエトキシシリル基、(エトキシメチル)ジメトキシシリル基、(1-メトキシエチル)ジメトキシシリル基、(アミノメチル)ジメトキシシリル基、(N, N-ジメチルアミノメチル)ジメトキシシリル基、(N, N-ジエチルアミノメチル)ジメトキシシリル基、(N, N-ジエチルアミノメチル)ジエトキシシリル基、(N-(2-アミノエチル)アミノメチル)ジメトキシシリル基、(アセトキシメチル)ジメトキシシリル基、(

アセトキシメチル) ジエトキシシリル基等が挙げられる。

[0040] 上記加水分解性シリル基含有樹脂としては、例えば、加水分解性シリル基含有(メタ)アクリル樹脂、分子鎖末端又は分子鎖末端部位に加水分解性シリル基を有する有機重合体、加水分解性シリル基含有ポリウレタン樹脂等が挙げられる。

[0041] 上記加水分解性シリル基含有(メタ)アクリル樹脂は、主鎖に加水分解性シリル基含有(メタ)アクリル酸エステルと(メタ)アクリル酸アルキルエステルとに由来する繰り返し構造単位を有することが好ましい。

[0042] 上記加水分解性シリル基含有(メタ)アクリル酸エステルとしては、例えば、(メタ)アクリル酸3-(トリメトキシシリル)プロピル、(メタ)アクリル酸3-(トリエトキシシリル)プロピル、(メタ)アクリル酸3-(メチルジメトキシシリル)プロピル、(メタ)アクリル酸2-(トリメトキシシリル)エチル、(メタ)アクリル酸2-(トリエトキシシリル)エチル、(メタ)アクリル酸2-(メチルジメトキシシリル)エチル、(メタ)アクリル酸トリメトキシシリルメチル、(メタ)アクリル酸トリエトキシシリルメチル、(メタ)アクリル酸(メチルジメトキシシリル)メチル等が挙げられる。

[0043] 上記(メタ)アクリル酸アルキルエステルとしては、例えば、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸n-プロピル、(メタ)アクリル酸イソプロピル、(メタ)アクリル酸n-ブチル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸tert-ブチル、(メタ)アクリル酸n-ペンチル、(メタ)アクリル酸n-ヘキシル、(メタ)アクリル酸シクロヘキシル、(メタ)アクリル酸n-ヘプチル、(メタ)アクリル酸n-オクチル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸n-ノニル、(メタ)アクリル酸n-デシル、(メタ)アクリル酸n-ドデシル、(メタ)アクリル酸ステアリル等が挙げられる。

[0044] 上記加水分解性シリル基含有(メタ)アクリル樹脂を製造する方法としては、具体的には例えば、国際公開第2016/035718号に記載されてい

る加水分解性ケイ素基含有（メタ）アクリル酸エステル系重合体の合成方法等が挙げられる。

[0045] 上記分子鎖末端又は分子鎖末端部位に加水分解性シリル基を有する有機重合体は、主鎖の末端及び側鎖の末端の少なくともいずれかに加水分解性シリル基を有する。

上記主鎖の骨格構造は特に限定されず、例えば、飽和炭化水素系重合体、ポリオキシアルキレン系重合体、（メタ）アクリル酸エステル系重合体等が挙げられる。

[0046] 上記ポリオキシアルキレン系重合体としては、例えば、ポリオキシエチレン構造、ポリオキシプロピレン構造、ポリオキシブチレン構造、ポリオキシテトラメチレン構造、ポリオキシエチレンーポリオキシプロピレン共重合体構造、ポリオキシプロピレンーポリオキシブチレン共重合体構造を有する重合体等が挙げられる。

[0047] 上記分子鎖末端又は分子鎖末端部位に加水分解性シリル基を有する有機重合体を製造する方法としては、具体的には例えば、国際公開第2016/035718号に記載されている、分子鎖末端又は分子鎖末端部位のみに架橋性シリル基を有する有機重合体の合成方法が挙げられる。また、上記分子鎖末端又は分子鎖末端部位に加水分解性シリル基を有する有機重合体を製造する他の方法としては、例えば、国際公開第2012/117902号に記載されている反応性ケイ素基含有ポリオキシアルキレン系重合体の合成方法等が挙げられる。

[0048] 上記加水分解性シリル基含有ポリウレタン樹脂を製造する方法としては、例えば、ポリオール化合物とポリイソシアネート化合物とを反応させてポリウレタン樹脂を製造する際に、更に、シランカップリング剤等のシリル基含有化合物を反応させる方法等が挙げられる。具体的には例えば、特開2017-48345号公報に記載されている加水分解性シリル基を有するウレタンオリゴマーの合成方法等が挙げられる。

[0049] 上記シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリクロロシラン、ビ

ニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（ β -メトキシ-エトキシ）シラン、 β -（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、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、N-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。なかでも、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランが好ましい。これらのシランカップリング剤は、単独で用いられてもよいし、2種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0050] 更に、上記湿気硬化型樹脂は、ラジカル重合性官能基を有していてもよい。上記湿気硬化型樹脂が有していてもよいラジカル重合性官能基としては、不飽和二重結合を有する基が好ましく、特に反応性の面から（メタ）アクリロイル基がより好ましい。

なお、ラジカル重合性官能基を有する湿気硬化型樹脂は、後述するラジカル重合性化合物には含まず、湿気硬化型樹脂として扱う。

[0051] 上記湿気硬化型樹脂の重量平均分子量は特に限定されないが、好ましい下限は800、好ましい上限は1万である。上記湿気硬化型樹脂の重量平均分子量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が硬化時に架橋密度が高くなり過ぎずに柔軟性により優れるものとなり、かつ、塗布性により優れるものとなる。上記湿気硬化型樹脂の重量平均分子量のより好ましい下限は2000、より好ましい上限は8000、更に好ましい下限は2500、更に好ましい上限は6000である。

なお、本明細書において上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロ

マトグラフィー（GPC）で測定を行い、ポリスチレン換算により求められる値である。GPCによってポリスチレン換算による重量平均分子量を測定する際のカラムとしては、例えば、Shodex LF-804（昭和電工社製）等が挙げられる。また、GPCで用いる溶媒としては、テトラヒドロフラン等が挙げられる。

[0052] 本発明の接着剤組成物100重量部中における上記湿気硬化型樹脂の含有量の好ましい下限は20重量部、好ましい上限は90重量部である。上記湿気硬化型樹脂の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が優れた耐候性や硬化物の柔軟性を維持しつつ、湿気硬化性により優れるものとなる。上記湿気硬化型樹脂の含有量のより好ましい下限は30重量部、より好ましい上限は70重量部である。

[0053] 本発明者らは、接着性とリワーク性とを両立する効果をより向上させるために、被着体と接触している単位面積あたりのワックスの量を多くすることを目的として、本発明の接着剤組成物を含む接着層を厚くすることを検討した。図1は、（a）接着層の厚みが小さい場合、及び、（b）大きい場合における、本発明の接着剤組成物による被着体の接着状態を示す模式図である。図1に示されるように、被着体1を接着する接着剤組成物2からなる接着層の厚み3が大きいほど、単位面積4あたりの接着剤組成物2に存在するワックス5の量が多くなる。そのため、接着層の厚み3を、接着性を維持できる限度で大きな厚みとすることで、接着性とリワーク性とを両立する効果がより向上される。この場合、接着層の厚み3を維持するために、前処理として光硬化させることが好ましい。そこで、光硬化性を発現させるため、本発明の接着剤組成物は、ラジカル重合性化合物及び光ラジカル重合開始剤を含有することが好ましい。即ち、上記ラジカル重合性化合物及び上記光ラジカル重合開始剤を含有することにより、光硬化性と湿気硬化性とが担保され、接着性とリワーク性とを両立がより効果的なものとなる。このような本発明の接着剤組成物は、特に表示素子用封止剤や狭額縁設計の筐体接続に用いる接着剤に好適に用いることができる。

[0054] 上記ラジカル重合性化合物としては、光重合性を有するラジカル重合性化合物であればよく、分子中にラジカル重合性官能基を有する化合物であれば特に限定されない。なかでも、ラジカル重合性官能基として不飽和二重結合を有する化合物が好適であり、特に反応性の面から（メタ）アクリロイル基を有する化合物（以下、「（メタ）アクリル化合物」ともいう）が好適である。

なお、本明細書において、上記「（メタ）アクリロイル」は、アクリロイル又はメタクリロイルを意味し、上記「（メタ）アクリル」は、アクリル又はメタクリルを意味する。

[0055] 上記（メタ）アクリル化合物としては、例えば、（メタ）アクリル酸エステル化合物、エポキシ（メタ）アクリレート、ウレタン（メタ）アクリレート等が挙げられる。

なお、本明細書において、上記「（メタ）アクリレート」とは、アクリレート又はメタクリレートを意味する。また、上記ウレタン（メタ）アクリレートは、残存イソシアネート基を有さない。

[0056] 上記（メタ）アクリル酸エステル化合物のうち単官能のものとしては、例えば、N-アクリロイルオキシエチルヘキサヒドロフタルイミド等のフタルイミドアクリレート類、各種イミド（メタ）アクリレート、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、n-ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、t-ブチル（メタ）アクリレート、n-オクチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソノニル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、イソミリスチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、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、2-メトキシエチル（メタ）アクリレート、2-エトキシエチル（メタ）アクリレート、2-ブトキシエチル（メタ）アクリレート、メトキシエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、エチルカルビトール（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート、フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、2, 2, 2-トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル（メタ）アクリレート、1 H, 1 H, 5 H-オクタフルオロペンチル（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、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、2-（メタ）アクリロイロキシエチル-2-ヒドロキシプロピルフタレート、グリシジル（メタ）アクリレート、2-（メタ）アクリロイロキシエチルホスフェート等が挙げられる。

[0057] また、上記（メタ）アクリル酸エステル化合物のうち2官能のものとしては、例えば、1, 3-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、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、1, 10-デカンジオールジ（メタ）アクリレート、2-n-ブチル-2-エチル-1, 3-プロパンジオールジ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールジ（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、エチレンオキシド付加ビスフェノールAジ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加ビスフェノールAジ（メタ）アクリレート、

）アクリレート、エチレンオキシド付加ビスフェノールFジ（メタ）アクリレート、ジメチロールジシクロペンタジエニルジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド変性イソシアヌル酸ジ（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-（メタ）アクリロイロキシプロピル（メタ）アクリレート、カーボネートジオールジ（メタ）アクリレート、ポリエーテルジオールジ（メタ）アクリレート、ポリエステルジオールジ（メタ）アクリレート、ポリカプロラクトンジオールジ（メタ）アクリレート、ポリブタジエンジオールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0058] また、上記（メタ）アクリル酸エステル化合物のうち3官能以上のものとしては、例えば、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加イソシアヌル酸トリ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加グリセリントリ（メタ）アクリレート、トリス（メタ）アクリロイルオキシエチルフォスフェート、ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0059] 上記エポキシ（メタ）アクリレートとしては、例えば、エポキシ化合物と（メタ）アクリル酸とを、常法に従って塩基性触媒の存在下で反応させることにより得られるもの等が挙げられる。

[0060] 上記エポキシ（メタ）アクリレートを合成するための原料となるエポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、2, 2'-ジアリルビスフェノールA型エポキシ樹脂、水添ビスフェノール型エポキシ樹脂、プ

ロピレンオキシド付加ビスフェノールA型エポキシ樹脂、レゾルシノール型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、スルフィド型エポキシ樹脂、ジフェニルエーテル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルトクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレンフェノールノボラック型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、アルキルポリオール型エポキシ樹脂、ゴム変性型エポキシ樹脂、グリシジルエステル化合物、ビスフェノールA型エピスルフィド樹脂等が挙げられる。

[0061] 上記エポキシ（メタ）アクリレートのうち市販されているものとしては、例えば、EBECRYL 860、EBECRYL 3200、EBECRYL 3201、EBECRYL 3412、EBECRYL 3600、EBECRYL 3700、EBECRYL 3701、EBECRYL 3702、EBECRYL 3703、EBECRYL 3800、EBECRYL 6040、EBECRYL RDX 63182（いずれもダイセル・オルネクス社製）、EA-1010、EA-1020、EA-5323、EA-5520、EA-CHD、EMA-1020（いずれも新中村化学工業社製）、エポキシエステルM-600A、エポキシエステル40EM、エポキシエステル70PA、エポキシエステル200PA、エポキシエステル80MFA、エポキシエステル3002M、エポキシエステル3002A、エポキシエステル1600A、エポキシエステル3000M、エポキシエステル3000A、エポキシエステル200EA、エポキシエステル400EA（いずれも共栄社化学社製）、デナコールアクリレートDA-141、デナコールアクリレートDA-314、デナコールアクリレートDA-911（いずれもナガセケムテックス社製）等が挙げられる。

[0062] 上記ウレタン（メタ）アクリレートは、例えば、イソシアネート化合物に対して、水酸基を有する（メタ）アクリル酸誘導体を、触媒量のスズ系化合物存在下で反応させることによって得ることができる。

[0063] 上記イソシアネート化合物としては、例えば、イソホロンジイソシアネート、2,4-トリレンジイソシアネート、2,6-トリレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート(MDI)、水添MDI、ポリメリックMDI、1,5-ナフタレンジイソシアネート、ノルボルナレンジイソシアネート、トリジンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート(XDI)、水添XDI、リジンジイソシアネート、トリフェニルメタントリイソシアネート、トリス(イソシアネートフェニル)チオフォスフェート、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、1,6,11-ウンデカントリイソシアネート等が挙げられる。

[0064] また、上記イソシアネート化合物としては、ポリオールと過剰のイソシアネート化合物との反応により得られる鎖延長されたイソシアネート化合物も使用することができる。

上記ポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、ソルビトール、トリメチロールプロパン、カーボネートジオール、ポリエーテルジオール、ポリエステルジオール、ポリカプロラクトンジオール等が挙げられる。

[0065] 上記水酸基を有する(メタ)アクリル酸誘導体としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、ポリエチレングリコール等の二価のアルコールのモノ(メタ)アクリレートや、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、グリセリン等の三価のアルコールのモノ(メタ)アクリレート又はジ(メタ)アクリレートや、ビスフェノールA型エポキシ(メタ)アクリレート等のエポキシ(メタ)アクリレート等が挙げられる。

[0066] 上記ウレタン(メタ)アクリレートのうち市販されているものとしては、例えば、M-1100、M-1200、M-1210、M-1600(いずれも東亜合成社製)、EBECRYL 230、EBECRYL 270、EBECRYL 4858、EBECRYL 8402、EBECRYL 8411、E

BECRYL 8412、EBECRYL 8413、EBECRYL 8804、EBECRYL 8803、EBECRYL 8807、EBECRYL 9260、EBECRYL 1290、EBECRYL 5129、EBECRYL 4842、EBECRYL 210、EBECRYL 4827、EBECRYL 6700、EBECRYL 220、EBECRYL 2220、KRM7735、KRM-8295（いずれもダイセル・オルネクス社製）、アートレジンUN-9000H、アートレジンUN-9000A、アートレジンUN-7100、アートレジンUN-1255、アートレジンUN-330、アートレジンUN-3320HB、アートレジンUN-1200TPK、アートレジンSH-500B（いずれも根上工業社製）、U-2HA、U-2PHA、U-3HA、U-4HA、U-6H、U-6LPA、U-6HA、U-10H、U-15HA、U-122A、U-122P、U-108、U-108A、U-324A、U-340A、U-340P、U-1084A、U-2061BA、UA-340P、UA-4100、UA-4000、UA-4200、UA-4400、UA-5201P、UA-7100、UA-7200、UA-W2A（いずれも新中村化学工業社製）、AI-600、AH-600、AT-600、UA-101I、UA-101T、UA-306H、UA-306I、UA-306T（いずれも共栄社化学社製）等が挙げられる。

[0067] また、上述した以外のその他のラジカル重合性化合物も適宜使用することができる。

上記その他のラジカル重合性化合物としては、例えば、N，N-ジメチル（メタ）アクリルアミド、N-（メタ）アクリロイルモルホリン、N-ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミド、N，N-ジエチル（メタ）アクリルアミド、N-イソプロピル（メタ）アクリルアミド、N，N-ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド等の（メタ）アクリルアミド化合物、スチレン、 α -メチルスチレン、N-ビニル-2-ピロリドン、N-ビニル- ϵ -カプロラクタム等のビニル化合物等が挙げられる。

[0068] 上記ラジカル重合性化合物は、硬化性を調整する等の観点から、単官能ラジカル重合性化合物と多官能ラジカル重合性化合物とを含有することが好ましい。上記単官能ラジカル重合性化合物と上記多官能ラジカル重合性化合物とを含有することにより、得られる接着剤組成物が硬化性及びタック性により優れるものとなる。なかでも、上記多官能ラジカル重合性化合物としてウレタン（メタ）アクリレートを上記単官能ラジカル重合性化合物と組み合わせる用いることが好ましい。また、上記多官能ラジカル重合性化合物は、2官能又は3官能であることが好ましく、2官能であることがより好ましい。

[0069] 上記ラジカル重合性化合物が、上記単官能ラジカル重合性化合物と上記多官能ラジカル重合性化合物とを含有する場合、上記多官能ラジカル重合性化合物の含有量は、上記単官能ラジカル重合性化合物と上記多官能ラジカル重合性化合物との合計100重量部に対して、好ましい下限が2重量部、好ましい上限が45重量部である。上記多官能ラジカル重合性化合物の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が硬化性及びタック性により優れるものとなる。上記多官能ラジカル重合性化合物の含有量のより好ましい下限は5重量部、より好ましい上限は35重量部である。

[0070] 本発明の接着剤組成物100重量部中における上記ラジカル重合性化合物の含有量の好ましい下限は10重量部、好ましい上限は80重量部である。上記ラジカル重合性化合物の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物に光硬化性と湿気硬化性との両方により優れるものとなる。上記ラジカル重合性化合物の含有量のより好ましい下限は30重量部、より好ましい上限は60重量部である。

[0071] 上記光ラジカル重合開始剤としては、例えば、ベンゾフェノン系化合物、アセトフェノン系化合物、アシルフォスフィンオキサイド系化合物、チタノセン系化合物、オキシムエステル系化合物、ベンゾインエーテル系化合物、チオキサントン等が挙げられる。

[0072] 上記光ラジカル重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、IRGACURE 184、IRGACURE 369、IRGACURE 379

、IRGACURE 651、IRGACURE 784、IRGACURE 819、IRGACURE 907、IRGACURE 2959、IRGACURE OXE01、ルシリンTPO（いずれもBASF社製）、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル（いずれも東京化成工業社製）等が挙げられる。

[0073] 上記光ラジカル重合開始剤の含有量は、上記ラジカル重合性化合物100重量部に対して、好ましい下限が0.01重量部、好ましい上限が10重量部である。上記光ラジカル重合開始剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が光硬化性及び保存安定性により優れるものとなる。上記光ラジカル重合開始剤の含有量のより好ましい下限は0.1重量部、より好ましい上限は5重量部である。

[0074] 本発明の接着剤組成物は、充填剤を含有することが好ましい。

上記充填剤を含有することにより、本発明の接着剤組成物は、好適なチクソ性を有するものとなり、塗布後の形状を十分に保持することができる。

[0075] 上記充填剤は、一次粒子径の好ましい下限が1nm、好ましい上限が50nmである。上記充填剤の一次粒子径がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が塗布性及び塗布後の形状保持性により優れるものとなる。上記充填剤の一次粒子径のより好ましい下限は5nm、より好ましい上限は30nm、更に好ましい下限は10nm、更に好ましい上限は20nmである。

なお、上記充填剤の一次粒子径は、NICOMP 380ZLS（PARTICLE SIZING SYSTEMS社製）を用いて、上記充填剤を溶媒（水、有機溶媒等）に分散させて測定することができる。

また、上記充填剤は、本発明の接着剤組成物中において二次粒子（一次粒子が複数集まったもの）として存在する場合があります、このような二次粒子の粒子径の好ましい下限は5nm、好ましい上限は500nm、より好ましい下限は10nm、より好ましい上限は100nmである。上記充填剤の二次粒子の粒子径は、本発明の接着剤組成物又はその硬化物を、透過型電子顕微鏡

(TEM)を用いて観察することにより測定することができる。

[0076] 上記充填剤としては、無機充填剤が好ましく、例えば、シリカ、タルク、酸化チタン、酸化亜鉛、炭酸カルシウム等が挙げられる。なかでも、得られる接着剤組成物が紫外線透過性に優れるものとなることから、シリカが好ましい。これらの充填剤は、単独で用いられてもよいし、2種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0077] 上記充填剤は、疎水性表面処理がなされていることが好ましい。上記疎水性表面処理により、得られる接着剤組成物が塗布後の形状保持性により優れるものとなる。

上記疎水性表面処理としては、シリル化処理、アルキル化処理、エポキシ化処理等が挙げられる。なかでも、形状保持性を向上させる効果に優れることから、シリル化処理が好ましく、トリメチルシリル化処理がより好ましい。

[0078] 上記充填剤を疎水性表面処理する方法としては、例えば、シランカップリング剤等の表面処理剤を用いて、充填剤の表面を処理する方法等が挙げられる。

具体的には例えば、上記トリメチルシリル化処理シリカは、シリカをゾルゲル法等の方法で合成し、シリカを流動させた状態でヘキサメチルジシラザンを噴霧する方法や、アルコール、トルエン等の有機溶媒中にシリカとヘキサメチルジシラザンと水とを加えた後、水と有機溶媒とをエバポレーターで蒸発乾燥させる方法等により作製することができる。

[0079] 本発明の接着剤組成物100重量部中における上記充填剤の含有量の好ましい下限は1重量部、好ましい上限は20重量部である。上記充填剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が塗布性及び塗布後の形状保持性により優れるものとなる。上記充填剤の含有量のより好ましい下限は2重量部、より好ましい上限は15重量部であり、更に好ましい下限は3重量部、更に好ましい上限は10重量部、特に好ましい下限は4重量部である。

[0080] 本発明の接着剤組成物は、遮光剤を含有してもよい。

上記遮光剤を含有することにより、本発明の接着剤組成物は、遮光性に優れるものとなり、例えば、表示素子に用いた場合に光漏れを防止することができる。また、上記遮光剤を配合した本発明の接着剤組成物を用いて製造した表示素子は、接着剤組成物が十分な遮光性を有するため、光の漏れ出しがなく高いコントラストを有し、優れた画像表示品質を有するものとなる。

なお、本明細書において、上記「遮光剤」は、可視光領域の光を透過させ難い能力を有する材料を意味する。

[0081] 上記遮光剤としては、例えば、酸化鉄、チタンブラック、アニリンブラック、シアニンブラック、フラーレン、カーボンブラック、樹脂被覆型カーボンブラック等が挙げられる。また、上記遮光剤は、黒色を呈するものでなくてもよく、可視光領域の光を透過させ難い能力を有する材料であれば、シリカ、タルク、酸化チタン等、充填剤として挙げた材料等も上記遮光剤に含まれる。なかでも、チタンブラックが好ましい。

[0082] 上記チタンブラックは、波長300～800nmの光に対する平均透過率と比較して、紫外線領域付近、特に波長370～450nmの光に対する透過率が高くなる物質である。

即ち、上記チタンブラックは、可視光領域の波長の光を十分に遮蔽することで本発明の接着剤組成物に遮光性を付与する一方、紫外線領域付近の波長の光は透過させる性質を有する遮光剤である。従って、光ラジカル重合開始剤として、上記チタンブラックの透過率の高くなる波長（370～450nm）の光によって反応を開始可能なものを用いることで、本発明の接着剤組成物の光硬化性をより増大させることができる。また一方で、本発明の接着剤組成物に含有される遮光剤としては、絶縁性の高い物質が好ましく、絶縁性の高い遮光剤としてもチタンブラックが好適である。

上記チタンブラックは、光学濃度（OD値）が、3以上であることが好ましく、4以上であることがより好ましい。また、上記チタンブラックは、黒色度（L値）が9以上であることが好ましく、11以上であることがより好ましい。上記チタンブラックの遮光性は高ければ高いほど良く、上記チタンブ

ラックのOD値に好ましい上限は特に無いが、通常は5以下となる。

[0083] 上記チタンブラックは、表面処理されていないものでも十分な効果を発揮するが、表面がカップリング剤等の有機成分で処理されているもの、酸化ケイ素、酸化チタン、酸化ゲルマニウム、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、酸化マグネシウム等の無機成分で被覆されているもの等、表面処理されたチタンブラックを用いることもできる。なかでも、有機成分で処理されているものは、より絶縁性を向上できる点で好ましい。

[0084] 上記チタンブラックのうち市販されているものとしては、例えば、12S、13M、13M-C、13R-N（いずれも三菱マテリアル社製）、ティラックD（赤穂化成社製）等が挙げられる。

[0085] 上記チタンブラックの比表面積の好ましい下限は $5\text{ m}^2/\text{g}$ 、好ましい上限は $40\text{ m}^2/\text{g}$ であり、より好ましい下限は $10\text{ m}^2/\text{g}$ 、より好ましい上限は $25\text{ m}^2/\text{g}$ である。

また、上記チタンブラックのシート抵抗の好ましい下限は、樹脂と混合された場合（70%配合）において、 $10^9\Omega/\square$ であり、より好ましい下限は $10^{11}\Omega/\square$ である。

[0086] 本発明の接着剤組成物において、上記遮光剤の一次粒子径は、表示素子の基板間の距離以下等、用途に応じて適宜選択されるが、好ましい下限は30nm、好ましい上限は500nmである。上記遮光剤の一次粒子径がこの範囲であることにより、粘度及びチクソ性が大きく増大することなく、得られる接着剤組成物が基板への塗布性及び作業性により優れるものとなる。上記遮光剤の一次粒子径のより好ましい下限は50nm、より好ましい上限は200nmである。

なお、上記遮光剤の一次粒子径は、上記充填剤の一次粒子径と同様にして測定することができる。

[0087] 本発明の接着剤組成物100重量部中における上記遮光剤の含有量の好ましい下限は0.05重量部、好ましい上限は10重量部である。上記遮光剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる接着剤組成物が、優れた描画

性、基板等に対する接着性、及び、硬化後の強度を維持したまま、遮光性により優れるものとなる。上記遮光剤の含有量のより好ましい下限は0.1重量部、より好ましい上限は2重量部、更に好ましい上限は1重量部である。

[0088] 本発明の接着剤組成物は、更に、必要に応じて、着色剤、イオン液体、溶剤、金属含有粒子、反応性希釈剤等の添加剤を含有してもよい。

[0089] 本発明の接着剤組成物を製造する方法としては、例えば、ホモディスペー、ホモミキサー、万能ミキサー、プラネタリーミキサー、ニーダー、3本ロール等の混合機を用いて、湿気硬化型樹脂と、ワックスと、必要に応じて添加するラジカル重合性化合物及び光ラジカル重合開始剤や添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

[0090] 本発明の接着剤組成物は、含有する水分量が100ppm以下であることが好ましい。上記水分量が100ppm以下であることにより、保存中の上記湿気硬化型樹脂と水分との反応を抑制することができ、接着剤組成物がより保存安定性に優れるものとなる。上記水分量は80ppm以下であることがより好ましい。

なお、上記水分量は、カールフィッシャー水分測定装置により測定することができる。

[0091] 本発明の接着剤組成物における、コーンプレート型粘度計を用いて25℃、1rpmの条件で測定した粘度の好ましい下限は50Pa・s、好ましい上限は1000Pa・sである。上記粘度がこの範囲であることにより、接着剤組成物を基板等の被着体に塗布する際の作業性により優れるものとなる。上記粘度のより好ましい下限は80Pa・s、より好ましい上限は500Pa・s、更に好ましい上限は400Pa・sである。

なお、本発明の接着剤組成物の粘度が高すぎる場合は、塗布時に加温することで塗布性を向上させることができる。

[0092] 本発明の接着剤組成物のチクソトロピックインデックスの好ましい下限は1.3、好ましい上限は5.0である。上記チクソトロピックインデックスがこの範囲であることにより、接着剤組成物を基板等の被着体に塗布する際の

作業性により優れるものとなる。上記チクソトロピックインデックスのより好ましい下限は1.5、より好ましい上限は4.0である。

なお、本明細書において上記チクソトロピックインデックスとは、コーンプレート型粘度計を用いて25℃、1rpmの条件で測定した粘度を、コーンプレート型粘度計を用いて25℃、10rpmの条件で測定した粘度で除した値を意味する。

[0093] 本発明の接着剤組成物は、硬化後の1mm厚みの硬化物の光学濃度（OD値）が1以上であることが好ましい。上記OD値が1以上であることにより、遮光性に優れ、表示素子に用いた場合に光の漏れ出しを防止し、高いコントラストを得ることができる。上記OD値は1.5以上であることがより好ましい。

上記OD値は高いほど良いが、上記OD値を高くするために遮光剤を多く配合しすぎると、増粘による作業性の低下等が生じることから、遮光剤の配合量とのバランスをとるため、上記硬化体のOD値の好ましい上限は4である。

なお、上記接着剤組成物の硬化後のOD値は、光学濃度計を用いて測定することができる。

[0094] 本発明の接着剤組成物は、硬化後、リワーク時の加熱により容易に剥離することができる。

上記リワーク時の加熱温度の好ましい下限は60℃、好ましい上限は120℃である。上記加熱温度がこの範囲であることにより、電子部品等を損傷させることなく容易に剥離することができる。上記リワーク時の加熱温度のより好ましい下限は75℃、より好ましい上限は110℃である。

[0095] 本発明の接着剤組成物の硬化体もまた、本発明の1つである。

硬化前の本発明の接着剤組成物に湿気硬化型ウレタン樹脂が含まれている場合、本発明の硬化体は、ウレア結合及び／又はウレタン結合を有する。本発明の硬化体に含まれる成分は、本発明の接着剤組成物に含有される成分及び該成分が本発明の接着剤組成物の硬化にあたり化学反応等により変化した成

分である。

[0096] 本発明の硬化体は、硬化体中において上記ワックスが上述したワックス微粒子で存在している場合、樹脂とワックスの接触面積が大きくなり、リワーク性により優れるものとなるため好適である。

上記硬化体中における上記ワックス微粒子の粒子径は小さいほどよく、好ましい上限は $300\mu\text{m}$ である。上記ワックス微粒子の粒子径が $300\mu\text{m}$ 以下であることにより、リワーク性により優れるものとなる。上記硬化体中における上記ワックス微粒子の粒子径のより好ましい上限は $250\mu\text{m}$ であり、更に好ましい上限は $100\mu\text{m}$ であり、更に好ましい上限は $50\mu\text{m}$ であり、特に好ましい上限は $10\mu\text{m}$ である。

また、上記硬化体中における上記ワックス微粒子の粒子径の好ましい下限は特にないが、実質的な下限は $0.1\mu\text{m}$ である。

なお、上記硬化体中における上記ワックス微粒子の粒子径は、硬化体の切断面を走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、レーザー顕微鏡等を用いて観察することにより測定することができる。好ましい測定方法としては、クライオミクロトームを用いて硬化体の断面を露出させ、該断面を走査型電子顕微鏡を用いて観察し、無作為に選んだ50個の粒子の粒子径を測定し、平均値を算出する方法が挙げられる。

[0097] 本発明の硬化体は、 60°C 以上 130°C 以下の温度のうち、貯蔵弾性率の変化割合（（高温側の貯蔵弾性率）／（低温側の貯蔵弾性率））が最も大きい温度間隔 10°C における該貯蔵弾性率の変化割合が 0.6 以下であることが好ましい。上記貯蔵弾性率の変化割合が 0.6 以下であることにより、本発明の硬化体は、接着時には接着安定性に優れ、リワーク時には接着力が小さくなるためリワーク作業性により優れるものとなる。上記貯蔵弾性率の変化割合のより好ましい上限は 0.55 、更に好ましい上限は 0.45 である。

[0098] 本発明の硬化体は、示差走査熱量測定における硬化体の吸熱のピークトップでの単位時間当たりのエネルギー量をA、Aの測定温度での湿気硬化型樹脂の単位時間当たりのエネルギー量をB、Aの測定温度でのワックスの単位時

間当たりのエネルギー量をC、硬化体中のワックスの含有量をX重量%とした場合、下記式を満たすことが好ましい。

$$(A - B) / (C \times X / 100) \geq 50$$

上記式を満たすことにより、本発明の硬化体は、リワーク性により優れるものとなる。

$(A - B) / (C \times X / 100)$ のより好ましい下限は60、更に好ましい下限は70である。

[0099] 本発明の接着剤組成物の硬化体を有する電子部品もまた、本発明の1つである。本発明の接着剤組成物は、特に小型化を必要とする電子部品において、上述した優れた効果を奏する。本発明の電子部品において、本発明の接着剤組成物は、主に被着体の接着に用いられる。

[0100] 本発明の接着剤組成物を用いて接着することが可能な被着体としては、金属、ガラス、プラスチック等の各種の被着体が挙げられる。

上記被着体の形状としては、例えば、フィルム状、シート状、板状、パネル状、トレイ状、ロッド（棒状体）状、箱体状、筐体状等が挙げられる。

[0101] 上記金属としては、例えば、鉄鋼、ステンレス鋼、アルミニウム、銅、ニッケル、クロム又はその合金等が挙げられる。

上記ガラスとしては、例えば、アルカリガラス、無アルカリガラス、石英ガラス等が挙げられる。

上記プラスチックとしては、例えば、高密度ポリエチレン、超高分子量ポリエチレン、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、エチレンプロピレン共重合体樹脂等のポリオレフィン系樹脂、ナイロン6（N6）、ナイロン66（N66）、ナイロン46（N46）、ナイロン11（N11）、ナイロン12（N12）、ナイロン610（N610）、ナイロン612（N612）、ナイロン6／66共重合体（N6／66）、ナイロン6／66／610共重合体（N6／66／610）、ナイロンMXD6（MXD6）、ナイロン6T、ナイロン6／6T共重合体、ナイロン66／PP共重合体、ナイロン66／PPS共重合体等のポリアミド系樹

脂、ポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンイソフタレート（PEI）、PET／PEI共重合体、ポリアリレート（PAR）、ポリブチレンナフタレート（PBN）、液晶ポリエステル、ポリオキシアルキレンジイミドジ酸／ポリブチレンテレフタレート共重合体等の芳香族ポリエステル系樹脂、ポリアクリロニトリル（PAN）、ポリメタクリロニトリル、アクリロニトリル／スチレン共重合体（AS）、メタクリロニトリル／スチレン共重合体、メタクリロニトリル／スチレン／ブタジエン共重合体等のポリニトリル系樹脂、ポリカーボネート、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、ポリメタクリル酸エチル等のポリメタクリレート系樹脂、エチレン／酢酸ビニル共重合体（EVA）、ポリビニルアルコール（PVA）、ビニルアルコール／エチレン共重合体（EVOH）、ポリ塩化ビニリデン（PVDC）、ポリ塩化ビニル（PVC）、塩化ビニル／塩化ビニリデン共重合体、塩化ビニリデン／メチルアクリレート共重合体等のポリビニル系樹脂等が挙げられる。

[0102] また、上記被着体としては、表面に金属メッキ層を有する複合材料も挙げられ、該複合材料のメッキの下地材としては、例えば、上述した、金属、ガラス、プラスチック等が挙げられる。

更に、上記被着体としては、金属表面を不動態化処理することにより不動態皮膜を形成した材料も挙げられ、該不動態化処理としては、例えば、加熱処理、陽極酸化処理等が挙げられる。特に、国際アルミニウム合金名が6000番台の材質であるアルミニウム合金等の場合は、上記不動態化処理として硫酸アルマイト処理又はリン酸アルマイト処理を行うことで、接着性を向上させることができる。

[0103] また、第1の基板、第2の基板、及び、本発明の接着剤組成物の硬化体を有し、上記第1の基板の少なくとも一部は、上記第2の基板の少なくとも一部と上記接着剤組成物の硬化体を介して接合されている組立部品もまた、本発明の1つである。

上記第1の基板及び上記第2の基板は、それぞれ少なくとも1つの電子部品

を有することが好ましい。

発明の効果

[0104] 本発明によれば、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物を提供することができる。また、本発明によれば、該接着剤組成物の硬化体、並びに、該接着剤組成物の硬化体を有する電子部品及び組立部品を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0105] [図1] (a) 接着層の厚みが小さい場合、及び、(b) 大きい場合における、本発明の接着剤組成物による被着体の接着状態を示す模式図である。

[図2] (a) は、リワーク性評価用サンプルを上から見た場合を示す模式図であり、(b) は、リワーク性評価用サンプルを横から見た場合を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0106] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0107] (合成例1 (湿気硬化型ウレタン樹脂の作製))

ポリオール化合物として100重量部のポリテトラメチレンエーテルグリコール(三菱化学社製、「PTMG-2000」と、0.01重量部のジブチル錫ジラウレートとを500mL容のセパラブルフラスコに入れ、真空下(20mmHg以下)、100℃で30分間攪拌し、混合した。その後常圧とし、ポリイソシアネート化合物としてジフェニルメタンジイソシアネート(日曹商事社製、「Pure MDI」)26.5重量部を入れ、80℃で3時間攪拌して反応させ、湿気硬化型ウレタン樹脂(重量平均分子量2700)を得た。

[0108] (実施例1～6、比較例1)

表1に記載された配合比に従い、各材料を、遊星式攪拌装置(シンキー社製、「あわとり練太郎」)にて攪拌した後、セラミック3本ロールにて均一に混合して実施例1～6、比較例1の接着剤組成物を得た。

[0109] <評価>

実施例及び比較例で得られた各接着剤組成物について以下の評価を行った。
結果を表1に示した。

[0110] (リワーク性)

実施例及び比較例で得られた各接着剤組成物を、ディスペンス装置を用いて、ポリカーボネート基板に約2mmの幅で塗布した。その後、UV-LED（波長365nm）を用いて接着剤組成物に紫外線を1000mJ/cm²照射し、ポリカーボネート基板にガラス板を貼り合わせ、20gの重りを置き、一晩放置することにより湿気硬化させてリワーク性評価用サンプルを得た。

図2にリワーク性評価用サンプルを上から見た場合を示す模式図（図2（a））、及び、リワーク性評価用サンプルを横から見た場合を示す模式図（図2（b））を示した。

作製したリワーク性評価用サンプルを、25℃及び100℃において引張り試験機（島津製作所社製、「Ez-Graph」）を用いて、剪断方向に5mm/secの速度で引張り、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれる際の強度（接着強度）を測定した。その結果、25℃での接着強度に対する100℃での接着強度の割合（（100℃での接着強度）／（25℃での接着強度））が0.3以下であった場合を「◎」、0.3を超え0.5以下であった場合を「○」、0.5を超え0.7以下であった場合を「△」、0.7を超えた場合を「×」としてリワーク性を評価した。

[0111] (貯蔵弾性率の変化割合)

実施例及び比較例で得られた各接着剤組成物を、幅3mm、長さ30mm、厚み1mmのテフロン（登録商標）型に流し込み、UV-LED（波長365nm）を用いて、紫外線を1000mJ/cm²照射することにより光硬化させた後、3日間放置することにより湿気硬化させて硬化体を得た。

得られた硬化体を、動的粘弾性測定装置（IT計測制御社製、「DVA-200」）を用いて、変形モード：引っ張り、設定ひずみ：1%、測定周波数

：1 Hz、昇温速度：5℃/minの条件で、40℃～150℃の範囲で動的粘弾性を測定し、各温度における貯蔵弾性率を求めた。得られた貯蔵弾性率について、60℃以上130℃以下の温度のうち、貯蔵弾性率の変化量が最も大きい温度間隔10℃における該貯蔵弾性率の変化割合を下記式により算出した。

貯蔵弾性率の変化割合＝（高温側の貯蔵弾性率）／（低温側の貯蔵弾性率）

[0112] （熱量測定におけるワックスの影響度）

上記「（貯蔵弾性率の変化割合）」と同様にして得られた各接着剤組成物の硬化体、及び、各接着剤組成物に用いたワックス単体について、示差走査熱量測定装置（TA Instruments社製、「DSC Q100」）を用いて、温度変化に伴う熱量変化を測定した。硬化体の吸熱のピークトップでの単位時間当たりのエネルギー量をA、Aの測定温度での湿気硬化型樹脂の単位時間当たりのエネルギー量をB、Aの測定温度でのワックスの単位時間当たりのエネルギー量をC、硬化体中のワックスの含有量をX重量％として、下記式により熱量測定におけるワックスの影響度を算出した。

熱量測定におけるワックスの影響度＝（A－B）／（C×X／100）

なお、上記熱量変化の測定は、下記測定条件下で実施し、得られた測定値をそれぞれA、B、及び、Cとした。

<測定条件>

雰囲気：窒素（流量40mL/min）

昇温速度：10℃/min

サンプル量：10mg

なお、比較例1で得られた接着剤組成物は、ワックスを含有しないものであるため本評価は行わなかった。

[0113]

[表1]

		実施例						比較例
		1	2	3	4	5	6	
組成 (重量部)	湿気硬化型樹脂	湿気硬化型ウレタン樹脂						1
	ラジカル 重合性化合物	ウレタンアクリレート (ダイセル・オルネクス社製、「EBECRYL8411」、2官能)						47
		フェノキシエチルアクリレート (共栄社化学社製、「ライトアクリレートPO-A」、単官能)						9
		ラウリルアクリレート (共栄社化学社製、「ライトアクリレートL-AJ」、単官能)						19
		2-ベンジル-2-ジメチルアミノ -1-(4-モルフォリノフェニル)-ブタノン-1 (BASF社製、「IRGACURE369」)						19
	光ラジカル 重合開始剤	FNP0090(微粒子状) (日本精細社製、融点97℃、平均粒子径250μm)						1
	ワックス	C80(ペレット状) (Sasol社製、融点86℃)						—
		SPRAY105(微粒子状) (Sasol社製、融点111℃、平均粒子径6μm)						—
		トリメチルシリル処理シリカ (日本アエロジル社製、「R812」、一次粒子径7nm)						5
	遮光剤	チタンブラック (三菱マテリアル社製、「13M-C」)						—
評価	リワーク性						○	×
	貯蔵弾性率の変化割合						0.33 0.55 0.20 0.39 0.33 0.33	0.94
	熱量測定におけるワックスの影響度						90 81 95 52 90 86	—

産業上の利用可能性

[0114] 本発明によれば、接着性に優れ、かつ、低温でのリワークが容易な接着剤組成物を提供することができる。また、本発明によれば、該接着剤組成物の硬化体、並びに、該接着剤組成物の硬化体を有する電子部品及び組立部品を提供することができる。

符号の説明

- [0115] 1 被着体
2 接着剤組成物
3 接着層の厚み
4 単位面積
5 ワックス
6 ポリカーボネート基板
7 接着剤組成物
8 ガラス板

請求の範囲

- [請求項1] 湿気硬化型樹脂とワックスとを含有することを特徴とする接着剤組成物。
- [請求項2] 前記ワックスは、融点が50℃以上140℃以下であることを特徴とする請求項1記載の接着剤組成物。
- [請求項3] 前記接着剤組成物100重量部中における前記ワックスの含有量が1重量部以上50重量部以下であることを特徴とする請求項1又は2記載の接着剤組成物。
- [請求項4] 前記ワックスが前記接着剤組成物中に微粒子で存在することを特徴とする請求項1、2又は3記載の接着剤組成物。
- [請求項5] 前記微粒子の粒子径が300μm以下であることを特徴とする請求項4記載の接着剤組成物。
- [請求項6] 前記湿気硬化型樹脂は、湿気硬化型ウレタン樹脂であることを特徴とする請求項1、2、3、4又は5記載の接着剤組成物。
- [請求項7] ラジカル重合性化合物及び光ラジカル重合開始剤を含有することを特徴とする請求項1、2、3、4、5又は6記載の接着剤組成物。
- [請求項8] 請求項4、5、6又は7記載の接着剤組成物の硬化体であって、前記硬化体中における前記微粒子の粒子径が300μm以下であることを特徴とする硬化体。
- [請求項9] 請求項1、2、3、4、5、6又は7記載の接着剤組成物の硬化体であって、60℃以上130℃以下の温度のうち、貯蔵弾性率の変化割合（（高温側の貯蔵弾性率）／（低温側の貯蔵弾性率））が最も大きい温度間隔10℃における該貯蔵弾性率の変化割合が0.6以下であることを特徴とする硬化体。
- [請求項10] 請求項1、2、3、4、5、6又は7記載の接着剤組成物の硬化体であって、示差走査熱量測定における硬化体の吸熱のピークトップでの単位時間

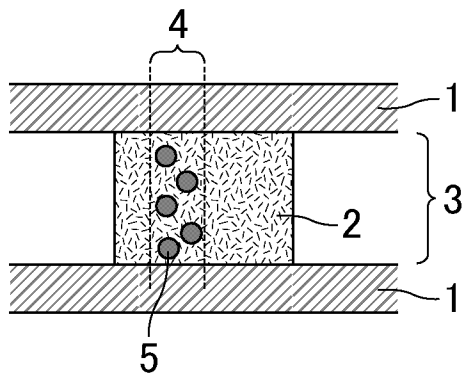
当たりのエネルギー量をA、Aの測定温度での湿気硬化型樹脂の単位時間当たりのエネルギー量をB、Aの測定温度でのワックスの単位時間当たりのエネルギー量をC、硬化体中のワックスの含有量をX重量%とした場合、下記式を満たすことを特徴とする硬化体。

$$(A - B) / (C \times X / 100) \geq 50$$

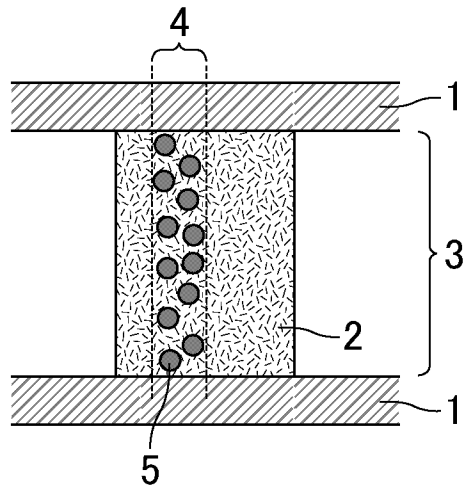
- [請求項11] 請求項1、2、3、4、5、6又は7記載の接着剤組成物の硬化体を有することを特徴とする電子部品。
- [請求項12] 第1の基板、第2の基板、及び、請求項1、2、3、4、5、6又は7記載の接着剤組成物の硬化体を有し、
前記第1の基板の少なくとも一部は、前記第2の基板の少なくとも一部と前記接着剤組成物の硬化体を介して接合されていることを特徴とする組立部品。
- [請求項13] 前記第1の基板及び前記第2の基板は、それぞれ少なくとも1つの電子部品を有することを特徴とする請求項12記載の組立部品。

[図1]

(a)

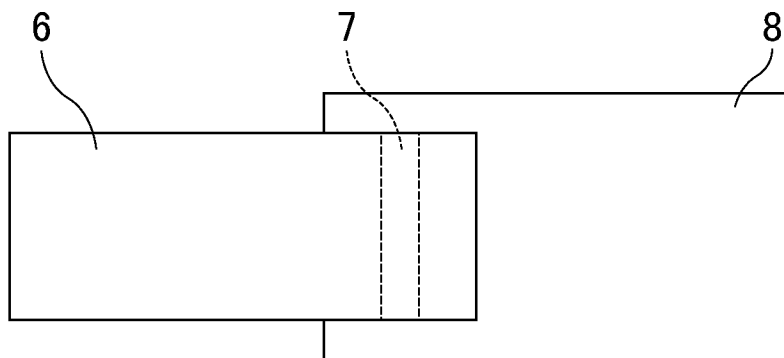


(b)

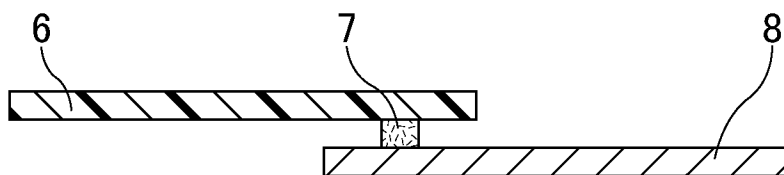


[図2]

(a)



(b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/028837

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J201/00(2006.01)i, C09J4/00(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J175/04(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)

C09J201/00, C09J4/00, C09J11/06, C09J175/04, C08L75/04

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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 A	JP 2003-286465 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 10 October 2003 (10.10.2003), claims; paragraphs [0002], [0005], [0010] to [0021], [0023] to [0026]; table 1; examples 1 to 6 (Family: none)	1-6, 8-13 7
X A	JP 2004-051701 A (Konishi Co., Ltd.), 19 February 2004 (19.02.2004), claims; paragraphs [0001], [0043], [0048] to [0050]; tables 1 to 3; examples 1 to 6 (Family: none)	1-5, 8-13 6-7

☒ 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
15 September 2017 (15.09.17)

Date of mailing of the international search report
26 September 2017 (26.09.17)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/028837

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2008-115328 A (Konishi Co., Ltd.), 22 May 2008 (22.05.2008), claims; paragraphs [0002], [0042] to [0046], [0048] to [0049], [0051] to [0076]; tables 1 to 2; paragraph [0092]; examples 1 to 13 (Family: none)	1-6, 8-13 7
A	JP 2015-227395 A (Soken Chemical & Engineering Co., Ltd.), 17 December 2015 (17.12.2015), paragraph [0132] & WO 2015/182369 A1 & CN 106414643 A & KR 10-2017-0013858 A	1-13
A	WO 2014/098109 A1 (Tokyo Printing Ink Mfg. Co., Ltd.), 26 June 2014 (26.06.2014), paragraph [0031] & EP 002937394 A1 paragraph [0034]	1-13
A	JP 2012-153835 A (Kaneka Corp.), 16 August 2012 (16.08.2012), claims; example 1 (Family: none)	1-13
A	WO 2016/104787 A1 (Cemedine Co., Ltd.), 30 June 2016 (30.06.2016), claims; examples 1 to 15 (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C09J201/00(2006.01)i, C09J4/00(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J175/04(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 (IPC))

Int.Cl. C09J201/00, C09J4/00, C09J11/06, C09J175/04, C08L75/04

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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 A	JP 2003-286465 A (三井化学株式会社) 2003.10.10, 【特許請求の範囲】、【0002】、【0005】、【0010】 - 【0021】、【0023】 - 【0026】、【表1】、実施例1-6 (ファミリーなし)	1-6, 8-13 7
X A	JP 2004-051701 A (コニシ株式会社) 2004.02.19, 【特許請求の範囲】、【0001】、【0043】、【0048】 - 【0050】、【表1】 - 【表3】、実施例1-6 (ファミリーなし)	1-5, 8-13 6-7

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

15.09.2017

国際調査報告の発送日

26.09.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

上條 のぶよ

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

4 V

6288

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 2008-115328 A (コニシ株式会社) 2008.05.22, 【特許請求の範囲】、【0002】、【0042】－【0046】、【0048】－【0049】、【0051】－【0076】、【表1】－【表2】、【0092】、実施例1－13 (ファミリーなし)	1-6, 8-13 7
A	JP 2015-227395 A (綜研化学株式会社) 2015.12.17, 【0132】 & WO 2015/182369 A1 & CN 106414643 A & KR 10-2017-0013858 A	1-13
A	WO 2014/098109 A1 (東京インキ株式会社) 2014.06.26, [0031] & EP 002937394 A1, [0034]	1-13
A	JP 2012-153835 A (株式会社カネカ) 2012.08.16, 【特許請求の範囲】、実施例1 (ファミリーなし)	1-13
A	WO 2016/104787 A1 (セメダイン株式会社) 2016.06.30, 請求の範囲、実施例1－15 (ファミリーなし)	1-13