

(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
2015 年 12 月 17 日(17.12.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/190499 A1

- (51) 国際特許分類:
C08F 2/44 (2006.01) *C08L 75/04* (2006.01)
C08K 5/5415 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/066666
- (22) 国際出願日: 2015 年 6 月 10 日(10.06.2015)
- (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 2014-120794 2014 年 6 月 11 日(11.06.2014) 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: 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). 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).
- (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 3 6 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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: PHOTO/MOISTURE-CURABLE RESIN COMPOSITION, ADHESIVE FOR ELECTRONIC COMPONENT, AND ADHESIVE FOR DISPLAY ELEMENT

(54) 発明の名称: 光湿気硬化型樹脂組成物、電子部品用接着剤、及び、表示素子用接着剤

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a photo/moisture curable resin composition having excellent adhesion and reliability in a high-temperature environment or a high-temperature high-humidity environment. The purpose of the present invention is also to provide an adhesive for an electronic component and an adhesive for a display element, the adhesives being obtained using the photo/moisture-curable resin composition. The present invention is a photo/moisture-curable resin composition containing a radical polymerizable compound, a moisture-curable urethane resin, a photoradical polymerization initiator, and a coupling agent.

(57) 要約: 本発明は、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れる光湿気硬化型樹脂組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤及び表示素子用接着剤を提供することを目的とする。本発明は、ラジカル重合性化合物と、湿気硬化型ウレタン樹脂と、光ラジカル重合開始剤と、カップリング剤とを含有する光湿気硬化型樹脂組成物である。



WO 2015/190499 A1

明 細 書

発明の名称：

光湿気硬化型樹脂組成物、電子部品用接着剤、及び、表示素子用接着剤
技術分野

[0001] 本発明は、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れる光湿気硬化型樹脂組成物に関する。また、本発明は、該光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤及び表示素子用接着剤に関する。

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、液晶表示素子や有機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、液晶や発光層の封止、基板や光学フィルムや保護フィルムや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。

ところで、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り、小型化の手法として、画像表示部を狭額縁化することが行われている（以下、狭額縁設計ともいう）。しかしながら、狭額縁設計においては、充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充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や、

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、特許文献2には、分子中に少なくとも1つのイソシアネート基と少なくとも1つの（メタ）アクリロイル基とを有するウレタンプレポリマーを含有する光湿気硬化型樹脂組成物を用い、光硬化と湿気硬化とを併用する方法が開示されている。しかしながら、特許文献2に開示されているような光湿気硬化型樹脂組成物を用いた場合、基板等の被着体を接着した際の接着性や、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性（特に耐クリープ性）が不十分となることがあった。

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2008-274131号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] 本発明は、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れた光湿気硬化型樹脂組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤及び表示素子用接着剤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

- [0007] 本発明は、ラジカル重合性化合物と、湿気硬化型ウレタン樹脂と、光ラジカ

ル重合開始剤と、カップリング剤とを含有する光湿気硬化型樹脂組成物である。

以下に本発明を詳述する。

[0008] 本発明者らは、驚くべきことに、カップリング剤を、ラジカル重合性化合物と湿気硬化型ウレタン樹脂とを含有する光湿気硬化型樹脂組成物に配合することにより、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れる光湿気硬化型樹脂組成物を得ることができることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、カップリング剤を含有する。

上記カップリング剤は、得られる光湿気硬化型樹脂組成物の接着性や耐クリープ性を向上させる役割を有する。上記カップリング剤は、適量を超えた場合、湿気硬化型ウレタン樹脂の反応を阻害し、硬化物の弾性率を低下させ、十分な接着力を確保できないことがある。上記カップリング剤は、単に接着性を向上させるだけでなく、光湿気硬化型樹脂組成物における、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性、なかでも、高温高湿環境下における信頼性を向上させる点で、特に優れた効果を発揮する。

[0010] 上記カップリング剤は、ラジカル重合性化合物及び／又は湿気硬化型ウレタン樹脂と反応し得る反応性官能基を有することが好ましい。上記反応性官能基を有することにより、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物中に上記カップリング剤が取り込まれ、その結果、接着性や耐クリープ性が更に向上する。

[0011] 上記反応性官能基としては、例えば、（メタ）アクリロイル基等の不飽和二重結合を有する基、エポキシ基、イソシアネート基、チオール基、アミノ基等が挙げられる。なかでも、接着性や耐クリープ性を向上させる効果に優れることから、不飽和二重結合を有する基、エポキシ基、イソシアネート基が好ましい。

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

[0012] 上記カップリング剤としては、例えば、シランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、ジルコネート系カップリング剤等が挙げられる。なかでも、接着性や耐クリープ性を向上させる効果に特に優れることから、シランカップリング剤が好ましい。上記カップリング剤は、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。

[0013] 上記シランカップリング剤としては、例えば、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3-(メタ)アクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、3-(メタ)アクリロイルオキシプロピルトリエトキシシラン、3-(メタ)アクリロイルオキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-(メタ)アクリロイルオキシプロピルメチルジエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、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メチルジメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、3-イソシアネートプロピルメチルジエトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリエトキシシラン、3-メルカプトプロピルメチルジエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、n-プロピルトリメトキシシラン、n-プロピルトリエトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、1,6-ビス(トリメトキシ

リル) ヘキサン等が挙げられる。

[0014] 上記チタネート系カップリング剤としては、例えば、チタンジイソプロポキシビス(アセチルアセトネート)、チタンテトラアセチルアセトネート、チタンジイソプロポキシビス(エチルアセトアセテート)等が挙げられる。

[0015] 上記ジルコネート系カップリング剤としては、例えば、ジルコニウムテトラノルマルプロポキシド、シルコニウムテトラノルマルブトキシド、等が挙げられる。

[0016] 上記カップリング剤の含有量は、ラジカル重合性化合物と湿気硬化型ウレタン樹脂との合計100重量部に対して、好ましい下限が0.05重量部、好ましい上限が5重量部である。上記カップリング剤の含有量がこの範囲であることにより、接着性だけでなく、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性(特に高温高湿環境下における信頼性)を向上させる効果により優れるものとなる。また、上記カップリング剤の含有量が5重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が保存安定性に劣るものとなることがある。上記カップリング剤の含有量のより好ましい下限は0.5重量部、より好ましい上限は1.5重量部である。

[0017] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、ラジカル重合性化合物を含有する。
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基を有する化合物であれば特に限定されないが、ラジカル重合性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)アクリル」は、アクリル又はメタクリルを意味する。

[0018] 上記(メタ)アクリル化合物としては、例えば、(メタ)アクリル酸に水酸基を有する化合物を反応させることにより得られるエステル化合物、(メタ)アクリル酸とエポキシ化合物とを反応させることにより得られるエポキシ(メタ)アクリレート、イソシアネート化合物に水酸基を有する(メタ)ア

クリル酸誘導体を反応させることにより得られるウレタン（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）アクリレートの原料となるイソシアネート化合物のイソシアネート基は、全てウレタン結合の形成に用いられ、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。

[0019] 上記エステル化合物のうち単官能のものとしては、例えば、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、4-ヒドロキシブチル（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、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、イソオクチル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、2-メトキシエチル（メタ）アクリレート、メトキシエチレングリコール（メタ）アクリレート、2-エトキシエチル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、ベンジル（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、メトキシトリエチレングリコールアクリレート、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、メト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、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、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、*n*-オクチル（メタ）アクリレート、イソノニル（メタ）アクリレート、イソミリスチル（メタ）アクリレ

ート、2-ブトキシエチル（メタ）アクリレート、2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート、ビスクロペンテニル（メタ）アクリレート、イソデシル（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、ジメチルアミノエチル（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、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や各種イミドアクリレート等が挙げられる。

[0020] また、上記エステル化合物のうち2官能のものとしては、例えば、1, 4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 3-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 6-ヘキサジオールジ（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、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（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、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、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、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-ヒドロキシー-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。

[0021] また、上記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、ペンタエリスリトールトリ（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、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、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、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、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、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、ジトリメチロールプロパントトラ（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、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等が挙げられる。

[0022] 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。

[0023] 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。

[0024] 上記ビスフェノール A 型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピコート 828EL、エピコート 1001、エピコート 1004（いずれも三菱化学社製）、エピクロン 850-S（DIC 社製）等が挙げられる。

上記ビスフェノール F 型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピコート 806、エピコート 4004（いずれも三菱化学社製）等が挙げられる。

上記ビスフェノール S 型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロン EXA1514（DIC 社製）等が挙げられる。

上記 2, 2'-ジアリルビスフェノール A 型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、RE-810NM（日本化薬社製）等が挙げられる。

上記水添ビスフェノール型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロン EXA7015（DIC 社製）等が挙げられる。

上記プロピレンオキシド付加ビスフェノール A 型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、EP-4000S（ADEKA 社製）等が挙げられる。

上記レゾルシノール型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、EX-201（ナガセケムテックス社製）等が挙げられる。

上記ビフェニル型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピコート YX-4000H（三菱化学社製）等が挙げられる。

上記スルフィド型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、YSLV-50TE（新日鉄住金化学社製）等が挙げられる。

上記ジフェニルエーテル型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、YSLV-80DE（新日鉄住金化学社製）等が挙げられる。

上記ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂のうち市販されているものとして

は、例えば、EP-4088S（ADEKA社製）等が挙げられる。

上記ナフタレン型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロンHP4032、エピクロンEXA-4700（いずれもDIC社製）等が挙げられる。

上記フェノールノボラック型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロンN-770（DIC社製）等が挙げられる。

上記オルトクレゾールノボラック型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロンN-670-EXP-S（DIC社製）等が挙げられる。

上記ジシクロペンタジエンノボラック型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピクロンHP7200（DIC社製）等が挙げられる。

上記ビフェニルノボラック型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、NC-3000P（日本化薬社製）等が挙げられる。

上記ナフタレンフェノールノボラック型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、ESN-165S（新日鉄住金化学社製）等が挙げられる。

上記グリシジルアミン型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピコート630（三菱化学社製）、エピクロン430（DIC社製）、TETRAD-X（三菱ガス化学社製）等が挙げられる。

上記アルキルポリオール型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、ZX-1542（新日鉄住金化学社製）、エピクロン726（DIC社製）、エポライト80MFA（共栄社化学社製）、デナコールEX-611（ナガセケムテックス社製）等が挙げられる。

上記ゴム変性型エポキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、YR-450、YR-207（いずれも新日鉄住金化学社製）、エポリードPB（ダイセル化学工業社製）等が挙げられる。

上記グリシジルエステル化合物のうち市販されているものとしては、例えば

、デナコールEX-147（ナガセケムテックス社製）等が挙げられる。

上記ビスフェノールA型エピスルフィド樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、エピコートYL-7000（三菱化学社製）等が挙げられる。

上記エポキシ樹脂のうちその他に市販されているものとしては、例えば、YDC-1312、YSLV-80XY、YSLV-90CR（いずれも新日鉄住金化学社製）、XAC4151（旭化成社製）、エピコート1031、エピコート1032（いずれも三菱化学社製）、EXA-7120（DIC社製）、TEPIC（日産化学社製）等が挙げられる。

[0025] 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、EBECRYL860、EBECRYL3200、EBECRYL3201、EBECRYL3412、EBECRYL3600、EBECRYL3700、EBECRYL3701、EBECRYL3702、EBECRYL3703、EBECRYL3800、EBECRYL6040、EBECRYL RDX63182（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。

[0026] 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。

- [0027] 上記ウレタン（メタ）アクリレートの原料となる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、ノルボルナンジイソシアネート、トリレ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、リレ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。
- [0028] また、上記イソシアネート化合物としては、例えば、エチレングリコール、グリセリン、ソルビトール、トリメチロールプロパン、プロピレングリコール、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の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。
- [0029] 上記ウレタン（メタ）アクリレートの原料となる、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。
- [0030] 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、EBE

CRYL4858、EBECRYL8402、EBECRYL8411、EBECRYL8412、EBECRYL8413、EBECRYL8804、EBECRYL8803、EBECRYL8807、EBECRYL9260、EBECRYL1290、EBECRYL5129、EBECRYL4842、EBECRYL210、EBECRYL4827、EBECRYL6700、EBECRYL220、EBECRYL2220、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。

[0031] 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や、スチレン、 α -メチルスチレン、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラ

クトン等のビニル化合物等が挙げられる。

[0032] 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。単官能ラジカル重合性化合物のみを用いた場合、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が硬化性に劣るものとなることがあり、多官能ラジカル重合性化合物のみを用いた場合、得られる光湿気硬化型樹脂組成物がタック性に劣るものとなることがある。なかでも、上記単官能ラジカル重合性化合物として分子中に窒素原子を有する化合物と、上記多官能ラジカル重合性化合物としてウレタン（メタ）アクリレートとを組み合わせる用いることがより好ましい。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。

[0033] 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2重量部未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が硬化性に劣るものとなることがある。上記多官能ラジカル重合性化合物の含有量が45重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物がタック性に劣るものとなることがある。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。

[0034] 上記ラジカル重合性化合物の含有量は、上記ラジカル重合性化合物と上記湿気硬化型ウレタン樹脂との合計100重量部に対して、好ましい下限が10重量部、好ましい上限が80重量部である。上記ラジカル重合性化合物の含有量が10重量部未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が光硬化性に劣るものとなることがある。上記ラジカル重合性化合物の含有量が80重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が湿気硬化性に劣るものとなることがある。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 25 重量部、より好ましい上限は 70 重量部であり、更に好ましい下限は 30 重量部、更に好ましい上限は 59 重量部である。

[0035] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、湿気硬化型ウレタン樹脂を含有する。
上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、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。

[0036] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、イソシアネート基を有することが好ましく、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、両末端にイソシアネート基を有するウレタンプレポリマーであることが好ましい。

上記ウレタンプレポリマーは、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。

[0037] 上記ポリオール化合物と上記ポリイソシアネート化合物との反応は、通常、上記ポリオール化合物中の水酸基 (OH) と上記ポリイソシアネート化合物中のイソシアネート基 (NCO) とのモル比が $[NCO] / [OH] = 2.0 \sim 2.5$ となる範囲で行われる。

[0038] 上記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 種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0039] 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や、 ϵ -カプロラクトン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。

[0040] 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、琥珀酸、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。

[0041] 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。

[0042] 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、3-メチルテトラヒドロフランの開環重合体、及び、これらやその誘導体のランダム共重合体又はブロック共重合体や、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。

[0043] 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。

[0044] 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。

[0045] 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。

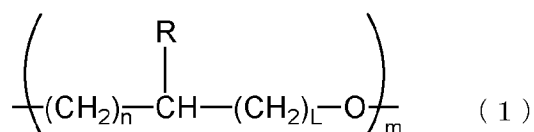
[0046] 上記ポリイソシアネート化合物としては、例えば、ジフェニルメタンジイソ

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（メタンジイソシアネート）、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。なかでも、蒸気圧や毒性の低い点、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。

[0047] 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や、柔軟で伸びがよい硬化物を得ることができ、上記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や、テトラヒドロフラン（THF）化合物の開環重合化合物や、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。

[0048] [化1]



[0049] 式（1）中、Rは、水素、メチル基、又は、エチル基を表し、nは、1～10の整数、Lは、0～5の整数、mは、1～500の整数である。nは、1～5であることが好ましく、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。

[0050] 更に、上記湿気硬化型ウレタン樹脂は、ラジカル重合性基を有していてもよい。

上記湿気硬化型ウレタン樹脂が有していてもよいラジカル重合性基としては、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、ラジカル重合性基を有する湿気硬化型ウレタン樹脂は、ラジカル重合性化合物には含まず、湿気硬化型ウレタン樹脂として扱う。

[0051] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂の重量平均分子量の好ましい下限は800、好ましい上限は1万である。上記湿気硬化型ウレタン樹脂の重量平均分子量が800未満であると、架橋密度が高くなり、柔軟性が損なわれることがある。上記湿気硬化型ウレタン樹脂の重量平均分子量が1万を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が塗布性に劣るものとなることがある。上記湿気硬化型ウレタン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] 上記湿気硬化型ウレタン樹脂の含有量は、上記ラジカル重合性化合物と上記湿気硬化型ウレタン樹脂との合計100重量部に対して、好ましい下限が20重量部、好ましい上限が90重量部である。上記湿気硬化型ウレタン樹脂の含有量が20重量部未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が湿気硬化性に劣るものとなることがある。上記湿気硬化型ウレタン樹脂の含有量が90重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が光硬化性に劣るものとなることがある。上記湿気硬化型ウレタン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75重量部であり、更に好ましい下限は41重量部、更に好ましい上限は70重量部である。

[0053] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、光ラジカル重合開始剤を含有する。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。

[0054] 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。

[0055] 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0.01重量部未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物を十分に光硬化させることができないことがある。上記光ラジカル重合開始剤の含有量が10重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物の保存安定性が低下することがある。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。

[0056] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、得られる光湿気硬化型樹脂組成物の塗布性や形状保持性を調整する等の観点から充填剤を含有してもよい。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1nm未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が塗布性に劣るものとなることがある。上記充填剤の一次粒子径が50nmを超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が塗布後の形状保持性に劣るものとなることがある。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 SYST

E M S 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、本発明の光湿気硬化型樹脂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5 nm、好ましい上限は500 nm、より好ましい下限は10 nm、より好ましい上限は100 nmである。上記充填剤の二次粒子の粒子径は、本発明の光湿気硬化型樹脂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。

[0057] 上記充填剤としては、例えば、シリカ、タルク、酸化チタン、酸化亜鉛等が挙げられる。なかでも、得られる光湿気硬化型樹脂組成物がUV光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種以上を組み合わせ用いられてもよい。

[0058] 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、得られる光湿気硬化型樹脂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。

[0059] 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、例えば、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を加え、更に、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。

[0060] 上記充填剤の含有量は、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物全体100重量部

中において、好ましい下限が1重量部、好ましい上限が20重量部である。上記充填剤の含有量が1重量部未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が塗布後の形状保持性に劣るものとなることがある。上記充填剤の含有量が20重量部を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物が塗布性に劣るものとなることがある。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。

[0061] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、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、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、遮光性に優れるものとなって表示素子の光漏れを防止することができる。

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。

[0062] 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。

[0063] 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光湿気硬化型樹脂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、本発明の光湿気硬化型樹脂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、本発明の光湿気硬化型樹脂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。

[0064] 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や、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。

また、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を用いて製造した表示素子は、光湿気硬化型樹脂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。

[0065] 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。

[0066] 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。

[0067] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物において、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 30 nm 、好ましい上限は 500 nm である。上記遮光剤の一次粒子径が 30 nm 未満であると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物の粘度やチクソ

トロピーが大きく増大してしまい、作業性が悪くなることがある。上記遮光剤の一次粒子径が500nmを超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物中における遮光剤の分散性が低下し、遮光性が低下することがある。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、上記遮光剤の粒子径は、NICOMP 380ZLS (PARTICLE SIZING SYSTEMS社製)を用いて、上記遮光剤を溶媒(水、有機溶媒等)に分散させて測定することができる。

[0068] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物全体における上記遮光剤の含有量は特に限定されないが、好ましい下限は0.05重量%、好ましい上限は10重量%である。上記遮光剤の含有量が0.05重量%未満であると、十分な遮光性が得られないことがある。上記遮光剤の含有量が10重量%を超えると、得られる光湿気硬化型樹脂組成物の基板等に対する接着性や硬化後の強度が低下したり、描画性が低下したりすることがある。上記遮光剤の含有量のより好ましい下限は0.1重量%、より好ましい上限は2重量%、更に好ましい上限は1重量%である。

[0069] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、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。

[0070] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を製造する方法としては、例えば、ホモディスパー、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、ラジカル重合性化合物と、湿気硬化型ウレタン樹脂と、光ラジカル重合開始剤と、カップリング剤と、必要に応じて添加する添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

[0071] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物における、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500Pa・sである。上記粘度が50Pa・s未満であったり、500Pa・sを超えたりすると、電子部品用接着剤や表示素子用接着剤に用いる場合に光湿気硬化型樹脂組成物を基板等の被着体に塗布する際の作業性が悪くなることがある。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300 Pa・s、更に好ましい上限は200 Pa・sである。

[0072] 本発明の光湿気硬化型樹脂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1.3未満であったり、5.0を超えたりすると、電子部品用接着剤や表示素子用接着剤に用いる場合に光湿気硬化型樹脂組成物を基板等の被着体に塗布する際の作業性が悪くなることがある。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。

[0073] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、硬化物の25℃における引張弾性率の好ましい下限が0.5 kgf/cm²、好ましい上限が6 kgf/cm²である。上記引張弾性率が0.5 kgf/cm²未満であると、柔らかすぎて、凝集力が弱く、接着力が低くなることがある。上記引張弾性率が6 kgf/cm²を超えると、柔軟性が損なわれることがある。上記引張弾性率のより好ましい下限は1 kgf/cm²、より好ましい上限は5 kgf/cm²である。なお、本明細書において上記「引張弾性率」は、引張り試験機（例えば、島津製作所社製、「EZ-Graph」）を用いて、硬化物を10mm/minの速度で引張り、50%伸びた時の力として測定される値を意味する。

[0074] 本発明の光湿気型樹脂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。

[0075] 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、クロムや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や、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や、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／ポリブチレート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や、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や、ポリカーボネートや、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、ポリメタクリル酸エチル酢酸ビニル（EVA）等のポリメタクリレート系樹脂や、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。

[0076] 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導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や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。

[0077] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を用いて被着体を接着する方法としては、例えば、第1の部材に本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を塗布する工程と、上記第1の部材に塗布された本発明の光湿気硬化型樹脂組成物に光を照射し、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物中のラジカル重合性化合物を硬化させる工程（第1硬化工程）と、上記第1硬化工程後の光湿気硬化型樹脂組成物を介して上記第1の部材と第2の部材とを貼り合わせる工程（貼り合せ工程）と、上記貼り合せ工程後、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物中の湿気硬化型ウレタン樹脂の湿気硬化により上記第1の部材と上記第2の部材とが接着される工程（第2硬化工程）とを含む方法等が挙げられ、上記貼り合せ工程後に光を照射する工程を含むことが好ましい。上記貼り合わせ工程後に光を照射する工程を含むことで、被着体との接着直後の接着性（初期接着性）を向上させることができる。上記第1の部材及び／又は上記第2の部材が光を透過する材質である場合は、光を透過する上記第1の部材及び／又は上記第2の部材越しに光を照射することが好ましく、上記第1の部材及び／又は上記第2の部材が光を透過しにくい材質である場合は、上記第1の部材と上記第2の部材とが上記光湿気硬化型樹脂組成物を介して接着された構造体の側面、即ち、光湿気硬化型樹脂組成物が露出された部分に光を照射することが好ましい。

[0078] 本発明の光湿気硬化型樹脂組成物は、電子部品用接着剤や表示素子用接着剤として特に好適に用いることができる。本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤、及び、本発明の光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる表示素子用接着剤もまた、それぞれ本発明の1つである。

発明の効果

[0079] 本発明によれば、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れる光湿気硬化型樹脂組成物を提供することができる。また、本発明によれば、該光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤及び表示素子用接着剤を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0080] [図1] (a) は、接着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、接着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

[0081] 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。

[0082] (合成例1 (ウレタンプレポリマーA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、反応させ、ウレタンプレポリマーA(重量平均分子量2700)を得た。

[0083] (合成例2 (ウレタンプレポリマーBの作製))

ポリオール化合物として100重量部のポリプロピレングリコール(旭硝子社製、「EXCENOL 2020」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、反応させ、ウレタンプレポリマーB(重量平均分子量2900)を得

た。

[0084] (合成例3 (ウレタンプレポリマーCの作製))

合成例1と同様にして得られたウレタンプレポリマーAの入った反応容器に、ヒドロキシエチルメタクリレート1.3重量部と、重合禁止剤としてN-ニトロソフェニルヒドロキシルアミンアルミニウム塩(和光純薬工業社製、「Q-1301」)0.14重量部とを添加し、窒素気流下、80℃で1時間攪拌混合し、分子末端にイソシアネート基とメタクリロイル基とを有するウレタンプレポリマーC(重量平均分子量2900)を得た。

[0085] (実施例1～16、比較例1、2)

表1、2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1～16、比較例1、2の光湿気硬化型樹脂組成物を得た。

なお、表1、2における「ウレタンプレポリマーA」は合成例1に記載した、両末端にイソシアネート基を有するウレタンプレポリマーであり、「ウレタンプレポリマーB」は合成例2に記載した、両末端にイソシアネート基を有するウレタンプレポリマーであり、「ウレタンプレポリマーC」は合成例3に記載した、分子末端にイソシアネート基とメタクリロイル基とを有するウレタンプレポリマーである。

[0086] <評価>

実施例及び比較例で得られた各光湿気硬化型樹脂組成物について以下の評価を行った。結果を表1、2に示した。なお、比較例2で得られた光湿気硬化型樹脂組成物については、基板貼り合わせ時に接着剤層が潰れ、各評価におけるサンプルの作製ができなかったため、以下の評価は行わなかった。

[0087] (接着性)

実施例及び比較例で得られた各光湿気硬化型樹脂組成物を、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、紫外線を1000mJ/cm²照射

することによって、光湿気硬化型樹脂組成物を光硬化させた。その後、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、接着性評価用サンプルを得た。図1に接着性評価用サンプルを上から見た場合を示す模式図（図1（a））、及び、接着性評価用サンプルを横から見た場合を示す模式図（図1（b））を示した。

作製した接着性評価用サンプルを、引張り試験機（島津製作所社製、「E z - G r a p f」）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を測定した。

[0088]（高温信頼性（耐クリープ性試験1））

上記「（接着性）」の評価における接着性評価用サンプルと同様にして高温信頼性評価用サンプルを作製した。得られた高温信頼性評価用サンプルを地面に対して垂直にぶら下げ、ポリカーボネート基板の端に100gの重りを吊るした状態で100℃のオープンに入れ、72時間静置した。72時間静置後、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれていなかった場合を「◎」、静置後24時間以上72時間未満で、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれた場合を「○」、静置後12時間以上24時間未満で、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれた場合を「△」、静置後12時間未満で、ポリカーボネート基板とガラス板とが完全に剥がれていた場合を「×」として、光湿気硬化型樹脂組成物の高温信頼性を評価した。

[0089]（高温高湿信頼性（耐クリープ性試験2））

上記「（接着性）」の評価における接着性評価用サンプルと同様にして高温信頼性評価用サンプルを作製した。得られた高温信頼性評価用サンプルを地面に対して垂直にぶら下げ、ポリカーボネート基板の端に100gの重りを吊るした状態で50℃60%RHのオープンに入れ、72時間静置した。72時間静置後、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれていなかった場合を「◎」、静置後24時間以上72時間未満で、ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれた場合を「○」、静置後12時間以上24時間未満で、

ポリカーボネート基板とガラス板とが剥がれた場合を「△」、静置後12時間未満で、ポリカーボネート基板とガラス板とが完全に剥がれていた場合を「×」として、光湿気硬化型樹脂組成物の高温高湿信頼性を評価した。

[0090] (柔軟性)

UV-LED (波長365nm) を用いて、紫外線を1000mJ/cm²照射することによって、実施例及び比較例で得られた光湿気硬化型樹脂組成物を光硬化させ、その後、一晩放置することにより湿気硬化させた。得られた硬化物をダンベル状 (「JIS K 6251」で規定される6号形) に打ち抜いて得られた試験片を、引張り試験機 (島津製作所社製、「EZ-Graph」) を用いて、10mm/secの速度で引張り、50%伸びた時の力を弾性率として求めた。

[0091]

[表1]

		実施例									
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
組成 (重量部)	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)									
		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)									
		メトキシトリエチレングルアクリレート (共栄社化学社製、「ライトアクリレートMTG-A」、単官能)									
		ウレタンブレポリマー-A									
	湿気硬化型 ウレタン樹脂	ウレタンブレポリマー-B									
		ウレタンブレポリマー-C (イソシアネート基及びメタクリロイル基含有)									
	光ラジカル 重合開始剤	2-ベンジル-2-ジメチルアミノ -1-(4-ホルオキシフェニル)-ブタン-1 (BASF社製、「IRGACURE 369」)									
		3-グリジドキシプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBM-403」)									
	カップリング剤	3-イソシアネートプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBE-9007」)									
		3-アクリロキシプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBM-5103」)									
評価	充填剤	メチルトリエトキシラン (信越化学工業社製、「KBE-13」)									
		チタンブトキシドダイマー (マツモトファインケミカル社製、「TA-23」)									
		シリコーン処理シリカ (日本アエロジル社製、「RY300」、一次粒子径7nm)									
		チタンブラック (三菱マテリアル社製、「13M-C」)									
	遮光剤	接着性(接着強度(Kgf/cm ²))									
		高温信頼性(耐クリープ性試験1)									
		高温高温信頼性(耐クリープ性試験2)									
		柔軟性(弾性率(Kgf/cm ²))									

[0092]

[表2]

		実施例										比較例	
		11	12	13	14	15	16	1	2				
組成 (重量部)	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)											
		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)											
		メトキシトリエチレングルコールアクリレート (共栄社化学社製、「ライトアクリレートMTG-A」、単官能)											
		ウレタンブレポリマーA											
	湿気硬化型 ウレタン樹脂	ウレタンブレポリマーB											
		ウレタンブレポリマーC (イソシアネート基及びメタクリロイル基含有)											
		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)-プロpan-1 (BASF社製、「IRGACURE 369」)											
		3-グリジドキシプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBM-403」)											
	カップリング剤	3-イソシアネートプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBE-9007」)											
		3-アクリロキシプロピルトリメトキシラン (信越化学工業社製、「KBM-5103」)											
		メチルトリエトキシラン (信越化学工業社製、「KBE-13」)											
		チタンブトキシドダイマー (マツモトファインケミカル社製、「TA-23」)											
充填剤	シリコーン処理シリカ (日本アエロジル社製、「RY300」、一次粒子径7nm)												
	チタンブラック (三菱マテリアル社製、「13M-C」)												
	接着性(接着強度(Kgf/cm ²))												
評価	遮光剤	29	24	30	28	23	24	15					
		◎	◎	◎	◎	◎	◎	x					
		◎	◎	◎	◎	◎	◎	x					
		2.8	2.3	4.5	3.0	2.0	2.1	2.4					

産業上の利用可能性

[0093] 本発明によれば、接着性、及び、高温環境下や高温高湿環境下における信頼性に優れる光湿気硬化型樹脂組成物を提供することができる。また、本発明

によれば、該光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなる電子部品用接着剤及び表示素子用接着剤を提供することができる。

符号の説明

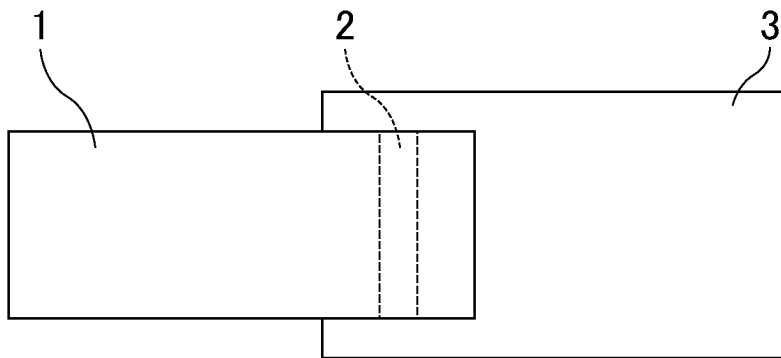
- [0094] 1 ポリカーボネート基板
2 光湿気硬化型樹脂組成物
3 ガラス板

請求の範囲

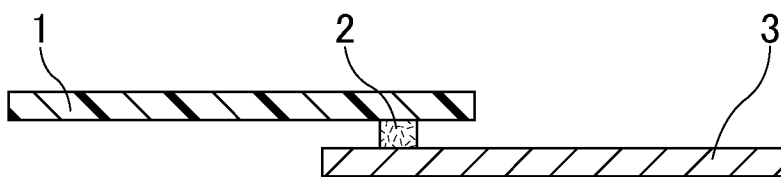
- [請求項1] ラジカル重合性化合物と、湿気硬化型ウレタン樹脂と、光ラジカル重合開始剤と、カップリング剤とを含有することを特徴とする光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項2] カップリング剤は、シランカップリング剤であることを特徴とする請求項1記載の光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項3] カップリング剤は、ラジカル重合性化合物及び／又は湿気硬化型ウレタン樹脂と反応し得る反応性官能基を有することを特徴とする請求項1又は2記載の光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項4] カップリング剤の含有量が、ラジカル重合性化合物と湿気硬化型ウレタン樹脂との合計100重量部に対して、0.05～5重量部であることを特徴とする請求項1、2又は3記載の光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項5] 一次粒子径が1～50nmの充填剤を含有することを特徴とする請求項1、2、3又は4記載の光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項6] 遮光剤を含有することを特徴とする請求項1、2、3、4又は5記載の光湿気硬化型樹脂組成物。
- [請求項7] 請求項1、2、3、4、5又は6記載の光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなることを特徴とする電子部品用接着剤。
- [請求項8] 請求項1、2、3、4、5又は6記載の光湿気硬化型樹脂組成物を用いてなることを特徴とする表示素子用接着剤。

[図1]

(a)



(b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/066666

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F2/44(2006.01)i, C08K5/5415(2006.01)i, C08L75/04(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)

C08F2/00-2/60, C08G18/00-18/87, C08L1/00-101/14

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2012-17395 A (The Yokohama Rubber Co., Ltd.), 26 January 2012 (26.01.2012), claims 1 to 10; paragraphs [0014], [0173], [0185], [0190] (Family: none)	1-8
Y	JP 2001-261725 A (Showa Highpolymer Co., Ltd.), 26 September 2001 (26.09.2001), claims 1 to 10; paragraphs [0005], [0031], [0032], [0038] (Family: none)	1-8

☒ 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
28 August 2015 (28.08.15)

Date of mailing of the international search report
08 September 2015 (08.09.15)

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/JP2015/066666

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 2013-523941 A (LG Hausys, Ltd.), 17 June 2013 (17.06.2013), claims 1 to 16; paragraph [0065] & US 2013/0029135 A1 & WO 2011/126265 A & EP 2557486 A2	1-8
Y	JP 2013-104006 A (Nitto Denko Corp.), 30 May 2013 (30.05.2013), claims 1 to 4; paragraphs [0066], [0067] & US 2013/0123451 A1 & CN 103102820 A & TW 201333146 A	1-8
P, A	JP 2015-38162 A (Nippon Bee Chemical Co., Ltd.), 26 February 2015 (26.02.2015), claims 1 to 20; paragraphs [0225], [0233] & JP 2012-67303 A & JP 2012-67304 A & US 2011/0257273 A1 & CN 102234369 A	1-8
A	WO 2014/038592 A1 (Three Bond Fine Chemical Co., Ltd.), 13 March 2014 (13.03.2014), claims 1 to 4; paragraphs [0044] to [0054] (Family: none)	1-8
A	JP 2012-153818 A (Autonetworks Technologies, Ltd.), 16 August 2012 (16.08.2012), claims 1 to 6; paragraphs [0057], [0058], [0062] & US 2013/0338327 A1 & WO 2012/102299 A1 & EP 2669299 A1	1-8
A	JP 2008-274131 A (Toagosei Co., Ltd.), 13 November 2008 (13.11.2008), claims 1 to 6; paragraphs [0035] to [0037] (Family: none)	1-8
A	JP 2002-37832 A (Asahi Kasei Corp.), 06 February 2002 (06.02.2002), claims 1 to 7; paragraphs [0023], [0027], [0029], [0036], [0039] (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08F2/44(2006.01)i, C08K5/5415(2006.01)i, C08L75/04(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（I P C））

Int.Cl. C08F 2/00-2/60, C08G 18/00-18/87, C08L 1/00-101/14

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 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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), REGISTRY (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
Y	JP 2012-17395 A（横浜ゴム株式会社） 2012.01.26, 請求項1-10, [0014], [0173], [0185], [0190]（ファミリーなし）	1-8
Y	JP 2001-261725 A（昭和高分子株式会社） 2001.09.26, 請求項1-10, [0005], [0031], [0032], [0038]（ファミリーなし）	1-8

☒ 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 8 . 0 8 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

0 8 . 0 9 . 2 0 1 5

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）

久保田 英樹

4 J

3 7 7 6

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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
Y	JP 2013-523941 A (エルジー・ハウシス・リミテッド) 2013.06.17, 請求項 1 - 16, [0065] & US 2013/0029135 A1 & WO 2011/126265 A & EP 2557486 A2	1-8
Y	JP 2013-104006 A (日東電工株式会社) 2013.05.30, 請求項 1 - 4, [0066], [0067] & US 2013/0123451 A1 & CN 103102820 A & TW 201333146 A	1-8
P, A	JP 2015-38162 A (日本ビー・ケミカル株式会社) 2015.02.26, 請求項 1 - 20, [0225], [0233] & JP 2012-67303 A & JP 2012-67304 A & US 2011/0257273 A1 & CN 102234369 A	1-8
A	WO 2014/038592 A1 (スリーボンドファインケミカル株式会社) 2014.03.13, 請求項 1 - 4, [0044] - [0054] (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2012-153818 A (株式会社オートネットワーク技術研究所) 2012.08.16, 請求項 1 - 6, [0057], [0058], [0062] & US 2013/0338327 A1 & WO 2012/102299 A1 & EP 2669299 A1	1-8
A	JP 2008-274131 A (東亜合成株式会社) 2008.11.13, 請求項 1 - 6, [0035] - [0037] (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2002-37832 A (旭化成株式会社) 2002.02.06, 請求項 1 - 7, [0023], [0027], [0029], [0036], [0039] (ファミリーなし)	1-8