(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-543176
(P2024-543176A)
(43)公表日　令和6年11月19日(2024.11.19)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
Ｃ０９Ｊ　163/00　(2006.01)		Ｃ０９Ｊ	163/00	４Ｊ０３６
Ｃ０８Ｇ　59/66　(2006.01)		Ｃ０８Ｇ	59/66	４Ｊ０４０
Ｃ０９Ｊ　181/02　(2006.01)		Ｃ０９Ｊ	181/02	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全15頁）

(21)出願番号　特願2024-531572(P2024-531572)
(86)(22)出願日　令和4年12月1日(2022.12.1)
(85)翻訳文提出日　令和6年5月28日(2024.5.28)
(86)国際出願番号　PCT/IB2022/061622
(87)国際公開番号　WO2023/100119
(87)国際公開日　令和5年6月8日(2023.6.8)
(31)優先権主張番号　202111471804.6
(32)優先日　令和3年12月2日(2021.12.2)
(33)優先権主張国・地域又は機関
中国(CN)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,
最終頁に続く

(71)出願人　505005049
スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー
アメリカ合衆国，ミネソタ州 ５５１３３－３４２７，セント ポール，ポスト オフィス ボックス ３３４２７，スリーエム センター
(74)代理人　100130339
弁理士　藤井 憲
(74)代理人　100135909
弁理士　野村 和歌子
(74)代理人　100133042
弁理士　佃 誠玄
(74)代理人　100171701
弁理士　浅村 敬一
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　一剤型エポキシ接着剤組成物及びその調製方法

(57)【要約】
本発明は、一剤型エポキシ接着剤組成物及びその調製方法を提供する。一剤型エポキシ接着剤組成物は、その総重量を１００重量%として、４２～６７重量%の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂と、３２～５７重量%のポリメルカプタンと、０．１～１２重量%の開始剤と、を含む。本発明の技術的解決策による一剤型エポキシ接着剤組成物は、硬化後の高い光透過率、構築に利用可能な長い時間、良好な接着性、及び特に良好な耐候性（耐黄変性）を有し、電子工業用組立、特に電子ディスプレイデバイスの組立及び封止に適している。

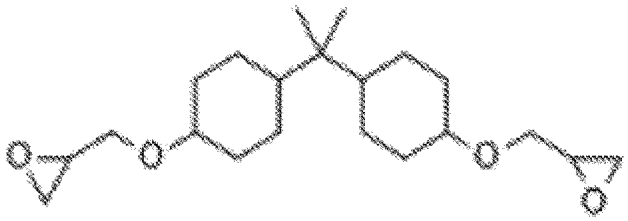
【特許請求の範囲】
【請求項１】
一剤型エポキシ接着剤組成物であって、その総重量を１００重量パーセントとして、
４２～６７重量パーセントの、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂と、
３２～５７重量パーセントのポリメルカプタンと、
０．１～１２重量パーセントの開始剤と、
を含む、一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項２】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、シクロヘキサン構造を有し且つベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂である、請求項１に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項３】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、シクロヘキサン構造を有し且つベンゼン環構造を有しないジグリシジルエーテルエポキシ樹脂である、請求項１又は２に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項４】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、２個又は３個のエポキシ官能基を有する、請求項１～３のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項５】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、２００～５００グラム／モルの範囲の数平均分子量を有する、請求項１～４のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項６】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、２００～５００グラム／モルの範囲の分子量を有する、請求項１～４のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項７】
前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテル、１，４－シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル、及び／又はトリメチロールプロパントリグリシジルエーテルのうちの１つ以上から選択される、請求項１～６のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項８】
前記一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、４５～６５重量パーセントの前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂を含む、請求項１～７のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項９】
前記一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量として、５０～６５重量パーセントの前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂を含む、請求項１～７のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項１０】
前記ポリメルカプタンが、トリメチロールプロパントリ（３－メルカプトプロピオネート）、ペンタエリスリトールテトラ－３－メルカプトプロピオネート、及び／又はトリ［２－（３－メルカプトプロピオニルオキシ）エチル］イソシアヌレートのうちの１つ以上から選択される、請求項１～９のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項１１】
前記開始剤が、潜在性アミン開始剤及び／又はイミダゾール開始剤のうちの１つ以上から選択される、請求項１～１０のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項１２】
前記一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量パーセントとして、２．８重量パーセント以下の量で系安定剤を含む、請求項１～１１のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。

【請求項１３】
前記系安定剤が、ジネオペンチルグリコールメタボレート及び／又は１－ベンジル－５－フェニルバルビツール酸のうちの１つ以上から選択される、請求項１２に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項１４】
前記一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量パーセントとして、０．６重量パーセント以下の量でシランカップリング剤を含む、請求項１～１３のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物。
【請求項１５】
請求項１～１４のいずれか一項に記載の一剤型エポキシ接着剤組成物の調製方法であって、前記ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂、前記ポリメルカプタン、及び前記開始剤を均一に混合することを含む、方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、電子工業において使用されるエポキシ接着剤の技術分野に関し、より具体的には、一剤型エポキシ接着剤組成物及びその調製方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
エポキシ樹脂接着剤は、良好な化学的安定性、耐食性、及び接着性を有するので、電子パッケージングの分野において広く使用されている。しかしながら、通常のエポキシ樹脂の耐老化性は不十分であり、使用プロセス、特に紫外線の処理において黄変が生じる。これは、耐老化性が要求される用途には適していない。また、市販されている一般的な耐酸化性エポキシ樹脂では、耐黄変性のためにフィラーを添加しているため、耐酸化性を有しているにも関わらず透明性が失われてしまい、耐酸化性と透明性の両方が要求される用途には対応できない。特に、ＬＥＤ分野、特にＬＥＤパッケージング分野は、ＬＥＤ光源からの効果的なエクスポートを必要とし、これは、ＬＥＤデバイスの組み立て及び封止に使用されるエポキシ樹脂接着剤が、構築に利用可能な十分な時間及び高い接着性を提供しながら、良好な光透過率及び耐黄変性を有することを必要とする。
【発明の概要】
【０００３】
したがって、硬化後の高い光透過率、構築に利用可能な十分な時間、接着性、及び耐候性を有する、当該分野における電子デバイス用エポキシ接着剤の開発が望まれている。
【０００４】
上記の技術的問題から出発して、本発明は、一剤型エポキシ接着剤組成物及びその調製方法を提供することを目的とする。一剤型エポキシ接着剤組成物は、硬化後の高い光透過率、構築に利用可能な長い時間、良好な接着性、及び特に良好な耐候性（耐黄変性）を有し、電子工業用組立、特に電子ディスプレイデバイスの組立及び封止に適している。
【０００５】
本発明者らは、本発明を得るために、集中的かつ詳細な研究を実施した。
【０００６】
本発明の一態様によれば、一剤型エポキシ接着剤組成物であって、その総重量を１００重量パーセント（重量％）として、
４２～６７重量％の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂と、
３２～５７重量％のポリメルカプタンと、
０．１～１２重量％の開始剤と、を含む、一剤型エポキシ接着剤組成物が提供される。
【０００７】
本発明の別の態様によれば、一剤型エポキシ接着剤組成物を調製する方法であって、上述された一剤型エポキシ接着剤組成物の各成分を均一に混合することを含む、方法が提供される。

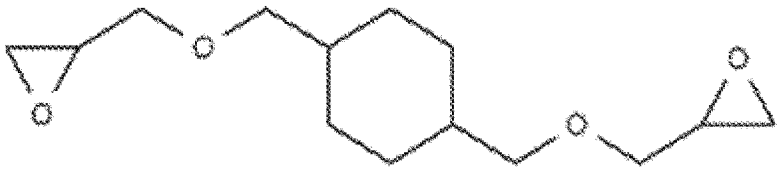
【０００８】
既存技術と比較して、本発明は以下の利点を有する：本発明の技術的解決法による一剤型エポキシ接着剤組成物は、硬化後の高い光透過率（光透過率≧９５％）、構築のために利用可能な長い時間（２４時間超）、良好な接着性（剪断強度≧５ＭＰａ）、及び特に良好な耐候性（エポキシ接着剤が黄変せず、波長４０５ｎｍのＵＶ　ＬＥＤを照度５　Ｗ／ｃｍ^{2}で２００時間照射した後に、光透過率が≧９０％である）、並びに電子工業の組立に、特に電子ディスプレイデバイスの組立及び封止に適している。
【発明を実施するための形態】
【０００９】
様々な他の実施形態が、本開示の範囲又は趣旨から逸脱することなく、本明細書の教示に照らして当業者によって考案及び修正され得ることを理解されたい。したがって、以下の特定の実施形態は、意味を限定するものではない。
【００１０】
別段の指示がない限り、特徴の寸法、量、及び物理化学的特性に関して本明細書及び特許請求の範囲で使用される全ての数字は、全ての場合において「およそ」という用語によって修飾されると解釈されたい。したがって、そうでないとの指示がない限り、本明細書及び添付の特許請求の範囲に列挙される上記の数値パラメータは全て近似値であり、これは、本明細書に開示される教示から得ようとする所望の特性を使用して当業者によって適切に変更され得る。端点によって表される数値範囲の使用は、その範囲内の全ての数、及びその範囲内の任意の範囲を含み、例えば、１～５は、１、１．１、１．３、１．５、２、２．７５、３、３．８０、４及び５などを含む。
【００１１】
本発明者らによる徹底的な研究を通して、予想外にも、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂、ポリメルカプタン及び開始剤を特定の含有量で組み合わせることにより、硬化後の高い光透過率、構築のために利用可能な長い時間、良好な接着性、及び特に良好な耐候性（耐黄変性）を有する、一剤型エポキシ接着剤組成物（本明細書ではエポキシ接着剤とも呼ばれる）を提供することができることが見出された。
【００１２】
具体的には、本発明の一態様によれば、一剤型エポキシ接着剤組成物であって、その総重量を１００重量％として、
４２～６７重量％の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂と、
３２～５７重量％のポリメルカプタンと、
０．１～１２重量％の開始剤と、を含む、一剤型エポキシ接着剤組成物が提供される。
【００１３】
本発明の技術的解決策によれば、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂が、一剤型エポキシ接着剤組成物のための基本材料として使用される。本明細書で使用する場合、「ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂」は、分子内に２個以上のエポキシ基を含み且つベンゼン環構造を含まない有機化合物を指し、これは、高分子量化合物であってもよい。本発明者らは、エポキシ樹脂中にベンゼン環構造が存在すると、得られるエポキシ接着剤の耐老化性、特に耐紫外線老化性が大きく低下することを見出した。好ましくは、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、シクロヘキサン構造を有し且つベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂である。シクロヘキサン構造とベンゼン環構造とを有していないエポキシ樹脂と比較して、エポキシ樹脂中のシクロヘキサン構造が存在すると、得られるエポキシ接着剤の接着性を大幅に改善することができる。好ましくは、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、シクロヘキサン構造を有し且つベンゼン環構造を有しないジグリシジルエーテルエポキシ樹脂である。好ましくは、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、２個又は３個のエポキシ官能基を有する。好ましくは、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、液状エポキシ樹脂である。好ましくは、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、２００～５００グラム／モルの範囲の数平均分子量を有する。非ポリマー材料の場合、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、２００～５００グラム／モルの範囲の

分子量を有することができる。好ましくは、本明細書で使用され得る、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂は、以下のような構造式を有する、水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテル、１，４－シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル、及び／又はトリメチロールプロパントリグリシジルエーテルのうちの１つ以上から選択される。

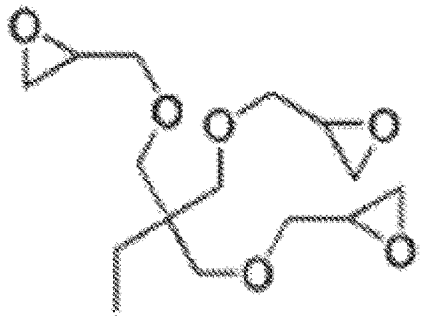
【化１】



水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテル



１，４－シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル



トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル

【００１４】

本明細書で使用することができる、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の市販の例としては、Ｍｉｔｓｕｂｉｓｈｉ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ製のＹＸ８０００Ｄ（水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテル）、Ｈａｎｓｅｎ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ製のＨｅｌｏｘｙ １０７（１，４－シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル）、ＣＶＣ Ｔｈｅｒｍｏｓｅｔｔｉｎｇ Ｓｐｅｃｉａｌ Ｍａｔｅｒｉａｌｓ製のＧＥ－３０（トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル）が挙げられる。

【００１５】

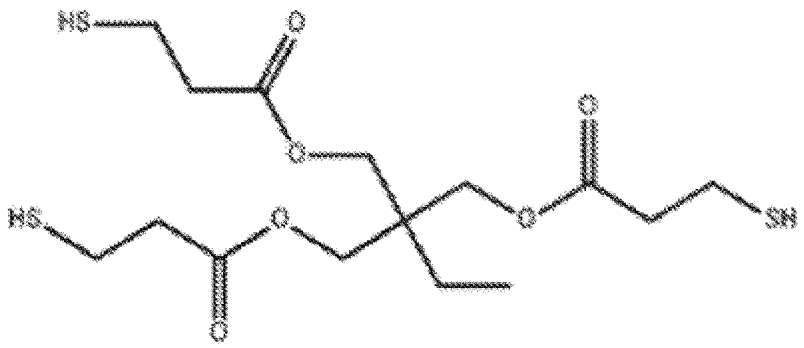
一剤型エポキシ接着剤組成物中の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量は、得られるエポキシ接着剤の性能に重大な影響を及ぼす。一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、一剤型エポキシ接着剤組成物は、４２～６７重量％の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂を含む。ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量が４２重量％未満である場合、得られるエポキシ接着剤の硬化後の接着性は不十分であり、これは電子工業の組立のためのエポキシ接着剤製品の要件を満たさない。ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量が６７重量％を超える場合、得られるエポキシ接着剤の硬化後の接着性は不十分であり、これは電子工業の組立のためのエポキシ接着剤の要件を満たさない。加えて、エポキシ接着剤の耐ＵＶ性がある程度低下する。好ましく

は、一剤型エポキシ接着剤組成物は、その総重量を１００重量％として、４５～６５重量％の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂、又は５０～６５重量％の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂を含む。ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量を４５～６５重量％の範囲に制御することによって、得られるエポキシ接着剤の構築に利用可能な時間を２日以上に延ばすことができる。本明細書で使用する場合、「構築に利用可能な時間」という用語は、調製されたエポキシ接着剤が室温（２３℃）に置かれ、その粘度が５０％上昇するまでの時間を指す。

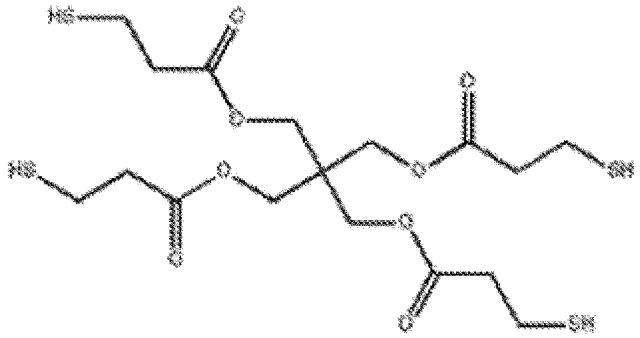
【００１６】

本発明による一剤型エポキシ接着剤組成物は、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂と架橋するための必須成分として、ポリメルカプタンを更に含む。本明細書で使用する場合、用語「ポリメルカプタン」は、３つ以上のメルカプト基を有する有機化合物を指す。好ましくは、ポリメルカプタンは、以下の構造式を有する、トリメチロールプロパントリ（３－メルカプトプロピオネート）（ＴＭＰＭＰ）、ペンタエリスリトールテトラ－３－メルカプトプロピオネート（ＰＥＴＭＰ）、及び／又はトリ［２－（３－メルカプトプロピオニルオキシ）エチル］イソシアヌレート（ＴＥＭＰＩＣ）のうちの１つ以上から選択される。

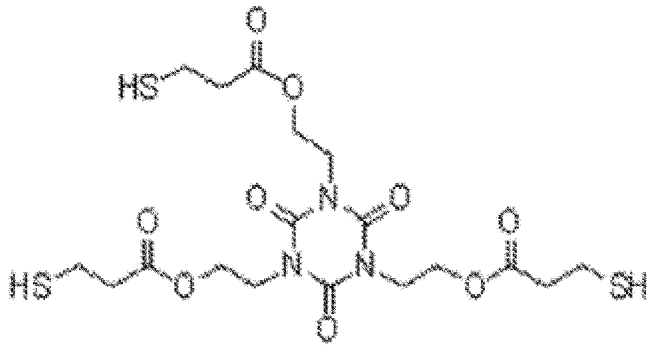
【化２】



トリメチロールプロパントリ（３－メルカプトプロピオネート）（ＴＭＰＭＰ）



ペンタエリスリトールテトラ－３－メルカプトプロピオネート（ＰＥＴＭＰ）



トリ［２－（３－メルカプトプロピオニルオキシ）エチル］イソシアヌレート（ＴＥＭＰＩＣ）

【００１７】

本発明で使用することができる、ベンゼン環構造を有しないポリメルカプタンの市販の例としては、Ｂｒｕｎｏ　Ｂｏｃｋ　Ｃｏｍｐａｎｙ製のＴＭＰＭＰ（トリメチロールプロパントリ（３－メルカプトプロピオネート））；Ｂｒｕｎｏ　Ｂｏｃｋ　Ｃｏｍｐａｎｙ製造のＰＥＴＭＰ（ペンタエリトリトールテトラ－３－メルカプトプロピオネート）；及びＢｒｕｎｏ　Ｂｏｃｋ　Ｃｏｍｐａｎｙ製のＴＥＭＰＩＣ（トリ［２－（３－メルカプトプロピオニルオキシ）エチル］イソシアヌレート）が挙げられる。

【００１８】

一剤型エポキシ接着剤組成物中のポリメルカプタンの含有量は、得られるエポキシ接着剤の性能に重大な影響を及ぼす。一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、一剤型エポキシ接着剤組成物は、３２～５７重量％のポリメルカプタンを含む。ポリメルカプタンの含有量が３２重量％未満である場合、得られるエポキシ接着剤の硬化後の接着性は不十分であり、これは電子工業用組立のためのエポキシ接着剤製品の要件を満たさない。ポリメルカプタンの含有量が５７重量％を超えると、得られるエポキシ接着剤

の硬化後の接着性は不十分であり、これは電子工業の組立のためのエポキシ接着剤の要件を満たさない。加えて、エポキシ接着剤の耐ＵＶ性がある程度低下する。

【００１９】

本発明による一剤型エポキシ接着剤組成物は、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂とポリメルカプタンとの間の架橋反応を開始するための、開始剤も含む。本発明で使用可能な開始剤は、具体的には、当該技術分野で通常使用される潜在性アミン開始剤及び／又はイミダゾール開始剤のうちの１つ以上から選択されてもよい。好ましくは、イミダゾール開始剤は、２－エチル－４－メチルイミダゾール及び／又は２－ヘプタデシルイミダゾールのうちの１つ以上であってもよい。一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、一剤型エポキシ接着剤組成物は、０．１～１２重量％の開始剤を含む。開始剤の含有量が１２重量％を超えると、得られるエポキシ接着剤の硬化後の光線透過率が低下し、その耐ＵＶ性が著しく低下する。

【００２０】

エポキシ接着剤の室温安定性を改善するために、本発明による一剤型エポキシ接着剤組成物は、任意選択で、系安定剤を更に含んでもよい。好ましくは、系安定剤は、ジネオペンチルグリコールメタボレート（dineopentyl glycol metaborate）及び／又は１－ベンジル－５－フェニルバルビツール酸のうちの１つ以上から選択される。好ましくは、一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、一剤型エポキシ接着剤組成物は、２．８重量％以下の系安定剤を含む。

【００２１】

加えて、エポキシ接着剤が電子部品の接合界面に適用されるときの接着強度を高めるために、本発明による一剤型エポキシ接着剤組成物は、任意選択で、シランカップリング剤を更に含む。好ましくは、一剤型エポキシ接着剤組成物の総重量を１００重量％として、一剤型エポキシ接着剤組成物は、０．６重量％以下のシランカップリング剤を含む。

【００２２】

加えて、当業者に知られているように、実際の用途の要件に従って、本発明の一剤型エポキシ接着剤組成物はまた、当該技術分野において周知の他の成分又は添加剤を含有してもよい。本発明の一剤型エポキシ接着剤組成物の必要な性能に影響しない限り、これらの他の成分の種類及び含有量は、特に限定されない。

【００２３】

本発明による一剤型エポキシ接着剤組成物は、溶媒を含んでもよく含まなくてもよい。好ましい実施形態では、本発明の一剤型エポキシ接着剤組成物は、溶媒、特に有機溶媒を含有しない。

【００２４】

本発明の別の態様によれば、一剤型エポキシ接着剤組成物を調製する方法であって、上述された一剤型エポキシ接着剤組成物の各成分を均一に混合することを含む、方法が提供される。各成分の具体的な混合方法又は混合順序に特別な制限はなく、当業者は具体的な技術的要件及びプロセス条件に従って妥当に決定することができる。

【００２５】

上記方法による一剤型エポキシ接着剤組成物は、硬化後の高い光透過率（光透過率≧９５％）、構築のために利用可能な長い時間（２４時間超）、良好な接着性（剪断強度≧５ＭＰａ）、及び特に良好な耐候性（エポキシ接着剤が黄変せず、波長４０５ｎｍのＵＶＬＥＤを用いて照度５　Ｗ／ｃｍ^{2}で２００時間照射した後に、光透過率が≧９０％である）、並びに電子工業の組立に、特に電子ディスプレイデバイスの組立及び封止に適している。

【００２６】

以下に、実施例を参照して、本発明をより詳細に記載する。これらの説明及び実施例は、本発明の理解を容易にするためのものであり、本発明を限定するものではないことを指摘しておく。本発明の保護範囲は、添付の特許請求の範囲に従う。

【実施例】

【００２７】
以下、実施例及び比較例を参照して、本発明を更に詳細に説明する。しかし、本発明は以下の実施例に限定されないことを理解されたい。
【００２８】
以下の実施例及び比較例において、特に断らない限り、「部」は「重量部」を指し、「％」は重量パーセント「重量％」を指し、「ｇ」は重量単位「グラム」を指す。本発明では、特に指示がない限り、使用される試薬は全て市販製品であり、更に精製することなく直接使用される。
【００２９】
【表１】
表1:材料の一覧表

成分	製品名	説明	供給元
エポキシ樹脂	YX8000D	水素添加ビスフェノールAジグリシジルエーテル	Mitsubishi Chemical Corporation
	Heloxy 107	1,4-シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル	Hansen Chemical Corporation
	GE-30	トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル	CVC Thermosetting Special Materials Corporation
	DER331	ビスフェノールAジグリシジルエーテル	Lanke Chemical Olin Corporation
ポリメルカプタン	TMPMP	トリメチロールプロパントリス(3-メルカプトプロピオネート)	Bruno Bock Corporation
	PETMP	ペンタエリスリトールテトラ-3-メルカプトプロピオネート	Bruno Bock Corporation
	TEMPIC	トリス[2-(3-メルカプトプロピオニルオキシ)エチル]イソシアヌレート	Bruno Bock Corporation
開始剤	FXR-1081	潜在性アミン開始剤	T&K TOKA Co., Ltd. of Japan
	2E4MZ	2-エチル-4-メチルイミダゾール	Sikoku Chemical Industry Co., Ltd.
	C17Z	2-ヘプタデシルイミダゾール	Sikoku Chemical Industry Co., Ltd.
系安定剤	L-07N	ジネオペンチルグリコールメタボレート	Sikoku Chemical Industry Co., Ltd.
シランカップリング剤	KH560	シランカップリング剤	Sinopharm Chemical Reagent Co., Ltd.

【００３０】
試験方法
以下の実施例及び比較例で調製したそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物について、以下に記載する具体的な方法に従って、粘度、構築に利用可能な時間、接着性、光透過率、及び耐紫外線性を試験した。
【００３１】
粘度
以下の実施例及び比較例で製造されたそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物の粘度（単位：センチポイズ（ｃＰｓ））は、Ｂｒｏｏｋｆｉｅｌｄ　Ｃｏｍｐａｎｙ製のＨＢＤＶ－ＩＩ＋Ｐｒｏ粘度計を用いて測定した。ここで、試験温度は２３℃であり、４＃ローターを用い、速度は１００回転毎分（ｒｐｍ）であった。
【００３２】
調製されたエポキシ接着剤の粘度は、エポキシ接着剤製品の従来の接着剤構築の要件を満たすために１００００ｃＰｓ未満である必要があった。
【００３３】
構築に利用可能な時間
以下の実施例及び比較例で調製されたそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物をそれぞれ室温（２３℃）に置き、その粘度変化を上記の粘度測定方法によって監視した。室温（２３℃）で保持しエポキシ接着剤の粘度が５０％上昇するまでの時間を、構築に利用可能な時間（単位：日）とした。
【００３４】

調製されたエポキシ接着剤の構築に利用可能な時間は、エポキシ接着剤製品の従来の接着性に関する使用要件を満たすために、少なくとも１日（２４時間）以上に達する必要がある。

【００３５】

重ね剪断強度

以下の実施例及び比較例で調製したそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物を、それぞれ、１．２７センチメートル（ｃｍ）×２．５４ｃｍのアルミニウム合金板（Ａｌ　６０６３；Ｊｉａｎｇｓｕ　Ｋｕｎｓｈａｎ　Ｇｒｅａｔ　Ｗａｌｌ　Ｐｒｉｎｔｉｎｇ　Ｆａｃｔｏｒｙ）上に、コーティング厚さ１００マイクロメートル（μｍ）でコーティングした。次いで、コーティングされたアルミニウム合金板を１１０℃で０．５時間（ｈ）乾燥させて、Ａｌ　６０６３板上の一剤型エポキシ接着剤組成物を完全に硬化させた。次いで、動的剪断試験規格、すなわち、ＡＳＴＭ　Ｄ　１００２－７２規格に従って、試料の重ね剪断強度（単位：メガパスカル（ＭＰａ））を、室温（２２～２４℃）で、２．５４ミリメートル／分（ｍｍ／分）の引張速度で、Ｉｎｓｔｒｏｎ　Ｃｏｍｐａｎｙ，ＵＳ製のＩｎｓｔｒｏｎ　５９６９装置によって試験した。

【００３６】

調製されたエポキシ接着剤の重ね剪断強度は、エポキシ接着剤製品の接着性能に関する従来の要件を満たすために、少なくとも５ＭＰａ以上に達する必要があった。

【００３７】

光透過率

以下の実施例及び比較例で調製したそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物を、それぞれ剥離紙上に１０μｍのコーティング厚さでコーティングし、１１０℃で０．５時間乾燥させた。完全に硬化してフィルムを形成した後、離型紙を除去し、接着フィルムを３ｃｍ×５ｃｍの大きさに切断した。次いで、波長４５０～４５５ナノメートル（ｎｍ）の光の透過率を、日本のＳｈｉｍａｄｚｕ製のＵＶ－１９００ｉ紫外可視分光光度計で測定し、老化前の光透過率（％）とした。

【００３８】

硬化エポキシ接着剤の老化前の光透過率は、電子ディスプレイデバイスの光透過率に関する従来の使用要件を満たすために、少なくとも９５％であるべきである。

【００３９】

耐老化性（耐紫外線性）

以下の実施例及び比較例で調製したそれぞれの一剤型エポキシ接着剤組成物を、それぞれ離型紙上に１０μｍのコーティング厚さでコーティングし、１１０℃で０．５時間乾燥させた。完全に硬化してフィルムを形成した後、離型紙を除去し、接着フィルムを３ｃｍ×５ｃｍの大きさに切断した。次いで、試料に、波長４０５ｎｍのＵＶ　ＬＥＤランプ（Ｆｕｔａｎｓｉ　Ｃｏｍｐａｎｙ，Ｍｏｄｅｌ　ＵＶ　ＳＦ８　ＩＴ）を用いて照度５Ｗ／ｃｍ^{2}で２００時間照射した。次いで、波長４５０～４５５ｎｍの光の透過パーセントを、Ｓｈｉｍａｄｚｕ　ＵＶ－１９００ｉ紫外可視分光光度計で測定し、老化後の光透過率（％）とした。

【００４０】

上記老化処理に供された硬化エポキシ接着剤の老化後の光透過率は、電子ディスプレイデバイスの光透過率に関する従来の使用要件を満たすために、少なくとも９０％である必要がある。

【００４１】

実施例１（Ｅ１）

５６．５ｇの水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテルＹＸ８０００Ｄ、４１．０ｇのトリメチロールプロパントリ（３－メルカプトプロピオネート）ＴＭＰＭＰ、２．０ｇの潜在性アミン開始剤ＦＸＲ－１０８１、及び０．５ｇのジネオペンチルグリコールメタボレートＬ－０７Ｎを均一に混合して、一剤型エポキシ接着剤組成物１を得た。

【００４２】

一剤型エポキシ接着剤組成物１の粘度、構築に利用可能な時間、重ね剪断強度、光透過率、及び耐老化性（耐紫外線性）について、それぞれ上記に具体的に記載した試験方法に従って試験し、結果を以下の表２に示す。

【００４３】

実施例２～１４（Ｅ２～Ｅ１４）及び比較例１～５（Ｃ１～Ｃ５）

実施例２～１４（Ｅ２～Ｅ１４）及び比較例１～５（Ｃ１～Ｃ５）を、各成分の具体的な種類及び含有量を以下の表２に示すように変更したのみであること以外は、実施例１と同様にして実施した。

【００４４】

一剤型エポキシ接着剤組成物Ｅ２～Ｅ１４及び比較例一剤型エポキシ接着剤組成物Ｃ１～Ｃ５を、粘度、構築に利用可能な時間、重ね剪断強度、光透過率、及び耐老化性（耐紫外線性）について、それぞれ上記に具体的に記載した試験方法に従って試験し、結果を以下の表２に示す。

【００４５】

【表２】

表２ 実施例１～１４（E１～E１４）及び比較例１～５（C１～C５）で調製した、一剤型エポキシ接着剤組成物E１～E１４及び比較例一剤型エポキシ接着剤組成物C１～C５の組成比及び性能試験結果

	E1	E2	E3	E4	E5	E6	E7	E8	E9	E10	E11	E12	E13	E14	C1	C2	C3	C4	C5
YX8000D	56.5	63.9	63.8	62.1	52.1	59.0	43.4			66.0	60.4	49.4					68.3	38.1	50.0
Heloxy 107								47.3	48.5			5.0							
GE-30												6.0	43.4	44.3					
DER331															56.5	63.9			
TMPMP	41.0					40.1				33.7		5.2			41.0		31.4		
PETMP		35.8	35.7	34.8	34.0						33.2	28.0				35.8			34.4
TEMPIC							56.4	52.5	49.7		6.0	6.0	56.4	55.1				61.7	
FXR-1081	2.0			2.5	11.1				1.0						2.0				12.8
2E4MZ		0.3	0.3			0.3	0.2	0.2		0.3			0.2	0.2		0.3	0.3	0.2	
C17Z											0.4	0.4							
L-07N	0.5		0.2	0.6	2.8				0.3						0.5				2.8
KH560						0.6			0.5					0.4					
総量(g)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
性能試験結果																			
粘度(cPs)	560	1040	1056	1440	1776	496	2608	704	720	848	1072	832	5200	4800	784	2640	880	2960	1856
構築に利用可能な時間(日)	4	2	4	4	3	2	1	3	3	1	6	6	1	1	4	2	2	3	3
重ね剪断強度(MPa)	7.0	14.6	14.5	13.5	16.0	8.3	8.6	5.1	6.3	5.5	15.0	14.0	5.3	6.2	12.8	12.3	4.2	4.3	16.0
老化前の光透過率(%)	99.8	99.9	99.9	99.6	95.2	99.0	97.0	99.5	99.5	99.5	99.1	99.6	99.7	99.8	99.0	99.0	98.0	97.0	92.0
老化後の光透過率(%)	98.0	99.0	98.9	98.0	90.3	98.2	93.2	99.1	99.0	99.0	98.3	98.8	99.2	98.7	29.0	26.0	97.0	95.0	87.0

【００４６】

上記表２における実施例１～１４（Ｅ１～Ｅ１４）の結果から、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂、ポリメルカプタン及び開始剤の組み合わせを特定の含有量で使用することにより、硬化後の調製された一剤型エポキシ接着剤組成物は、硬化前の良好な光透過率（光透過率≧９５％）、構築のために利用可能な長い時間（２４時間超）、良好な接着性（剪断強度≧５ＭＰａ）、及び特に良好な耐候性（エポキシ接着剤が黄変せず、波長４０５ｎｍのＵＶ　ＬＥＤを照度５　Ｗ／ｃｍ^{2}で２００時間照射した後に、光透過率が≧９０％である）を有していたこと、並びに電子工業の組立に、特に電子ディスプレイデバイスの組立及び封止に適していることが分かる。

【００４７】

実施例１（Ｅ１）の結果を比較例１（Ｃ１）と比較することによって、分子中にベンゼン環構造を有しない水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテルＹＸ８０００Ｄを、ベンゼン環構造を含むビスフェノールＡジグリシジルエーテルＤＥＲ３３１で置き換えた場合、その分子構造が非常に類似しているにもかかわらず、得られたエポキシ接着剤の耐老化性が大幅に低下し、老化試験後の硬化エポキシ接着剤の光透過率がわずか２９．０％であることが分かり、これは、電子ディスプレイデバイスの組立及び封止の技術分野における透明構造用接着剤製品の性能要件を満たすには程遠い。

【００４８】

実施例２（Ｅ２）の結果を比較例２（Ｃ２）と比較することによって、分子中にベンゼン環構造を有しない水素化ビスフェノールＡジグリシジルエーテルＹＸ８０００Ｄを、ベンゼン環構造を含むビスフェノールＡジグリシジルエーテルＤＥＲ３３１で置き換えた場

合、その分子構造が非常に類似しているにもかかわらず、得られたエポキシ接着剤の耐老化性が大幅に低下し、老化試験後の硬化エポキシ接着剤の光透過率がわずか２６．０％であることが分かり、これは、電子ディスプレイデバイスの組立及び封止における透明構造用接着剤製品の性能要件を満たすには程遠い。

【００４９】

比較例３（Ｃ３）の結果から、一剤型エポキシ接着剤組成物中の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量が高すぎ（例えば、６８．３重量％）、ポリメルカプタンの含有量が低すぎる（例えば、３１．４重量％）場合、得られるエポキシ接着剤の重ね剪断強度が低すぎる（例えば、４．２ＭＰａ）ことが分かり、これは、電子工業の組立におけるエポキシ接着剤の接着性能の基本要件を満たすことができない。

【００５０】

比較例４（Ｃ４）の結果から、一剤型エポキシ接着剤組成物中の、ベンゼン環構造を有しないエポキシ樹脂の含有量が低すぎ（例えば、３８．１重量％）、ポリメルカプタンの含有量が高い（例えば、６１．７重量％）場合、得られるエポキシ接着剤の重ね剪断強度が低すぎる（例えば、４．３ＭＰａ）ことが分かり、これは、電子工業の組立におけるエポキシ接着剤の接着性能の基本要件を満たすことができない。

【００５１】

比較例５（Ｃ５）の結果から、一剤型エポキシ接着剤組成物中の開始剤含有量が高すぎる（例えば、１２．８重量％）場合、得られたエポキシ接着剤の硬化後の光透過率が低すぎ（例えば、９２．０％）、老化試験後の光透過率が更に大幅に低下する（例えば、８７．０％）ことが分かり、これは、電子ディスプレイデバイスの組立及び封止プロセスにおける構造用接着剤製品の光透過率要件を満たすことができない。

【００５２】

本発明において具体的な実施形態が示され説明されてきたが、当業者は、本発明の範囲から逸脱することなく、様々な代替及び／又は等価な実施形態が、示され説明された具体的な実施形態を置換するために使用され得ることを理解するであろう。本出願は、本発明において考察した具体的な実施形態のあらゆる適合例又は変形例を包含することを意図する。したがって、本発明は、特許請求の範囲及びその等価物のみに従う。

【００５３】

当業者は、本発明の範囲から逸脱することなく、様々な修正及び変更を行うことができることを理解すべきである。このような変更及び変化形は、添付の特許請求の範囲によって定義される本開示の範囲内であることを意図するものである。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/IB2022/061622

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08G59/14 C08G59/40 C08G59/66
ADD.

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)
C08G C09J

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2018/265756 A1 (ARAI FUMINORI [JP] ET AL) 20 September 2018 (2018-09-20) paragraphs [0003], [0007]; examples 1.11, Ref.ex.3; tables 2,13	1-15
X	US 2020/148847 A1 (OKA HIDEKI [JP] ET AL) 14 May 2020 (2020-05-14) examples 1-7; table 1	1-15
X	US 2020/407486 A1 (ABE NOBUYUKI [JP] ET AL) 31 December 2020 (2020-12-31) paragraph [0006]; examples 1-8; tables 1-2	1-15

☐ 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	Date of mailing of the international search report
1 February 2023	13/02/2023

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Bezard, Stéphane

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/IB2022/061622

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2018265756 A1	20-09-2018	JP 6742027 B2	19-08-2020
		JP WO2017043405 A1	28-06-2018
		KR 20180052620 A	18-05-2018
		TW 201718693 A	01-06-2017
		US 2018265756 A1	20-09-2018
		WO 2017043405 A1	16-03-2017
US 2020148847 A1	14-05-2020	AU 2018300880 A1	07-11-2019
		CN 110650997 A	03-01-2020
		EP 3653663 A1	20-05-2020
		JP WO2019013025 A1	07-05-2020
		KR 20200031064 A	23-03-2020
		US 2020148847 A1	14-05-2020
		WO 2019013025 A1	17-01-2019
US 2020407486 A1	31-12-2020	CN 111527123 A	11-08-2020
		JP WO2019146672 A1	04-02-2021
		KR 20200115478 A	07-10-2020
		TW 201936689 A	16-09-2019
		US 2020407486 A1	31-12-2020
		WO 2019146672 A1	01-08-2019

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,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,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

(72)発明者　トン，リンジエ
中華人民共和国，シャンハイ　２００３３６，シン イ ロード ８，マックスドゥ センター ３８／エフ

(72)発明者　サン，ジアシン
中華人民共和国，シャンハイ　２００３３６，シン イ ロード ８，マックスドゥ センター ３８／エフ

Ｆターム（参考）　4J036　AB01 AB02 AB07 DC41 DD02 JA06
4J040　EC041 EJ012 HC23 HD03 HD32 JA12 KA14 KA20 LA05 LA06 MA02