(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
2017 年 7 月 13 日(13.07.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/119274 A1

(51) 国際特許分類:
C09J 163/00 (2006.01) *C09J 11/06* (2006.01)
C09J 9/02 (2006.01) *H01L 21/60* (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01) *H01L 33/60* (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/087810

(22) 国際出願日: 2016 年 12 月 19 日(19.12.2016)

(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 2016-000658 2016 年 1 月 5 日(05.01.2016) JP

(71) 出願人: デクセリアルズ株式会社 (DEXERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎１丁目１１番２号　ゲートシティ大崎イーストタワー８階 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 波木　秀次 (NAMIKI, Hidetsugu); 〒1410032 東京都品川区大崎１丁目１１番２号ゲートシティ大崎イーストタワー８階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 石松　朋之 (ISHIMATSU, Tomoyuki); 〒1410032 東京都品川区大崎１丁目１１番２号ゲートシティ大崎イーストタワー８階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 松村　孝 (MATSUMURA, Takashi); 〒1410032 東京都品川区大崎１丁目１１番２号ゲートシティ大崎イーストタワー８階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 青木　正治 (AOKI, Masaharu); 〒1410032 東京都品川区大崎１丁目１１番２号ゲートシティ大崎イーストタワー８階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 野口　信博 (NOGUCHI, Nobuhiro); 〒1010054 東京都千代田区神田錦町３－１６－１１　エルヴァージュ神田錦町２階 Tokyo (JP).

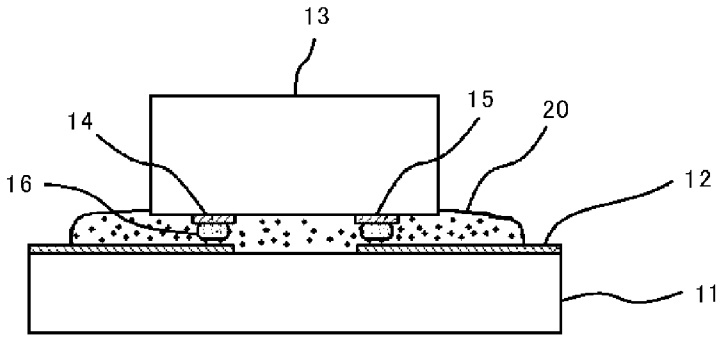
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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,

[続葉有]

(54) **Title**: ADHESIVE COMPOSITION

(54) 発明の名称 : 接着剤組成物



(57) **Abstract**: Provided is an adhesive composition having excellent life properties. This adhesive composition achieves excellent life properties by containing an epoxy compound, an aluminum chelating agent and a hindered amine compound. This is considered to become possible since the aluminum chelating agent is stably present because of a nitrogen atom of the hindered amine compound, said nitrogen atom being coordinated to the aluminum of the aluminum chelating agent.

(57) 要約: 優れたライフ性を有する接着剤組成物を提供する。エポキシ化合物と、アルミニウムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有することにより、優れたライフ性を得る。これは、アルミニウムキレート剤のアルミニウムにヒンダードアミン系化合物の窒素原子が配位することにより、アルミニウムキレート剤が安定して存在しているためと考えられる。

WO 2017/119274 A1

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)）

明　細　書

発明の名称 ： 接着剤組成物

技術分野

[0001] 本発明は、アルミニウムキレート剤を用いてエポキシ化合物をカチオン重合させる接着剤組成物に関する。本出願は、日本国において２０１６年１月５日に出願された日本特許出願番号特願２０１６－０００６５８を基礎として優先権を主張するものであり、この出願は参照されることにより、本出願に援用される。

背景技術

[0002] 従来、エポキシ化合物に対する低温速硬化活性を示す硬化剤として、アルミニウムキレート剤が知られている。例えば、特許文献１には、多官能イソシアネート化合物を界面重合させて得た多孔性樹脂にアルミニウムキレート剤を保持したアルミニウムキレート系潜在性硬化剤が提案されている。

[0003] しかしながら、アルミニウムキレート剤が多孔性樹脂に保持されたとしても、多孔性樹脂からアルミニウムキレート剤がしみ出すことがあり、接着剤組成物のライフ性が低下することがあった。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２００９－１９７２０６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、上述した従来技術における課題を解決するものであり、優れたライフ性を有する接着剤組成物を提供する。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、鋭意検討を行った結果、ヒンダードアミン系化合物を配合することにより、優れたライフ性が得られることを見出した。

[0007] すなわち、本発明に係る接着剤組成物は、エポキシ化合物と、アルミニウ

ムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有することを特徴とする。

[0008] また、本発明に係る発光装置は、配線パターンを有する基板と、前記配線パターンの電極上に形成された異方性導電膜と、前記異方性導電膜上に実装された発光素子とを備え、前記異方性導電膜が、エポキシ化合物と、アルミニウムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有する異方性導電接着剤の硬化物であることを特徴とする。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、ヒンダードアミン系化合物を配合することにより、優れたライフ性を得ることができる。これは、アルミニウムキレート剤のアルミニウムにヒンダードアミン系化合物の窒素原子が配位することにより、アルミニウムキレート剤が安定して存在しているためと考えられる。また、本発明に係る接着剤組成物は、ヒンダードアミン系化合物のラジカル捕捉により、光劣化が抑制されるため、ＬＥＤ等の発光素子の実装に最適である。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図１は、発光装置の一例を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら下記順序にて詳細に説明する。

１．接着剤組成物

２．発光装置

３．実施例

[0012] ＜１．接着剤組成物＞

本実施の形態に係る接着剤組成物は、エポキシ化合物と、アルミニウムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有するものである。これにより、優れたライフ性を得ることができる。これは、アルミニウムキレート剤のアルミニウムにヒンダードアミン系化合物の窒素原子が配位することにより、アルミニウムキレート剤が安定して存在しているためと考えられる。

[0013] ［エポキシ化合物］

エポキシ化合物としては、例えば、エピクロルヒドリンとビスフェノールＡ又はビスフェノールＦとから誘導されるビスフェノール型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ化合物、ポリグリシジルエーテル、ポリグリシジルエステル、芳香族エポキシ化合物、ノボラック型エポキシ化合物、グリシジルアミン系エポキシ化合物、グリシジルエステル系エポキシ化合物などが挙げられ、これらの１種又は２種以上を用いることができる。これらの中でも、後述するシラノレートアニオンによるβ位炭素へ付加反応が生じにくい水素添加エポキシ化合物又は脂環式エポキシ化合物を用いることが好ましい。

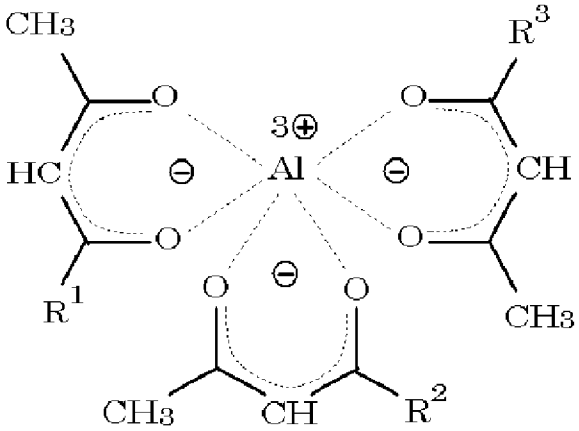
[0014] 水素添加エポキシ化合物としては、先述の脂環式エポキシ化合物の水素添加物、ビスフェノールＡ型、ビスフェノールＦ型などの公知のエポキシ化合物を水素化させた水素添加エポキシ化合物を使用することができる。脂環式エポキシ化合物としては、分子内に２つ以上のエポキシ基を有するものが好ましく挙げられる。これらは液状であっても、固体状であってもよい。具体的には、３，４－エポキシシクロヘキセニルメチル－３′，４′－エポキシシクロヘキセンカルボキシレート、グリシジルヘキサヒドロビスフェノールＡなどを挙げることができる。

[0015] これらの中でも、硬化物にＬＥＤ（Light Emitting Diode）素子の実装等に適した光透過性を確保でき、速硬化性にも優れている点から、水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂が好ましく使用される。水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂の市販品としては、例えばＹＸ－８０００、ＹＸ－８０３４（三菱化学社製）、ＥＸＡ－７０１５（ＤＩＣ社製）、ＳＴ３０００（東邦化成社製）などが挙げられ、これらの１種又は２種以上を用いることができる。

[0016] ［アルミニウムキレート剤］

アルミニウムキレート剤としては、公知のものを使用することができ、例えば、式（１）に表される、３つのβ－ケトエノラート陰イオンがアルミニウムに配位した錯体化合物を用いることが好ましい。

[0017] [化1]



(1)

[0018] ここで、Ｒ[1]、Ｒ[2]及びＲ[3]は、それぞれ独立的にアルキル基又はアルコキシル基である。アルキル基としては、メチル基、エチル基などが挙げられる。アルコキシル基としては、メトキシ基、エトキシ基、オレイルオキシ基などが挙げられる。

[0019] 式（１）で表されるアルミニウムキレート剤の具体例としては、アルミニウムトリス（アセチルアセトネート）、アルミニウムトリス（エチルアセトアセテート）、アルミニウムモノアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）、アルミニウムモノアセチルアセトネートビスオレイルアセトアセテート、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレートなどが挙げられる。

[0020] ［アルミニウムキレート潜在性硬化剤］

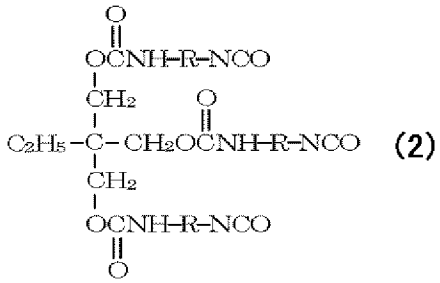
アルミニウムキレート剤は、多官能イソシアネート化合物を界面重合させて得た多孔性樹脂に保持されてなるアルミニウムキレート潜在性硬化剤であることが好ましい。このアルミニウムキレート潜在性硬化剤は、アルミニウムキレート剤が多孔性樹脂マトリックス中に存在する微細な多数の孔に保持されるため、接着剤組成物に直接配合し、一液化した状態でも、貯蔵安定性を大きく向上させることができる。

[0021] このアルミニウムキレート潜在性硬化剤は、アルミニウムキレート剤と多

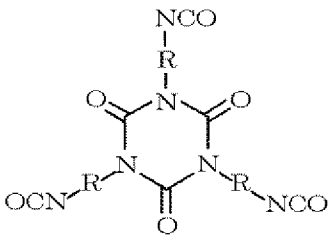
官能イソシアネート化合物とを揮発性有機溶剤に溶解させ、得られた溶液を、分散剤を含有する水相に投入し、加熱撹拌することにより界面重合させて得ることができる。具体的には、アルミニウムキレート剤とその２倍を超える重量の多官能イソシアネート化合物とを、アルミニウムキレート剤と多官能イソシアネート化合物との合計１００質量部に対し１００～５００質量部の低級アルキル酢酸エステルに溶解させ、得られた溶液の粘度を１～２．５ｍＰａ・ｓに調整し、その溶液を、分散剤を含有する水相に投入して加熱撹拌し、界面重合させることにより得ることができる。

[0022] 多官能イソシアネート化合物は、１分子中に２個以上のイソシアネート基を有することが好ましく、１分子中に３個のイソシアネート基を有することがより好ましい。３官能イソシアネート化合物としては、例えば、トリメチロールプロパン１モルにジイソシアネート化合物３モルを反応させた式（２）のＴＭＰアダクト体、ジイソシアネート化合物３モルを自己縮合させた式（３）のイソシアヌレート体、ジイソシアネート化合物３モルのうちの２モルから得られるジイソシアネートウレアに残りの１モルのジイソシアネートが縮合した式（４）のピュウレット体などが挙げられる。

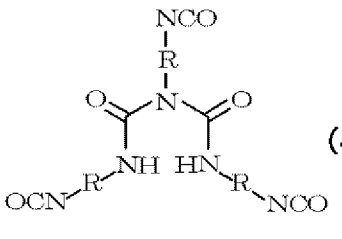
[0023] [化2]



(2)



(3)



(4)

[0024] 上記式（２）～（４）において、置換基Ｒは、ジイソシアネート化合物の

イソシアネート基を除いた部分である。このようなジイソシアネート化合物の具体例としては、トルエン２，４－ジイソシアネート、トルエン２，６－ジイソシアネート、ｍ－キシ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、ヘキサヒドロ－ｍ－キシリレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、メチレンジフェニル－４，４’－ジイソシアネートなどが挙げられる。

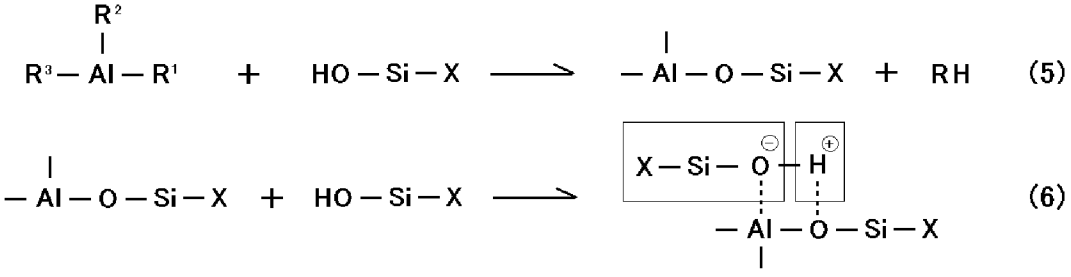
[0025] また、アルミニウムキレート剤は、多官能イソシアネート化合物を界面重合させると同時にジビニルベンゼンをラジカル重合させて得た多孔性樹脂に保持されてなるアルミニウムキレート潜在性硬化剤であることが好ましい。多官能イソシアネート化合物の界面重合の際にジビニルベンゼンを共存させることにより、発熱ピーク温度を低温側にシフトさせることができ、低温速硬化性を向上させることができる。

[0026] このアルミニウムキレート潜在性硬化剤は、アルミニウムキレート剤と、多官能イソシアネート化合物と、ラジカル重合性化合物と、ラジカル重合開始剤とを揮発性有機溶媒に溶解させ、得られた溶液を、分散剤を含有する水相に投入し、加熱撹拌することにより界面重合させて得ることができる。

[0027] ［アルミニウムキレート－シラノール硬化触媒系］

アルミニウムキレート剤は、下記式（５）、（６）に示すように、シラノール化合物やシランカップリング剤と共働して、カチオン種とアニオン種とを発生させ、エポキシ化合物をカチオン重合させるアルミニウムキレート－シラノール硬化触媒系であることが好ましい。

[0028] [化3]



[0029] シラノール化合物としては、例えば、式（７）で表されるアリールシランオールが挙げられる。

[0030] [化4]

$$(Ar)_mSi(OH)_n \qquad (7)$$

[0031] 式中、ｍは２又は３であり、但しｍとｎとの和は４である。式（７）で表されるシラノール化合物は、モノまたはジオール体となる。“Ａｒ”は、置換されてもよいアリール基である。アリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、アズレニル基、フルオレニル基、チエニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピリジル基等を挙げることができる。中でも、入手容易性、入手コストの観点からフェニル基が好ましい。ｍ個のＡｒは、いずれも同一でもよく異なっていてもよく、入手容易性の点から同一であることが好ましい。

[0032] これらのアリール基は、１～３個の置換基を有することができ、例えば、クロロ、ブロモ等のハロゲン；トリフルオロメチル；ニトロ；スルホ；カルボキシル、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル等のアルコキシカルボニル；ホルミル等の電子吸引基、メチル、エチル、プロピルなどのアルキル；メトキシ、エトキシ等のアルコキシ；ヒドロキシ；アミノ；モノメチルアミノ等のモノアルキルアミノ；ジメチルアミノ等のジアルキルアミノ等の電子供与基などが挙げられる。なお、置換基として電子吸引基を使用することによりシラノールの水酸基の酸度を上げることができ、逆に、電子供与基を使用することにより酸度を下げることができるので、硬化活性のコントロールが可能となる。ここで、ｍ個のＡｒ毎に、置換基が異なっていてもよいが、ｍ個のＡｒについて入手容易性の点から置換基は同一であることが好ましい。また、一部のＡｒだけに置換基があり、他のＡｒに置換基が無くてもよい。

[0033] 式（７）のシラノール化合物の中でも、好ましいものとして、トリフェニルシラノール又はジフフェニルシラノールが挙げられる。特に好ましいものは、トリフェニルシラノールである。

[0034] また、シラノール化合物を、多官能イソシアネート化合物を界面重合させて得た多孔性樹脂にアルミニウムキレート剤が保持されたアルミニウムキレート潜在性硬化剤、又は多官能イソシアネート化合物を界面重合させると同時にジビニルベンゼンをラジカル重合させて得た多孔性樹脂にアルミニウムキレート剤が保持されたアルミニウムキレート潜在性硬化剤に含浸させることが好ましい。アルミニウムキレート潜在性硬化剤にシラノール化合物を含浸させることにより、低温速硬化を向上させることができる。

[0035] シラノール化合物の含浸の方法としては、アルミニウムキレート系潜在性硬化剤を、有機溶媒（例えば、エタノール）中に分散させ、その分散液に式（７）のシラノール化合物（例えば、トリフェニルシラノール）及び必要に応じてアルミニウムキレート系硬化剤（例えば、モノアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）のイソプロパノール溶液）を投入し、室温～５０℃程度の温度で数時間～一晩撹拌を続ける方法を挙げることができる。

[0036] また、アルミニウムキレートーシラノール硬化触媒系は、シランカップリング剤を含んでもよい。シランカップリング剤は、アルミニウムキレート剤、特にアルミニウムキレート潜在性硬化剤と共働してカチオン重合を開始させる機能を有する。このようなシランカップリング剤としては、分子中に１～３の低級アルコキシ基を有し、分子中にカチオン重合性樹脂の官能基に対して反応性を有する基、例えば、ビニル基、スチリル基、アクリロイルオキシ基、メタクリロイルオキシ基、エポキシ基、アミノ基などを有することが好ましい。なお、アミノ基を有するカップリング剤は、アルミニウムキレートーシラノール硬化触媒系の発生カチオン種を実質的に捕捉しない場合に使用することができる。

[0037] このようなシランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリス（β－メトキシエトキシ）シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、γ－スチリルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、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、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、γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、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などが挙げられる。

[0038] シランカップリング剤の含有量は、少なすぎると添加効果が表れない傾向にあり、多すぎるとシランカップリング剤から発生するシラノレートアニオンによる重合停止反応の影響が生じてくるため、アルミニウムキレート系潜在性硬化剤１００質量部に対し１～３００質量部、好ましくは１～１００質量部である。

[0039] このようなアルミニウムキレート－シラノール硬化触媒系は、活性種としてカチオン種とアニオン種とが共存しているため、ライフ性が低いものの、ヒンダードアミン系化合物を配合することにより、優れたライフ性を得ることができる。これは、アルミニウムキレート剤のアルミニウムにヒンダードアミン系化合物の窒素原子が配位することにより、アルミニウムキレート剤が安定して存在しているためと考えられる。

[0040] ［ヒンダードアミン系化合物］

ヒンダードアミン系化合物は、接着剤組成物の発熱開始温度を高温側にシフトさせ、潜在性及びライフ性を向上させる。これは、ヒンダードアミン系化合物の窒素原子がアルミニウムキレート剤のアルミニウムに配位することにより、アルミニウムキレート剤が安定して存在しているためと考えられる。

[0041] ヒンダードアミン系化合物としては、例えば、２，２，６，６－テトラメチルピペリジン骨格を有するヒンダードアミン系光安定剤（ＨＡＬＳ：Hindered Amine Light Stabilizer）などが挙げられる。ヒンダードアミン系光安定剤としては、Ｎ－Ｈ型、Ｎ－Ｒ型、Ｎ－ＯＲ型などが挙げられる。

[0042] Ｎ－Ｈ型ヒンダードアミン系安定剤の具体例としては、テトラキス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）ブタン－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－５７）、ビス（２，２，６，６，－テトラメチル－４－ピペリジル）セバケート（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮ ７７０ＤＦ）、Ｎ，Ｎ’－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）－Ｎ，Ｎ’－ジホルミルヘキサメチレンジアミン（ＢＡＳＦ社製ＵＶＩＮＵＬ ４０５０ＦＦ）、ジブチルアミン・１，３，５－トリアジン・Ｎ，Ｎ’－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）－１，６－ヘキサメチレンジアミンとＮ－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）ブチルアミンの重縮合物（ＢＡＳＦ社製 Ｃｈｉｍａｓｓｏｒｂ ２０２０ＦＤＬ）、ポリ［｛６－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）アミノ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジイル｝｛（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ｝ヘキサメチレン｛（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ｝］（ＢＡＳＦ社製 Ｃｈｉｍａｓｓｏｒｂ ９４４ＦＤＬ）、オレフィン（Ｃ２０－Ｃ２４）・無水マレイン酸・４－アミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン共重合物（ＢＡＳＦ社製 ＵＶＩＮＵＬ ５０５０Ｈ）などが挙げられる。

[0043] Ｎ－Ｒ型ヒンダードアミン系安定剤の具体例としては、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）［［３，５－ビス（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシフェニル］メチル］ブチルマロネート（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮ １４４）、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）セバケート及びメチル１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルセバケート（混合物）（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮ ７６５）、コハク酸とジメチル－１－（２－ヒドロキシエチル）－４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン重縮合物、（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮ ６２２ＳＦ）、Ｎ，Ｎ’－ビス（３－アミノプロピル）エチレンジアミン－２，４－ビス［Ｎ－ブチル－Ｎ－（１，２，２，６

，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）アミノ］－６－クロロ－１，３，５－トリアジン縮合物（ＳＡＢＯ Ｓ．ｒ．Ｉ社製 ＳＡＢＯＳＴＡＢＵＶ １１９）、テトラキス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシラート（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－５２）、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル／トリデシル１，２，３，４ブタンテトラカルボキシラート（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－６２）、１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシリックアシッド，１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジノールと３，９－ビス（２－ヒドロキシ－１，１－ジメチルエチル）－２，４，８，１０テトラオキサスピロ〔５，５〕ウンデカンの混合エステル（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－６３）、テトラキス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸と、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジノールと、トリデシルアルコールとの縮合物（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－６３Ｐ）、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルメタクリレートなどが挙げられる。

[0044] Ｎ－ＯＲ型ヒンダードアミン系安定剤の具体例としては、ＮＯＲ型ヒンダードアミン系光安定剤システム（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮＸＴ ８５０ＦＦ）、ＮＯＲ型ヒンダードアミン系光安定剤システムを基本とする耐候安定剤システム（ＢＡＳＦ社製 ＴＩＮＵＶＩＮ ８５５ＦＦ）、過酸化処理した４－ブチルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジンと２，４，６－トリクロロ－１，３，５－トリアジン、及びシクロヘキサン、Ｎ，Ｎ’－エタン－１，２－ジイルビス（１，３－プロパンジアミン）との反応生成物（ＢＡＳＦ社製 Ｆｌａｍｅｓｔａｂ ＮＯＲ１１６ＦＦ）、ビス（１－ウンデカノキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－４－イル）カルボネート（ＡＤＥＫＡ（株）製 ＬＡ－８１）などが挙げられる。

[0045] 上述したヒンダードアミン系光安定剤は単独で、又は２種以上の混合物として用いることができる。これらの中でも、嵩高く、立体障害が大きい１，

２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物を用いることが好ましい。１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物としては、例えば、テトラキス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシラート（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－５２）、テトラキス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）ブタン－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－５７）、テトラキス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸と、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジノールと、トリデシルアルコールとの縮合物（ＡＤＥＫＡ社製 アデカスタブ ＬＡ－６３Ｐ）などが挙げられる。

[0046] １，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物を用いることにより、多官能イソシアネート化合物を界面重合させて得た多孔性樹脂にアルミニウムキレート剤が保持されたアルミニウムキレート潜在性硬化剤、又は多官能イソシアネート化合物を界面重合させると同時にジビニルベンゼンをラジカル重合させて得た多孔性樹脂にアルミニウムキレート剤が保持されたアルミニウムキレート潜在性硬化剤を用いた場合、接着剤組成物の発熱開始温度を高温側に大きくシフトさせることができる。これは、多孔性樹脂に保持されたアルミニウムキレート剤に嵩高いヒンダードアミン系化合物が配位することにより、安定化し、潜在性が向上したためと考えられる。

[0047] また、上記ヒンダードアミン系化合物は、光定剤及び酸化防止剤としての効果も有するため、後述する基板と発光素子とをフリップチップ実装する接着剤組成物として最適である。

[0048] また、ヒンダードアミン系化合物の含有量は、エポキシ化合物とアルミニウムキレート潜在性硬化剤との合計１００質量部に対して０．０５～２０質量部であることが好ましく、０．０５～１５質量部であることがより好ましい。ヒンダードアミン系化合物の含有量が少なすぎると、ライフ性の向上の効果が表れない傾向にあり、多すぎると反射率や光学特性が低下する傾向に

ある。

[0049] ［他の成分］

また、本実施の形態に係る接着剤組成物は、他の成分として、ＬＥＤからの出射光を反射し、高い光取り出し効率を得るため、TiO_2、ＢＮ、ＺｎＯ、Al_2O_3などの白色無機粒子を含有してもよい。また、白色無機粒子の平均粒径は、反射させる光の波長の１／２以上であることが好ましい。また、白色無機粒子の含有量は、バインダー成分に対して１～５０ｖｏｌ％、好ましくは５～２５ｖｏｌ％であることが好ましい。

[0050] また、流動性を制御し、粒子捕捉率を向上させるため、無機フィラーを含有してもよい。無機フィラーとしては、特に限定されないが、シリカ、タルク、酸化チタン、炭酸カルシウム、酸化マグネシウム等を用いることができる。このような無機フィラーは、接着剤によって接続される接続構造体の応力を緩和させる目的によって適宜用いることができる。また、熱可塑性樹脂、ゴム成分等の柔軟剤等を配合してもよい。

[0051] また、接着剤組成物は、導電性粒子を含有する異方性導電接着剤であってもよい。導電性粒子としては、公知の導電性粒子を用いることができる。例えば、ニッケル、鉄、銅、アルミニウム、錫、鉛、クロム、コバルト、銀、金等の各種金属や金属合金の粒子、金属酸化物、カーボン、グラファイト、ガラス、セラミック、プラスチック等の粒子の表面に金属をコートしたもの、これらの粒子の表面に更に絶縁薄膜をコートしたもの等が挙げられる。樹脂粒子の表面に金属をコートしたものである場合、樹脂粒子としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリル樹脂、アクリロニトリル・スチレン（ＡＳ）樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、ジビニルベンゼン系樹脂、スチレン系樹脂等の粒子を用いることができる。また、導電性粒子の扁平変形に対する抵抗の上昇を抑制するため、樹脂粒子の表面をＮｉなどで被覆してもよい。これらの中でも、樹脂粒子の表面に金属層が形成された導電性粒子を用いることが好ましい。このような導電性粒子によれば、圧縮時に潰れやすく、変形し易いため、配線パターンとの接触面積を大きくすることができ

る。また、配線パターンの高さのバラツキを吸収することができる。

[0052] また、導電性粒子の平均粒径は、１μｍ以上１０μｍ以下であることが好ましく、より好ましくは１μｍ以上８μｍ以下である。また、導電性粒子の配合量は、接続信頼性及び絶縁信頼性の観点から、バインダー１００質量部に対して１質量部以上１００質量部以下であることが好ましい。

[0053] また、導電性粒子とはんだ粒子とを併用することが好ましい。はんだ粒子は、導電性粒子よりも平均粒径が小さいことが好ましく、はんだ粒子の平均粒径は、導電性粒子の平均粒径の２０％以上１００％未満であることが好ましい。はんだ粒子が導電性粒子に対して小さすぎると、圧着時にはんだ粒子が対向する端子間に捕捉されず、金属結合しないため、優れた放熱特性及び電気特性を得ることができない。一方、はんだ粒子が導電性粒子に対して大きすぎると、例えばＬＥＤチップのエッジ部分ではんだ粒子によるショルダータッチが発生してリークが発生し、製品の歩留りが悪くなる。

[0054] はんだ粒子は、例えばＪＩＳ Ｚ ３２８２－１９９９に規定されている、Ｓｎ－Ｐｂ系、Ｐｂ－Ｓｎ－Ｓｂ系、Ｓｎ－Ｓｂ系、Ｓｎ－Ｐｂ－Ｂｉ系、Ｂｉ－Ｓｎ系、Ｓｎ－Ｃｕ系、Ｓｎ－Ｐｂ－Ｃｕ系、Ｓｎ－Ｉｎ系、Ｓｎ－Ａｇ系、Ｓｎ－Ｐｂ－Ａｇ系、Ｐｂ－Ａｇ系などから、電極材料や接続条件などに応じて適宜選択することができる。また、はんだ粒子の形状は、粒状、燐片状などから適宜選択することができる。なお、はんだ粒子は、異方性を向上させるために絶縁層で被覆されていても構わない。

[0055] はんだ粒子の配合量は、１体積％以上３０体積％以下であることが好ましい。はんだ粒子の配合量が少なすぎると優れた放熱特性が得られなくなり、配合量が多すぎると異方性が損なわれ、優れた接続信頼性が得られない。

[0056] このような接着剤組成物において、示差熱分析法により昇温速度１０℃／ｍｉｎで測定した発熱開始温度は８０～９０℃であり、発熱ピーク温度は１００～１２０℃であり、反応終点温度は１８０～２２０℃であることが好ましい。ヒンダードアミン系化合物の添加により接着剤組成物の発熱開始温度を高温側にシフトさせることにより、潜在性を向上させ、優れた導通性を得

ることができる。

[0057] ＜２．発光装置＞

次に、本発明を適用した発光装置について説明する。図１は、発光装置の一例を示す断面図である。発光装置は、配線パターン１２を有する基板１１と、配線パターン１２の電極上に形成された異方性導電膜２０と、異方性導電膜２０上に実装された発光素子１３とを備え、異方性導電膜２０が、前述した異方性導電接着剤の硬化物からなる。この発光装置は、基板１１上の配線パターン１２と、発光素子１３としてＬＥＤ素子のｎ電極１４とｐ電極１５とのそれぞれに形成された接続用のバンプ１６との間に、前述の異方性導電接着剤を塗布し、基板１１と発光素子１３とをフリップチップ実装することにより得られる。

[0058] 本実施の形態では、前述した異方性導電接着剤を用いることにより、ヒンダードアミン系化合物の光定剤及び酸化防止剤としての効果が発揮され、高い反射率と優れた光学特性を得ることができる。

[0059] なお、必要に応じて、ＬＥＤ素子１３の全体を覆うように透明モールド樹脂で封止してもよい。また、ＬＥＤ素子１３に光反射層を設けてもよい。また、発光素子としては、ＬＥＤ素子の他、本発明の効果を損なわない範囲で公知の発光素子を使用することができる。

＜３．実施例＞

実施例

[0060] 以下、本発明の実施例について説明する。本実施例では、ヒンダードアミン系光安定剤を配合した異方性導電接着剤を作製した。そして、異方性導電接着剤の発熱開始温度、発熱ピーク温度、及び発熱終了温度を測定した。また、異方性導電接着剤の粘度ライフ、及び反射率について評価した。また、異方性導電接着剤を用いて基板上にＬＥＤチップを搭載させてＬＥＤ実装体を作製し、光学特性、及び電気特性について評価した。なお、本発明は、これらの実施例に限定されるものではない。

[0061] ［異方性導電接着剤の発熱開始温度及び発熱ピーク温度の測定］

示差熱分析装置（ＤＳＣ）を用いて、昇温速度１０℃／ｍｉｎにて異方性導電接着剤の発熱開始温度、発熱ピーク温度、及び発熱終点温度を測定した。なお、硬化特性に関し、発熱開始温度は硬化開始温度を意味しており、発熱ピーク温度は最も硬化が活性となる温度を意味しており、発熱終了温度は硬化終了温度を意味しており、ピーク面積は発熱量を意味している。

[0062] ［粘度ライフの測定］

ＨＡＡＫ社製のレオメータを用いて、作製直後の異方性導電接着剤の初期粘度を測定した。また、温度２５℃、湿度６０％の環境下に４８時間放置した異方性導電接着剤の粘度を測定した。そして、温度２５℃、湿度６０％の環境下に４８時間放置した異方性導電接着剤の粘度の初期粘度からの上昇率（倍）を算出した。

[0063] ［反射率の測定］

異方性導電接着剤をセラミックからなる白色板上に厚さ１００μｍとなるように塗布し、温度２００℃－時間６０ｓｅｃの条件で加熱して硬化させた。得られた初期の硬化物について、分光光度計を用いて波長４５０ｎｍの光に対する反射率（ＪＩＳ　Ｋ７１５０）を測定した。また、紫外線照射を１００時間行い、紫外線照射試験後の硬化物についても、同様に反射率を測定した。

[0064] ［ＬＥＤ実装体の作製］

異方性導電接着剤を導体（Ｎｉ（５．０μｍ）／Ａｕ（０．３μｍ）メッキ配線）間スペースが１００μｍピッチであるＬＥＤ実装用基板（セラミック基板）に塗布した後、電極が厚み３μｍのＡｕＳｎ合金で形成されている青色ＬＥＤチップ（Ｖｆ＝３．１Ｖ（Ｉｆ＝３５０ｍＡ）、サイズ：１．０ｍｍ×１．０ｍｍ）をアライメントして搭載し、熱圧着を行い、ＬＥＤ実装体を得た。熱圧着条件は、温度２００℃－時間６０ｓｅｃ－圧力１ｋｇ／ｃｈｉｐとした。

[0065] ［光学特性の測定］

積分球による全光束測定装置（ＬＥ－２１００、大塚電子株式会社製）を

用いて、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量（Ｉｍ）を測定した。また、温度８５℃、湿度８５％の環境下でＬＥＤ実装体をＩｆ＝３５０ｍＡで１０００時間点灯させた（信頼性試験）後、全光束量（Ｉｍ）を測定した。全光束量の測定条件はＩｆ＝３５０ｍＡ（定電流制御）とした。

[0066] ［電気特性の評価］

ＬＥＤ実装体の初期Ｖｆ値として、Ｉｆ＝３５０ｍＡ時のＶｆ値を測定した。また、温度８５℃、湿度８５％の環境下でＬＥＤ実装体をＩｆ＝３５０ｍＡで１０００時間点灯させた（信頼性試験）後、Ｉｆ＝３５０ｍＡ時のＶｆ値を測定した。導通性の評価は、Ｖｆ平均値を３．１０Ｖとし、Ｖｆ値が３．１５Ｖ未満であるＬＥＤ実装体の評価を「Ａ」とし、Ｖｆ値が３．１５Ｖ以上３．６Ｖ未満であるＬＥＤ実装体の評価を「Ｂ」とし、Ｖｆ値が３．６Ｖ以上であるＬＥＤ実装体の評価を「Ｃ」とした。

[0067] ＜実施例１＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－５２、ＡＤＥＫＡ社製）を１．０質量部配合し、バインダーを調整した。このバインダーに、平均粒径（Ｄ５０）５．５μｍの導電粒子（樹脂コア、Ａｕメッキ）２Ｖｏｌ％、平均粒径（Ｄ５０）５．０μｍのはんだ粒子（商品名：Ｍ７０５（Ｓｎ－３．０Ａｇ－０．５Ｃｕ）、ｍｐ：２１４℃、千住金属工業社製）５Ｖｏｌ％、及び平均粒径（Ｄ５０）０．２５μｍの酸化チタン１０Ｖｏｌ％を分散させ、異方性導電接着剤を作製した。

[0068] アルミニウムキレート潜在性硬化剤は、次のように製造した。先ず、蒸留水８００質量部と、界面活性剤（ニューレックスＲ－Ｔ、日本油脂（株））０．０５質量部と、分散剤としてポリビニルアルコール（ＰＶＡ－２０５、（株）クラレ）４質量部とを、温度計を備えた３リットルの界面重合容器に入れ、均一に混合した。この混合液に、更に、アルミニウムモノアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）の２４％イソプロパノール溶液

（アルミキレートＤ、川研ファインケミカル（株））１００質量部と、メチレンジフェニル－４，４´－ジイソシアネート（３モル）のトリメチロールプロパン（１モル）付加物（Ｄ－１０９、三井武田ケミカル（株））７０質量部と、ジビニルベンゼン（メルク社）３０質量部と、ラジカル重合開始剤（パーロイルＬ、日本油脂社）０．３０質量部とを、酢酸エチル１００質量部に溶解した油相溶液を投入し、ホモジナイザー（１００００ｒｐｍ／５分）で乳化混合後、８０℃で６時間界面重合させた。反応終了後、重合反応液を室温まで放冷し、界面重合粒子を濾過により濾別し、自然乾燥させた。これにより、アルミニウムキレート剤が、多官能イソシアネート化合物を界面重合させると同時にジビニルベンゼンをラジカル重合させて得た多孔性樹脂に保持されてなる粒径２μｍ程度の球状の潜在性硬化剤を１００質量部得た。

[0069] この潜在性硬化剤１０質量部を、アルミニウムモノアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）の２４％イソプロパノール溶液（アルミキレートＤ、川研ファインケミカル（株））４０質量部とトリフェニルシラノール２０質量部とエタノール４０質量部との混合液に投入し、４０℃で一晩撹拌を続け、濾過回収して乾燥し、トリフェニルシラノールが含浸したアルミニウムキレート系潜在性硬化剤を得た。

[0070] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８５℃、発熱ピーク温度は１１３℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６５％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は６３％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は７．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は７．０１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0071] ＜実施例２＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１

００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－５２、ＡＤＥＫＡ社製）を０．０５質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0072] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８５℃、発熱ピーク温度は１１３℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６５％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は６３％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は７．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は７．０１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0073] ＜実施例３＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－５２、ＡＤＥＫＡ社製）を１０．０質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0074] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８５℃、発熱ピーク温度は１１３℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６５％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は６３％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は７．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は７．０１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0075] ＜実施例４＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－５７、ＡＤＥＫＡ社製）を１．０質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施

例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0076] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８０℃、発熱ピーク温度は１１０℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．１倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６３％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は６１％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は６．９ｌｍであり、信頼性試験後の全光束量は６．８ｌｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0077] ＜実施例５＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－６３Ｐ、ＡＤＥＫＡ社製）を１．０質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0078] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８８℃、発熱ピーク温度は１１５℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．１倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６４％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は６２％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は６．９ｌｍであり、信頼性試験後の全光束量は６．９ｌｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0079] ＜実施例６＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、ヒンダードアミン系光安定剤（品名：ＬＡ－５２、ＡＤＥＫＡ社製）を２０．０質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0080] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は８５℃、発熱ピー

ク温度は１１３℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は１．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６０％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は５０％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は６．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は５．２１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0081] ＜比較例１＞

ヒンダードアミン系光安定剤を配合せずに、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0082] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は６０℃、発熱ピーク温度は１０５℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は４．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は６５％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は５５％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は７．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は５．５１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0083] ＜比較例２＞

水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（品名：ＹＸ８０００、三菱化学社製）９５質量部、及びアルミニウムキレート潜在性硬化剤５質量部の合計１００質量部に対して、アミン系硬化剤（２Ｅ４ＭＺ：２－エチル－４－メチルイミダゾール）を１．０質量部配合し、バインダーを調整した以外は、実施例１と同様にして異方性導電接着剤を作製した。

[0084] 表１に示すように、異方性導電接着剤の発熱開始温度は７０℃、発熱ピーク温度は１１０℃、反応終点温度は２０５℃であった。また、異方性導電接着剤の室温４８ｈの粘度上昇率は２．０倍であった。また、異方性導電接着剤の初期の反射率は５０％、ＵＶ照射１００ｈ後の反射率は３５％であった。また、ＬＥＤ実装体の初期の全光束量は５．０１ｍであり、信頼性試験後の全光束量は４．０１ｍであった。また、ＬＥＤ実装体の初期の導通性評価

はＡであり、信頼性試験後の導通性評価はＡであった。

[0085]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1	比較例2
ヒンダードアミン	種類	LA-52	LA-52	LA-52	LA-57	LA-63P	LA-52	—	2E4MZ
	配合量 [wt%]	1	0.05	10	1	1	20	—	1
導電粒子	粒径 [μm]	5.5	5.5	5.5	5.5	5.5	5.5	5.5	5.5
はんだ粒子	粒径 [μm]	5	5	5	5	5	5	5	5
白色無機フィラー	種類	TiO_2	TiO_2	TiO_2	TiO_2	TiO_2	TiO_2	TiO_2	TiO_2
	粒径 [μm]	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
DSC	反応開始温度 [℃]	85	85	85	80	88	85	60	70
	発熱ピーク温度 [℃]	113	113	113	110	115	113	105	110
	反応終点温度 [℃]	205	205	205	205	205	205	205	205
粘度ライフ	室温48hの粘度上昇率 [倍]	1.0	1.0	1.0	1.1	1.1	1.0	4.0	2.0
反射率	初期	65	65	65	63	64	60	65	50
	UV照射-100h	63	63	63	61	62	50	55	35
光学特性 全光束量 [lm]	初期	7.0	7.0	7.0	6.9	6.9	6.0	7.0	5.0
	85℃-85%RH-1000h点灯	7.0	7.0	7.0	6.8	6.9	5.2	5.5	4.0
電気特性 導通性	初期	A	A	A	A	A	A	A	A
	85℃-85%RH-1000h点灯	A	A	A	A	A	A	A	A

[0086] 比較例１のようにヒンダードアミン系光安定剤を配合しなかった場合、室温４８ｈの粘度上昇率は４．０倍であった。また、比較例２のようにアミン系硬化剤を配合した場合、室温４８ｈの粘度上昇率は２．０倍であった。一方、実施例１～６のようにヒンダードアミン系光安定剤を配合した場合、室温４８ｈの粘度上昇率は１．０～１．１倍であった。これは、アルミニウムキレート潜在性硬化剤中のアルミニウムキレートのアルミニウムにヒンダードアミン系光安定剤の窒素原子が配位し、安定化したためと考えられる。また、安定化は、実施例１と比較例１の比較より、ＤＳＣによる発熱熱開始温度が高温側にシフトしたことからもわかる。

[0087] また、実施例１～５のようにヒンダードアミン系光安定化剤の含有量が、エポキシ樹脂とアルミニウムキレート潜在性硬化剤との合計１００質量部に対して０．０５～１５質量部であることにより、ヒンダードアミン系光安定化剤による硬化物の着色による反射率の低下、及び光学特性の低下を抑制することができた。

符号の説明

[0088] １１　基板、１２　配線パターン、１３　発光素子、１４　ｎ電極、１５　ｐ電極、１６　バンプ、２０　異方性導電膜

請求の範囲

[請求項1] エポキシ化合物と、アルミニウムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有する接着剤組成物。

[請求項2] 前記アルミニウムキレート剤が、多官能イソシアネート化合物を界面重合させて得た多孔性樹脂に保持されてなるアルミニウムキレート潜在性硬化剤である請求項１記載の接着剤組成物。

[請求項3] 前記アルミニウムキレート剤が、多官能イソシアネート化合物を界面重合させると同時にジビニルベンゼンをラジカル重合させて得た多孔性樹脂に保持されてなるアルミニウムキレート潜在性硬化剤である請求項１記載の接着剤組成物。

[請求項4] 前記ヒンダードアミン系化合物の含有量が、前記エポキシ化合物と前記アルミニウムキレート潜在性硬化剤との合計１００質量部に対して０．０５～１５質量部である請求項２又は３記載の接着剤組成物。

[請求項5] 前記アルミニウムキレート潜在性硬化剤が、前記多孔性樹脂にシラノール化合物を含浸してなる請求項２又は３記載の接着剤組成物。

[請求項6] 前記アルミニウムキレート潜在性硬化剤が、前記多孔性樹脂にシラノール化合物を含浸してなる請求項４記載の接着剤組成物。

[請求項7] 示差熱分析法により昇温速度１０℃／ｍｉｎで測定した発熱開始温度が、８０～９０℃である請求項１乃至３のいずれか１項に記載の接着剤組成物。

[請求項8] 示差熱分析法により昇温速度１０℃／ｍｉｎで測定した発熱開始温度が、８０～９０℃である請求項４記載の接着剤組成物。

[請求項9] 示差熱分析法により昇温速度１０℃／ｍｉｎで測定した発熱開始温度が、８０～９０℃である請求項５記載の接着剤組成物。

[請求項10] 前記ヒンダードアミン系化合物が、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物である請求項１乃至３のいずれか１項に記載の接着剤組成物。

[請求項11] 前記ヒンダードアミン系化合物が、１，２，３，４－ブタンテトラ

カルボン酸の縮合物である請求項４記載の接着剤組成物。

[請求項12] 前記ヒンダードアミン系化合物が、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物である請求項５記載の接着剤組成物。

[請求項13] 前記ヒンダードアミン系化合物が、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸の縮合物である請求項７記載の接着剤組成物。

[請求項14] シランカップリング剤をさらに含有する請求項１又は２記載の接着剤組成物。

[請求項15] はんだ粒子と、導電性粒子と、白色無機粒子とをさらに含有する請求項１又は２記載の接着剤組成物。

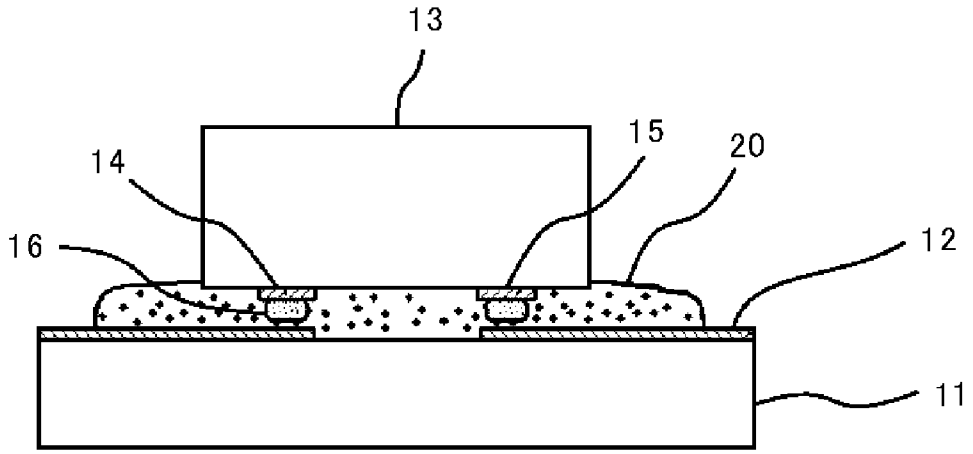
[請求項16] 配線パターンを有する基板と、

前記配線パターンの電極上に形成された異方性導電膜と、

前記異方性導電膜上に実装された発光素子とを備え、

前記異方性導電膜が、エポキシ化合物と、アルミニウムキレート剤と、ヒンダードアミン系化合物とを含有する異方性導電接着剤の硬化物である発光装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/087810

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C09J163/00(2006.01)i, *C09J9/02*(2006.01)i, *C09J11/04*(2006.01)i, *C09J11/06*(2006.01)i, *H01L21/60*(2006.01)i, *H01L33/60*(2010.01)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)
C09J1/00-201/10, C08L1/00-101/10, H01L21/60, H01L33/60

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 Y	JP 2014-148597 A (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 21 August 2014 (21.08.2014), claims; examples; paragraphs [0002], [0066] to [0071] & CN 103965581 A & KR 10-2014-0098679 A & TW 201431945 A	1,7,10,14 2-6,8-9, 11-13,15-16
Y	JP 2009-197206 A (Sony Chemical & Information Device Corp.), 03 September 2009 (03.09.2009), claims; paragraphs [0016], [0019] to [0021] & US 2010/0249338 A1 claims; paragraphs [0017], [0020] to [0022] & WO 2009/093364 A1 & CN 101925628 A & TW 200936633 A	2-6,8-9, 11-13,15-16

☒ 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
21 February 2017 (21.02.17)	28 February 2017 (28.02.17)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/087810

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 2015-098588 A (Dexerials Corp.), 28 May 2015 (28.05.2015), claims & WO 2015/056754 A1 & TW 201533212 A	15-16

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０８７８１０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09J163/00(2006.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H01L33/60(2010.01)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.　C09J1/00-201/10, C08L1/00-101/10, H01L21/60, H01L33/60

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 Y	JP 2014-148597 A (株式会社日本触媒) 2014.08.21 特許請求の範囲、実施例、[0002],[0066]-[0071] & CN 103965581 A & KR 10-2014-0098679 A & TW 201431945 A	1,7,10,14 2-6,8-9, 11-13,15-16

☑　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	国際調査報告の発送日
２１．０２．２０１７	２８．０２．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｚ　３３４３
牟田　博一

電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８０

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 2009-197206 A (ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社) 2009.09.03 特許請求の範囲、[0016],[0019]-[0021] & US 2010/0249338 A1, Claims, [0017],[0020]-[0022] & WO 2009/093364 A1 & CN 101925628 A & TW 200936633 A	2-6,8-9, 11-13,15-16
Y	JP 2015-098588 A (デクセリアルズ株式会社) 2015.05.28 特許請求の範囲 & WO 2015/056754 A1 & TW 201533212 A	15-16