

(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
2016年1月28日(28.01.2016)



(10) 国際公開番号
WO 2016/013403 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 73/10 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C08L 79/08 (2006.01) *H05B 33/02* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/069729
- (22) 国際出願日: 2015年7月9日(09.07.2015)
- (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 2014-150446 2014年7月24日(24.07.2014) JP
- (71) 出願人: デクセリアルズ株式会社 (DEXERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎一丁目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: 須永 友康 (SUNAGA, Tomoyasu); 〒3228503 栃木県鹿沼市上石川1078 デクセリアルズ株式会社内 Tochigi (JP). 石井 淳一 (ISHII, Junichi); 〒2748510 千葉県船橋市三山2-

2-1 学校法人東邦大学内 Chiba (JP). 長谷川 匡俊 (HASEGAWA, Masatoshi); 〒2748510 千葉県船橋市三山2-2-1 学校法人東邦大学内 Chiba (JP).

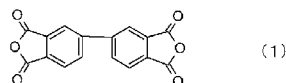
(74) 代理人: 廣田 浩一, 外 (HIROTA, Koichi et al.); 〒1510053 東京都渋谷区代々木1-24-1 OTSビル4階 山の手合同国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, 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.

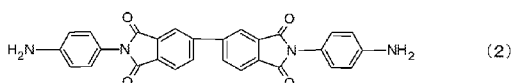
[続葉有]

(54) Title: POLYIMIDE, POLYAMIC ACID, RESIN COMPOSITION AND SUBSTRATE FOR FLEXIBLE DISPLAY

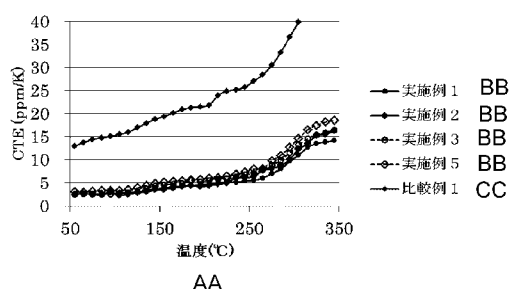
(54) 発明の名称: ポリイミド、ポリアミド酸、樹脂組成物、及びフレキシブルディスプレイ用基板



(1)



(2)



(57) Abstract: A polyimide obtained by reacting a tetracarboxylic acid component with a diamine component, wherein: the tetracarboxylic acid component contains a compound represented by structural formula (1); and the diamine component contains a compound represented by structural formula (2) in an amount of 60 mol% or greater.

(57) 要約: テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリイミドであって、前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式(1)で表される化合物を含有し、前記ジアミン成分が、下記構造式(2)で表される化合物を、60モル%以上含有するポリイミド。

AA Temperature (°C)
BB Example
CC Comparative Example



(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))

明 細 書

発明の名称：

ポリイミド、ポリアミド酸、樹脂組成物、及びフレキシブルディスプレイ用基板

技術分野

[0001] 本発明は、ポリイミド、及びポリアミド酸、並びにそれらを用いた樹脂組成物、及びフレキシブルディスプレイ用基板に関する。

背景技術

[0002] 耐熱性が高く、難燃性を有し、電気絶縁性に優れる有機材料として、ポリイミドが知られている（例えば、特許文献1参照）。

[0003] ポリイミドは、その特性を利用して、電気、電子材料分野において幅広く使用されている。具体的には、フレキシブル印刷配線版、耐熱性接着テープ等の基材として、半導体の絶縁皮膜、保護皮膜などに使用されている。

[0004] 一方、有機EL（Electro Luminescence）ディスプレイ、液晶ディスプレイなどの表示装置は、高精細が要求されてきた。加えて、近年では、表示装置の用途は、情報機器などへ拡大している。そして、超薄型、軽量化、及び折り曲げ可能といった要求を満たすために、プラスチックフィルムを基板として使用するフレキシブルディスプレイが注目されている。

[0005] ポリイミドは、前記フレキシブルディスプレイの基板への利用が期待されている。

前記フレキシブルディスプレイにおいては、その製造において、正確な位置合わせが要求される。また、製造時には、高温処理を行うことがある。そのため、前記フレキシブルディスプレイの基板には、高温処理を行っても膨張又は収縮が起こりにくいこと（いわゆる寸法安定性）が要求される。

[0006] ポリイミドの寸法安定性は、一般的に、線膨張係数により評価される。そこで、低い線膨張係数のポリイミドを作製する試みがされている（例えば、

特許文献2、及び非特許文献1参照)。しかし、前記フレキシブルディスプレイの基板としてポリイミドを用いる場合、フィルム厚は、 $20\mu\text{m}$ 程度であるが、その程度の厚みにおいて、ガラスに匹敵する低い線膨張係数を有するポリイミドは知られていない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2007-46054号公報

特許文献2：特開2007-99951号公報

非特許文献

[0008] 非特許文献1：Youngsuk Jung et al., European Polymer Journal 49 (2013) 3642-3650

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、従来における前記諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。即ち、本発明は、低い線膨張係数を有するポリイミド、及びその前駆体であるポリアミド酸、並びにそれらを用いた樹脂組成物、及びフレキシブルディスプレイ用基板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

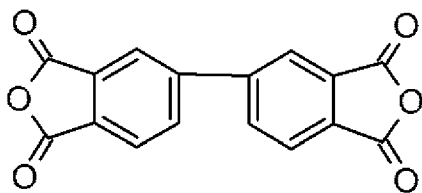
[0010] 前記課題を解決するための手段としては、以下の通りである。即ち、

<1> テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリイミドであって、

前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式(1)で表される化合物を含有し、

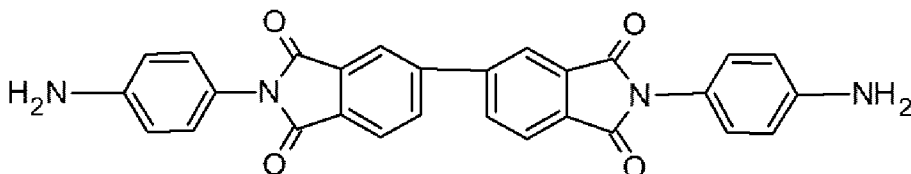
前記ジアミン成分が、下記構造式(2)で表される化合物を、60モル%以上含有することを特徴とするポリイミドである。

[化1]



構造式(1)

[化2]



構造式(2)

<2> 平均厚み $20\ \mu\text{m}$ のフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、 $2.00\ \text{ppm/K} \sim 7.00\ \text{ppm/K}$ である前記<1>に記載のポリイミドである。

<3> 平均厚み $20\ \mu\text{m}$ のフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、 $3.00\ \text{ppm/K} \sim 7.00\ \text{ppm/K}$ である前記<1>から<2>のいずれかに記載のポリイミドである。

<4> ジアミン成分が、構造式(2)で表される化合物を、95モル%以上含有する前記<1>から<3>のいずれかに記載のポリイミドである。

<5> テトラカルボン酸成分が、構造式(1)で表される化合物を、95モル%以上含有する前記<1>から<4>のいずれかに記載のポリイミドである。

<6> テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、 $1.00/1.00 \sim 0.96/1.00$ である前記<1>から<5>のいずれかに記載のポリイミドである。

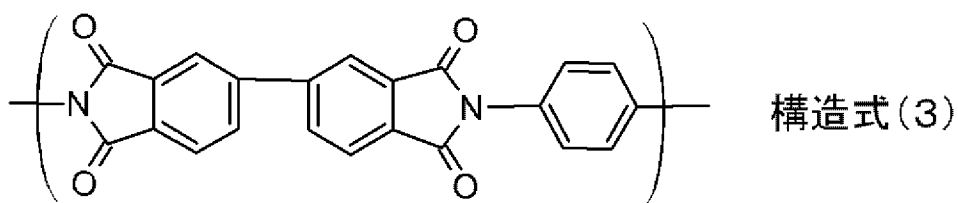
<7> テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、 $1.00/1.00 \sim 0.98/1.00$ である前記<1>から<6>のいずれかに記載のポリイミドである。

<8> 下記構造式(3)で表される繰り返し単位を有するポリイミドであって、

平均厚み $20\ \mu\text{m}$ のフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数

が、 $2.00 \text{ ppm/K} \sim 7.00 \text{ ppm/K}$ であることを特徴するポリイミドである。

[化3]



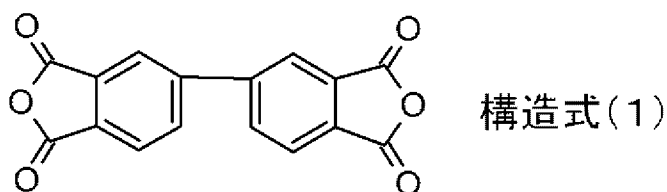
<9> フィルムの線膨張係数が、 $3.00 \text{ ppm/K} \sim 7.00 \text{ ppm/K}$ である前記<8>に記載のポリイミドである。

<10> 構造式(3)で表される繰り返し単位が、ポリイミドの繰り返し単位の総量に対して、90モル%以上である前記<8>から<9>のいずれかに記載のポリイミドである。

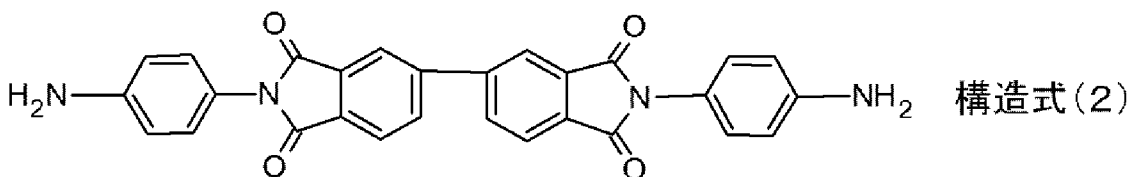
<11> テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られ、前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式(1)で表される化合物を含有し、

前記ジアミン成分が、下記構造式(2)で表される化合物を、前記ジアミン成分に対して、60モル%以上含有する前記<8>から<10>のいずれかに記載のポリイミドである。

[化4]



[化5]

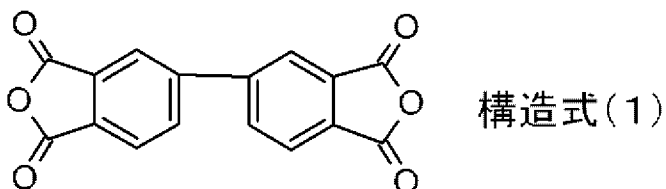


<12> テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリアミド酸であって、

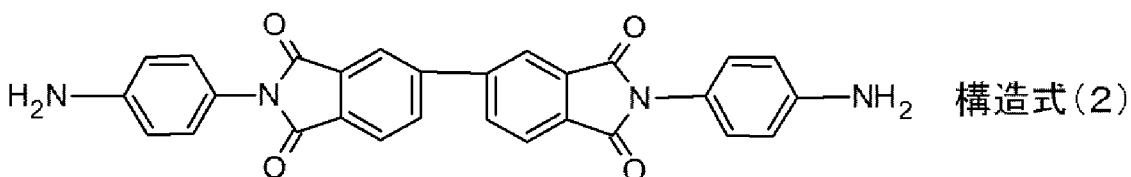
前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式（１）で表される化合物を含有し、

前記ジアミン成分が、下記構造式（２）で表される化合物を、６０モル％以上含有することを特徴とするポリアミド酸である。

[化6]



[化7]



< 1 3 > ジアミン成分が、構造式（２）で表される化合物を、９５モル％以上含有する前記< 1 2 >に記載のポリアミド酸である。

< 1 4 > テトラカルボン酸成分が、構造式（１）で表される化合物を、９５モル％以上含有する前記< 1 2 >から< 1 3 >のいずれかに記載のポリアミド酸である。

< 1 5 > テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、１．００／１．００～０．９６／１．００である前記< 1 2 >から< 1 4 >のいずれかに記載のポリアミド酸である。

< 1 6 > テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、１．００／１．００～０．９８／１．００である前記< 1 2 >から< 1 5 >のいずれかに記載のポリアミド酸である。

< 1 7 > ポリアミド酸を１０質量％含有する液の、２５℃で１ヶ月経過後の粘度が、１Ｐa・s以上である前記< 1 2 >から< 1 6 >のいずれかに記載のポリアミド酸である。

<18> 前記<1>から<11>のいずれかに記載のポリイミド、及び前記<12>から<17>のいずれかに記載のポリアミド酸のいずれかを含有することを特徴とする樹脂組成物である。

<19> 前記<1>から<11>のいずれかに記載のポリイミド、及び前記<12>から<17>のいずれかに記載のポリアミド酸のいずれかを含有することを特徴とするフレキシブルディスプレイ用基板である。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、従来における前記諸問題を解決し、前記目的を達成することができ、低い線膨張係数を有するポリイミド、及びその前駆体であるポリアミド酸、並びにそれらを用いた樹脂組成物、及びフレキシブルディスプレイ用基板を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、温度－CTEの関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0013] (ポリイミド)

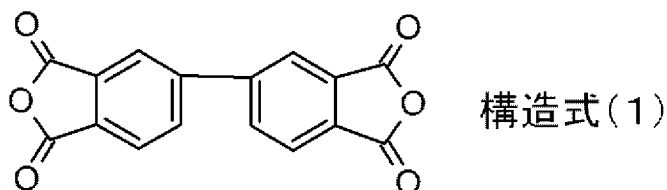
<第1のポリイミド>

本発明の第1のポリイミドは、テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリイミドである。

[0014] <<テトラカルボン酸成分>>

前記テトラカルボン酸成分は、下記構造式(1)で表される化合物を含有し、更に必要に応じて、その他の化合物を含有する。

[化8]



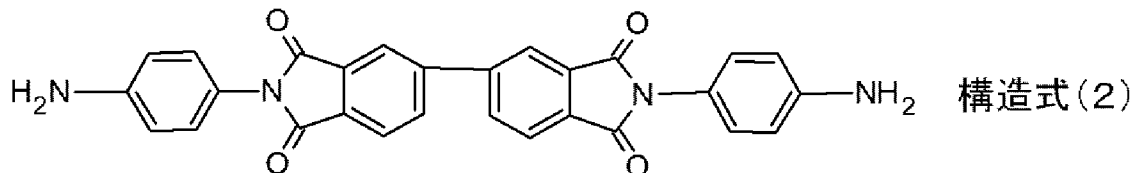
[0015] 前記テトラカルボン酸成分は、前記構造式(1)で表される化合物を、90モル%以上含有することが好ましく、95モル%以上含有することがより

好ましく、１００モル％含有することが特に好ましい。

[0016] <<ジアミン成分>>

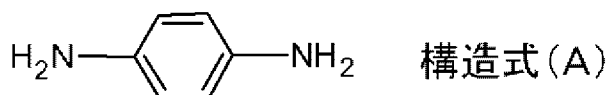
前記ジアミン成分は、下記構造式（２）で表される化合物を、６０モル％以上含有する。

[化9]



[0017] 前記構造式（１）で表される化合物と、下記構造式（Ａ）で表される化合物とを、反応させた場合、前記第１のポリイミドと似たポリイミドが得られる。しかし、そのポリイミドは、低い線膨張係数を得ることはできない。

[化10]



[0018] 前記ジアミン成分は、前記構造式（２）で表される化合物を、９５モル％以上含有することが好ましく、１００モル％含有することがより好ましい。

[0019] 前記第１のポリイミドにおける、前記テトラカルボン酸成分と、前記ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、１．００／１．００～０．９６／１．００が好ましく、１．００／１．００～０．９８／１．００がより好ましい。

[0020] 前記第１のポリイミドは、アミド酸を有していてもよい。前記第１のポリイミドにおける前記アミド酸の量としては、前記第１のポリイミドにおけるイミド基の１０モル％以下が好ましい。

[0021] 前記第１のポリイミドは、平均厚み２０μmのフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、２．００ppm／K～７．００ppm／Kであることが好ましく、３．００ppm／K～７．００ppm／Kであることがより好ましい。

前記線膨張係数は、熱機械分析（TMA）により求めることができる。

具体的には、熱機械測定装置（SII社製TMA／SS6100）を用いて、線膨張係数を算出する。まず、膜厚1 μm 当たり4.9 mNとなるようポリイミドのフィルムにテンションをかけ、窒素雰囲気下、30℃～150℃（昇温速度10℃／min）の処理を行い、吸着し得る水分の除去を行う。続いて、テンションを維持したまま、窒素雰囲気下で冷却の後、50℃～350℃（昇温速度5℃／min）で測定を行い、線膨張係数を算出する。線膨張係数は、100℃～200℃における算術平均値として算出する。

[0022] 前記第1のポリイミドは、例えば、前記テトラカルボン酸成分と、前記ジアミン成分とを、溶媒存在下で反応させてポリアミド酸を得た後に、前記ポリアミド酸をイミド化することにより得ることができる。

[0023] 前記溶媒としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、1-メチル-2-ピロリドン（NMP）、ジメチルアセトアミド（DMAc）などが挙げられる。

前記ポリアミド酸を得るときの反応温度としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、常温などが挙げられる。前記常温とは、20℃～30℃の温度である。

前記ポリアミド酸を得るときの反応時間としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、1日間～7日間などが挙げられる。

[0024] 前記イミド化は、例えば、前記ポリアミド酸を加熱することにより行うことができる（いわゆる熱イミド化）。

前記加熱における温度としては、例えば、200℃～400℃などが挙げられる。

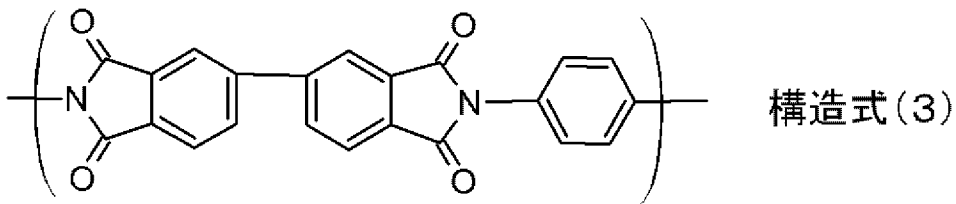
前記加熱における時間としては、例えば、1時間～5時間などが挙げられる。

[0025] <第2のポリイミド>

本発明の第2のポリイミドは、下記構造式（3）で表される繰り返し単位

を有する。

[化11]



[0026] 前記第2のポリイミドは、アミド酸を有していてもよい。前記第2のポリイミドにおける前記アミド酸の量としては、前記第2のポリイミドにおけるイミド基の10モル%以下が好ましい。

[0027] 前記第2のポリイミドは、平均厚み20 μ mのフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、2.00ppm/K $\sim$ 7.00ppm/Kであり、3.00ppm/K $\sim$ 7.00ppm/Kであることが好ましい。

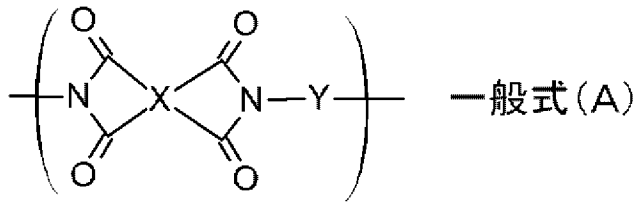
前記線膨張係数は、熱機械分析(TMA)により求めることができる。

具体的には、熱機械測定装置(SII社製TMA/SS6100)を用いて、線膨張係数を算出する。まず、膜厚1 μ m当たり4.9mNとなるようポリイミドのフィルムにテンションをかけ、窒素雰囲気下、30 $^{\circ}$ C $\sim$ 150 $^{\circ}$ C(昇温速度10 $^{\circ}$ C/min)の処理を行い、吸着し得る水分の除去を行う。続いて、テンションを維持したまま、窒素雰囲気下で冷却の後、50 $^{\circ}$ C $\sim$ 350 $^{\circ}$ C(昇温速度5 $^{\circ}$ C/min)で測定を行い、線膨張係数を算出する。線膨張係数は、100 $^{\circ}$ C $\sim$ 200 $^{\circ}$ Cにおける算術平均値として算出する。

[0028] 前記第2のポリイミドにおいて、前記構造式(3)で表される繰返し単位の量としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、前記第2のポリイミドの繰返し単位の総量に対して、90モル%以上が好ましく、95モル%以上がより好ましく、100モル%が特に好ましい。ここで、前記第2のポリイミドの繰返し単位とは、下記一般式(A)で表される繰返し単位を意味する。

[0029]

[化12]



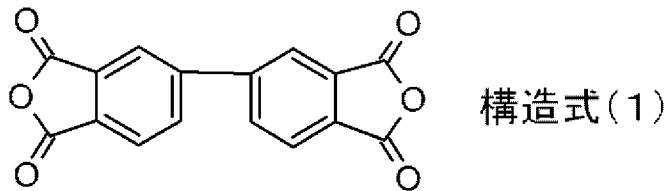
前記一般式(A)中、Xは、4価基を表し、Yは、2価基を表す。

[0030] 前記第2のポリイミドは、例えば、テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られる。

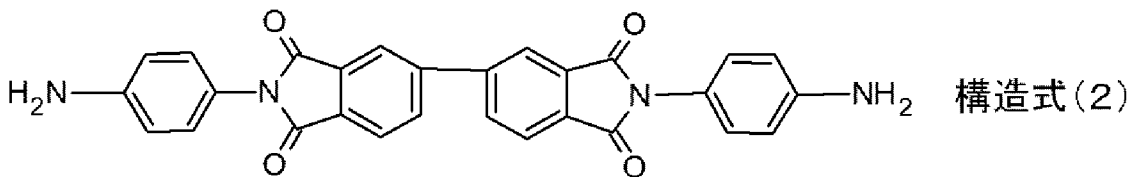
前記テトラカルボン酸成分は、下記構造式(1)で表される化合物を含有する。

前記ジアミン成分は、下記構造式(2)で表される化合物を、前記ジアミン成分に対して、60モル%以上含有することが好ましい。

[化13]



[化14]



[0031] 前記ジアミン成分は、前記構造式(2)で表される化合物を、95モル%以上含有することが好ましく、100モル%含有することがより好ましい。

[0032] 前記第2のポリイミドは、例えば、前記テトラカルボン酸成分と、前記ジアミン成分とを、溶媒存在下で反応させてポリアミド酸を得た後に、前記ポリアミド酸をイミド化することにより得ることができる。

[0033] 前記溶媒としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。例えば、1-メチル-2-ピロリドン(NMP)、ジメチルアセトアミド(DMAc)などが挙げられる。

前記ポリアミド酸を得るときの反応温度としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、常温などが挙げられる。前記常温とは、 $20^{\circ}\text{C}\sim 30^{\circ}\text{C}$ の温度である。

前記ポリアミド酸を得るときの反応時間としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、1日間～7日間などが挙げられる。

[0034] 前記イミド化は、例えば、前記ポリアミド酸を加熱することにより行うことができる（いわゆる熱イミド化）。

前記加熱における温度としては、例えば、 $200^{\circ}\text{C}\sim 400^{\circ}\text{C}$ などが挙げられる。

前記加熱における時間としては、例えば、1時間～5時間などが挙げられる。

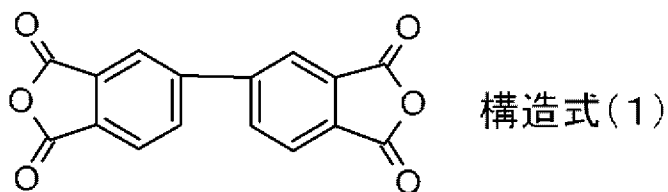
[0035] （ポリアミド酸）

本発明のポリアミド酸は、テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリアミド酸である。

[0036] ＜テトラカルボン酸成分＞

前記テトラカルボン酸成分は、下記構造式（1）で表される化合物を含有し、更に必要に応じて、その他の化合物を含有する。

[化15]

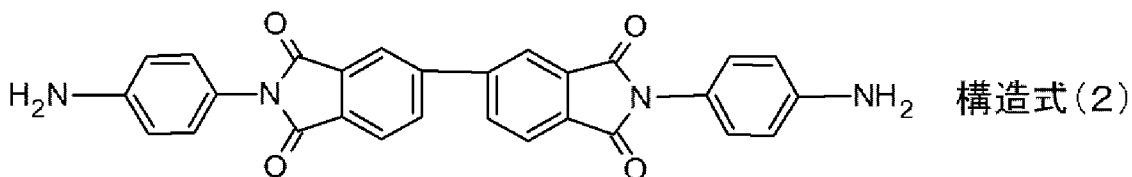


[0037] 前記テトラカルボン酸成分は、前記構造式（1）で表される化合物を、90モル%以上含有することが好ましく、95モル%以上含有することがより好ましく、100モル%含有することが特に好ましい。

[0038] ＜＜ジアミン成分＞＞

前記ジアミン成分は、下記構造式（2）で表される化合物を、60モル%以上含有する。

[化16]



[0039] 前記ジアミン成分は、前記構造式(2)で表される化合物を、95モル%以上含有することが好ましく、100モル%含有することがより好ましい。

[0040] 前記ポリアミド酸における、前記テトラカルボン酸成分と、前記ジアミン成分とのモル比率(テトラカルボン酸成分/ジアミン成分)としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、1.00/1.00~0.96/1.00が好ましく、1.00/1.00~0.98/1.00がより好ましい。

[0041] 前記ポリアミド酸を10質量%含有する液の、25℃で1ヶ月(30日)経過後の粘度としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、前記液の塗布性が優れる点で、1Pa・s以上が好ましい。

前記ポリアミド酸を含有する液における前記ポリアミド酸の濃度としては、10質量%程度であることが好ましい。前記濃度が、10質量%を大きく下回ると、厚く製膜することが難しくなり、10質量%を大きく上回ると、前記ポリアミド酸が溶解しにくくなる。

前記液における前記ポリアミド酸の溶媒としては、1-メチル-2-ピロリドン(NMP)が好ましい。

[0042] 前記ポリアミド酸は、例えば、前記テトラカルボン酸成分と、前記ジアミン成分とを、溶媒存在下で反応させて得られる。

[0043] 前記溶媒としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、1-メチル-2-ピロリドン(NMP)、ジメチルアセトアミド(DMAc)などが挙げられる。

前記反応温度としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、常温などが挙げられる。前記常温とは、20℃~30℃の温度である。

前記反応時間としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、1日間～7日間などが挙げられる。

[0044] (樹脂組成物)

本発明の樹脂組成物は、本発明の前記ポリイミド、及び本発明の前記ポリアミド酸のいずれかを含有し、更に必要に応じて、溶剤などのその他の成分を含有する。

前記樹脂組成物が前記ポリアミド酸を含有する場合、前記樹脂組成物は、イミド化触媒を含有することが好ましい。

[0045] <溶剤>

前記溶剤としては、例えば、m-クレゾール、2-ピロリドン、1-メチル-2-ピロリドン、1-エチル-2-ピロリドン、1-ビニル-2-ピロリドン、ジメチルアセトアミド、N,N-ジメチルホルムアミド、γ-ブチロラクトン、乳酸エチル、プロピレングリコール-1-モノメチルエーテル-2-アセタート (PGMEA)、トリグリムなどが挙げられる。これらの溶剤は、単独で又は2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0046] <イミド化触媒>

前記イミド化触媒としては、例えば、複素環式第3級アミン類、脂肪族第3級アミン類、芳香族第3級アミン類、脂肪族酸無水物、芳香族酸無水物などが挙げられる。

前記複素環式第3級アミン類としては、例えば、ピリジン、ピコリン、キノリン、イミダゾールなどが挙げられる。

前記脂肪族第3級アミン類としては、例えば、トリエチルアミンなどが挙げられる。

前記芳香族第3級アミン類としては、例えば、N,N-ジメチルアニリンなどが挙げられる。

前記脂肪族酸無水物としては、例えば、無水酢酸などが挙げられる。

前記芳香族酸無水物としては、例えば、フタル酸無水物などが挙げられる。

。

これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0047] <その他の成分>

前記その他の成分としては、例えば、架橋剤などが挙げられる。

[0048] <<架橋剤>>

前記架橋剤としては、例えば、エポキシ樹脂、メラミン樹脂などが挙げられる。

[0049] -エポキシ樹脂-

前記エポキシ樹脂としては、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、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂などが挙げられる。

[0050] (フレキシブルディスプレイ用基板)

本発明のフレキシブルディスプレイ用基板は、本発明の前記ポリイミド、及び本発明の前記ポリアミド酸のいずれかを含有し、更に必要に応じて、その他の成分を含有する。

[0051] <その他の成分>

前記その他の成分としては、例えば、フィラー、表面調整剤、滑剤などが挙げられる。

[0052] 前記フレキシブルディスプレイ用基板の平均厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、 $10\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ が好ましい。

[0053] 前記フレキシブルディスプレイ用基板は、単層構造であってもよいし、多層構造であってもよい。

[0054] 前記フレキシブルディスプレイ用基板の作製方法としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、液状の本発明の前記樹脂組成物を、塗布板の上に塗布し、乾燥し、前記塗布板から剥離してフィルムとする方法などが挙げられる。ただし、可撓性のある樹脂板を塗布板とし、前記塗布板の上に形成した膜を剥離せずに、前記塗布板も合わせてフレキ

シブルディスプレイ用基板としてもよい。

[0055] 前記塗布板としては、例えば、ガラス板、金属板、樹脂フィルムなどが挙げられる。

前記塗布の方法としては、例えば、ロールコーティング法、ドクターナイフ法、ダイコート法、ディップコート法、バーコーティング法などが挙げられる。

[0056] 前記樹脂組成物が、前記ポリアミド酸を含有する場合、塗布後は、適宜加熱を行って、熱イミド化を行ってもよい。前記熱イミド化の温度、及び時間としては、例えば、前記ポリイミドの作製における熱イミド化の温度、及び時間などが挙げられる。

[0057] 前記フレキシブルディスプレイ用基板を有するフレキシブルディスプレイとしては、例えば、有機ELディスプレイ、電子ペーパーなどが挙げられる。

[0058] 前記有機ELディスプレイの一例を説明する。前記有機EL素子は、少なくとも一方が透明である一対の陽極及び陰極からなる電極間に発光層を有する。そのような有機EL素子としては、例えば、以下の有機EL素子などが挙げられる。

(1) 前記陰極と前記発光層との間に、電子輸送層を設けた有機EL素子（陽極／発光層／電子輸送層／陰極）（「／」は各層が隣接して積層されていることを示す）

(2) 前記陽極と前記発光層との間に、正孔輸送層を設けた有機EL素子（陽極／正孔輸送層／発光層／陰極）

(3) 前記陰極と前記発光層との間に、電子輸送層を設け、かつ前記陽極と前記発光層との間に、正孔輸送層を設けた有機EL素子（陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極）

（陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極）で表される層構造を有するフレキシブル有機ELディスプレイは、例えば、透明又は不透明のフレキシブルディスプレイ用基板上に陽極を、透明又は不透明のフレキシブルデ

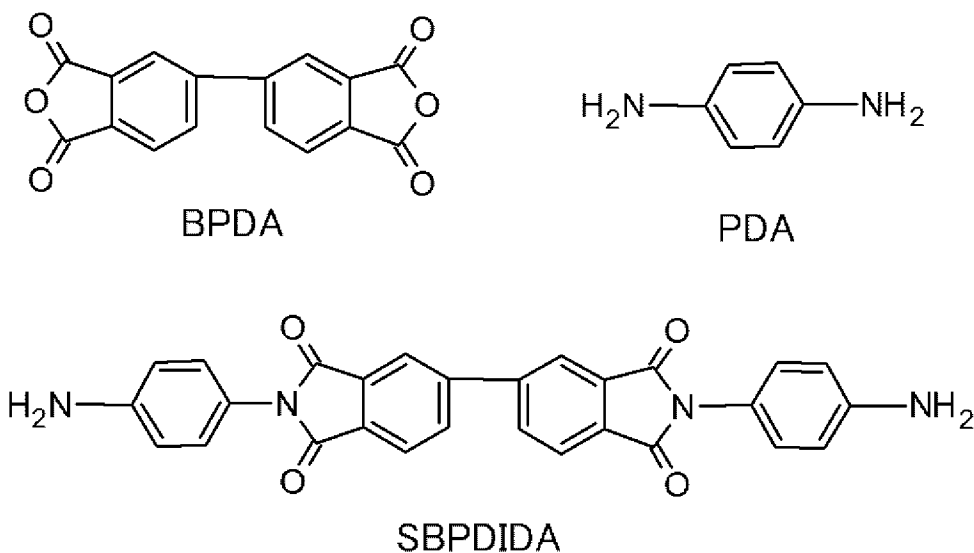
ィスプレイ用基板上に陰極を形成し（ただし、いずれか一方は透明）、前記陽極を形成したフレキシブルディスプレイ用基板上に、正孔輸送層、発光層、電子輸送層を順次成膜し、最後に陰極を形成したフレキシブルディスプレイ用基板を上記各層を挟むように電極が上記各側に向くようにして重ね、端部を封止して製造することができる。

実施例

[0059] 以下、本発明の実施例を説明するが、本発明は、これらの実施例に何ら限定されるものではない。

[0060] 以下の実施例、比較例では、下記構造式で表される化合物を使用した。これらの化合物については、下記略号を使用する。

[化17]



[0061]（製造例1）

<SBPDIDAの合成>

SBPDIDAは、Macromol. Chem. Phys. 200, 1879-1888 (1999)に記載の方法に従って、合成した。その方法を以下に示す。

窒素気流下、機械攪拌装置と冷却管とを備えた500mL四ツ口フラスコに、p-フェニレンジアミン（PDA）54.14g（500.6mmol）と1-メチル-2-ピロリドン（NMP）280gとを加え、60℃で加

熱、及び攪拌した。溶解を確認後、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) 14.71 g (50.00 mmol) を少量ずつ加えた。60℃で2時間加熱及び攪拌後、190℃で4時間加熱及び攪拌を行った。放冷後、析出したSBPDIDAを濾別し、エタノール500 mLで洗浄した。100℃の真空オーブンで12時間乾燥し、SBPDIDAを赤色結晶として単離した。収量20.93 g。収率88.2%。

[0062] (1) ^1H NMR (DMSO- d_6 , δ)

8.34 (d, $J=8.1\text{ Hz}$, 2H), 8.32 (s, 2H),
8.04 (d, $J=7.8\text{ Hz}$, 2H), 7.04 (d, $J=8.4\text{ Hz}$, 4H), 6.64 (d, $J=8.7\text{ Hz}$, 4H),
3.85 (brs, 4H)

(2) IR (KBr, cm^{-1}):

3438, 3328, 3215 (以上、NH伸縮),
1766, 1720 (以上、イミドカルボニル伸縮),
1516, 1383 (以上、芳香環伸縮)

(3) m. p. (DSC)

405℃-409℃

[0063] (実施例1)

<ポリアミド酸ワニスの調製>

<<ジアミン: SBPDIDA、テトラカルボン酸成分/ジアミン成分=1.00/1.00 (モル比)、固形分10質量%>>

BPDA 2.00 g (6.80 mmol)、SBPDIDA 3.23 g (6.80 mmol)、及びNMP 47.0 gを秤量し、100 mLのガラス瓶に入れた。ジャーミルにて室温で3日間攪拌し、ポリアミド酸ワニスを得た。

[0064] (実施例2)

<ポリアミド酸ワニスの調製>

<<ジアミン: SBPDIDA、テトラカルボン酸成分/ジアミン成分=0

、 98 / 1.00 (モル比)、固形分 10 質量% >>

BPDA 2.00 g (6.80 mmol)、SBPDIDA 3.29 g (6.93 mmol)、及び NMP 47.6 g を秤量し、100 mL のガラス瓶に入れた。ジャーミルにて室温で 3 日間攪拌し、ポリアミド酸ワニスを得た。

[0065] (比較例 1)

<ポリアミド酸ワニスの調製>

<<ジアミン : PDA、テトラカルボン酸成分 / ジアミン成分 = 1.00 / 1.00 (モル比)、固形分 10 質量% >>

BPDA 5.00 g (16.99 mmol)、PDA 1.84 g (6.99 mmol)、及び NMP 61.5 g を秤量し、100 mL のガラス瓶に入れた。ジャーミルにて室温で 3 日間攪拌し、ポリアミド酸ワニスを得た。

[0066] (比較例 2)

<ポリアミド酸ワニスの調製>

<<ジアミン : PDA、テトラカルボン酸成分 / ジアミン成分 = 0.98 / 1.00 (モル比)、固形分 10 質量% >>

BPDA 5.00 g (16.99 mmol)、PDA 1.88 g (17.38 mmol)、及び NMP 61.9 g を秤量し、100 mL のガラス瓶に入れた。ジャーミルにて室温で 3 日間攪拌し、ポリアミド酸ワニスを得た。

[0067] (比較例 3)

<ポリアミド酸ワニスの調製>

<<ジアミン : PDA / SBPDIDA (10 / 1 モル比)、テトラカルボン酸成分 / ジアミン成分 = 0.98 / 1.00 (モル比)、固形分 10 質量% >>

BPDA 5.00 g (16.99 mmol)、PDA 1.67 g (15.45 mmol)、SBPDIDA 0.73 g (1.54 mmol)、

及びNMP 66.63 gを秤量し、100 mLのガラス瓶に入れた。ジャーミルにて室温で3日間攪拌し、ポリアミド酸ワニスを得た。

[0068] (ポリイミド膜の作製)

得られたポリアミド酸ワニスを、ギャップを設けたガラス板上に流延した。このガラス板を所定の乾燥条件(表1-1、及び表1-2中に記載)で乾燥した。引き続き、250°C/1h+350°C/1hの条件でイミド化を行った。冷却後、得られたポリイミド膜をガラスから剥がし、単離した。ポリイミド膜に残った応力を解放するため、テンションがかからない状態で360°C/1hの熱処理を行い、ポリイミド膜を得た。

[0069] (TMA測定：線膨張係数(CTE)の測定)

熱機械測定装置(SII社製TMA/SS6100)を用いて、線膨張係数を算出した。まず、膜厚1 μ m当たり4.9 mNとなるようテンションをかけ、窒素雰囲気下、30°C~150°C(昇温速度10°C/min)の処理を行い、吸着し得る水分の除去を行った。続いて、テンションを維持したまま、窒素雰囲気下で冷却の後、膜厚1 μ m当たり4.9 mNとなるようテンションをかけ50°C~350°C(昇温速度5°C/min)で測定を行い、線膨張係数を算出した。結果を、表1-1、及び表1-2、並びに図1に示した。なお、表1-1、及び表1-2中の線膨張係数は、100°C~200°Cにおける算術平均値である。

[0070] [表1-1]

	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
使用ワニス	実施例 1	実施例 1	実施例 2	実施例 2	実施例 2	実施例 2	実施例 2
乾燥条件	60°C/4h	60°C/1h	60°C/4h	60°C/4h	60°C/1h	150°C/1.5h	150°C/1.5h
平均厚み (μ m)	20	22	22	10	20	20	10
CTE (ppm/K)	3.72	3.47	3.05	4.46	4.76	6.75	5.61

[0071]

[表1-2]

	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9
使用ワニス	比較例 1	比較例 1	比較例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3
乾燥条件	60°C/4h	60°C/1h	150°C/1.5h	150°C/1.5h	60°C/4h	60°C/4h
平均厚み (μm)	24	12	22	14	22	20
CTE (ppm/K)	18.9	5.34	14.2	5.14	19.5	14.0

[0072] 実施例 3、4 は、酸／アミン比が 1.00 の BPDA／SBPDI DA のワニスを用いた場合である。20 μm 程度の厚みがあるが、60°C 乾燥下で、それぞれ、3.72 ppm/K、3.47 ppm/K の線膨張係数を示した。

実施例 5～9 は、酸／アミン比が 0.98 の BPDA／SBPDI DA のワニスを用いた場合である。実施例 5 と 6 は同じ乾燥条件での厚み違いであるが、それぞれ、3.05 ppm/K、4.46 ppm/K であり、低い線膨張係数であった。

実施例 7 は、実施例 6 での乾燥時間を短縮した場合であるが、線膨張係数は、4.76 ppm/K であり、低い線膨張係数であった。

実施例 8 と 9 は同じ乾燥条件での厚み違いであるが、それぞれ、6.75 ppm/K、5.61 ppm/K であり、低い線膨張係数であった。

乾燥時間により線膨張係数が異なるのは、発現する凝集力に差が生じるためと考えられる。

[0073] 比較例 4～7 は、乾燥条件と、平均厚みとを変えた場合の比較例である。

比較例 1 のポリアミド酸ワニスから得られるポリイミドは、平均厚みが 10 μm 程度の場合は、5 ppm/K 程度の低い線膨張係数であるものの、20 μm 程度になると、線膨張係数が大きくなり、14 ppm/K を超えた。

比較例 9 は、ジアミンの大半に PDA を用いた場合である。この場合は、CTE を小さくすることはできず、14.0 ppm/K と大きな値を示した。

[0074] (粘度測定)

レオメーター（T A I n s t r u m e n t s 社 A R - G 2）を用い、25℃にて粘度を測定した。結果を、表2に示した。

[0075] [表2]

		実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
粘度 (Pa·s)	3日後	74.3	23.7	1.07	0.55
	9日後	33.2	10.9	0.26	0.10
	30日後	16.37	4.49	—	—
	53日後	14.33	3.94	—	—

[0076] 25℃での貯蔵53日経過後において、実施例1のポリアミド酸ワニス（ポリアミド酸含有量10質量％）の粘度は、14.33 Pa·sであり、実施例2のポリアミド酸ワニス（ポリアミド酸含有量10質量％）の粘度は、3.94 Pa·sであった。このことから、実施例1及び2のポリアミド酸ワニスは、53日経過後でも、製膜に十分な粘度を有していることが明らかになった。一方、SBPDIDAを用いなかった比較例1及び比較例2のポリアミド酸ワニス（ポリアミド酸含有量10質量％）の粘度は、9日経過後で0.3 Pa·s以下であり、製膜を行うには粘度が低いことが分かった。

[0077] 実施例3及び実施例5で作製したポリイミド膜について、以下の評価を行った。結果を表3に示した。

[0078] （体積抵抗率）

直径50mmの電極を備えたレジスティビティセルにポリイミド膜を挟み、ハイレジスタンスメーター（4339B：アジレント社）を用いて100V印加時の電流値より、体積抵抗率を算出した。尚、測定時の温度は、25℃であった。

[0079] （1％重量減少温度）

ポリイミド膜を、アルミパンに入れ、熱重量測定装置（TG／DTA6200 SII社製）を用いて測定した。温度範囲は30℃～550℃（昇温速度は5℃／min）、窒素雰囲気下で行った。

[0080] （貯蔵弾性率E'）

ポリイミド膜を、幅1cm、長さ3cmにカットし、動的粘弾性測定装置

(RSA3 TA社製)を用いて測定した。温度範囲は25℃～400℃(昇温速度は5℃/min)、印加周波数は1Hz、大気下で測定した。

[0081] (破断伸び、及び5%伸び応力)

ポリイミド膜を、幅1cm、長さ10cmにカットし、万能試験機(Autocom AC-50 TSE社製)を用いて、20mm/minにて引張試験を行い、応力-歪み曲線を得た。これより、破断伸び(%)と5%伸び応力(MPa)を得た。

[0082] [表3]

	実施例3	実施例5
体積抵抗率 @25℃	$3 \times 10^{15} \Omega \cdot m$	$1 \times 10^{15} \Omega \cdot m$
1%重量減少温度	550℃以上	550℃以上
貯蔵弾性率 (E') @30℃	8GPa	9GPa
破断伸び @25℃	14%	11%
5%伸び応力 @25℃	310MPa	300MPa

[0083] 体積抵抗率の測定結果から、本発明のポリイミドは、従来のポリイミドと同様に、 $10^{15} \Omega \cdot m$ 台の十分な絶縁性を有することが確認できた。

1%重量減少温度の測定結果から、本発明のポリイミドは、550℃でも1%の重量減少も無く、十分な耐熱性を有することが確認できた。なお、測定温度範囲が最大550℃であるのは、用いたアルミパンの融点による制約のためである。

貯蔵弾性率、破断伸び、及び5%伸び応力の測定結果から、本発明のポリイミドの膜は、十分な硬さと靱性を有する膜であることが確認できた。

産業上の利用可能性

[0084] 本発明のポリイミドは、低い線膨張係数を有することから、フレキシブルディスプレイの基板として、好適に用いることができる。

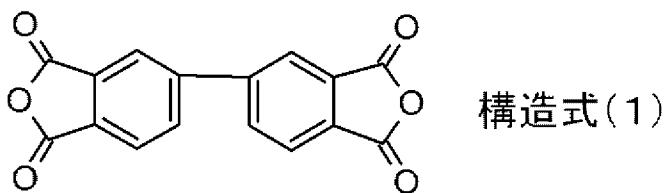
請求の範囲

[請求項1] テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリイミドであって、

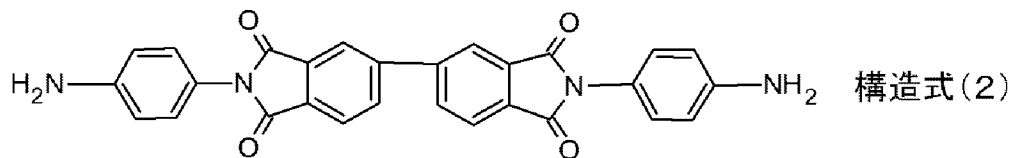
前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式（１）で表される化合物を含有し、

前記ジアミン成分が、下記構造式（２）で表される化合物を、６０モル％以上含有することを特徴とするポリイミド。

[化1]



[化2]



[請求項2] 平均厚み２０μmのフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、２．００ppm／K～７．００ppm／Kである請求項１に記載のポリイミド。

[請求項3] 平均厚み２０μmのフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、３．００ppm／K～７．００ppm／Kである請求項１から２のいずれかに記載のポリイミド。

[請求項4] ジアミン成分が、構造式（２）で表される化合物を、９５モル％以上含有する請求項１から３のいずれかに記載のポリイミド。

[請求項5] テトラカルボン酸成分が、構造式（１）で表される化合物を、９５モル％以上含有する請求項１から４のいずれかに記載のポリイミド。

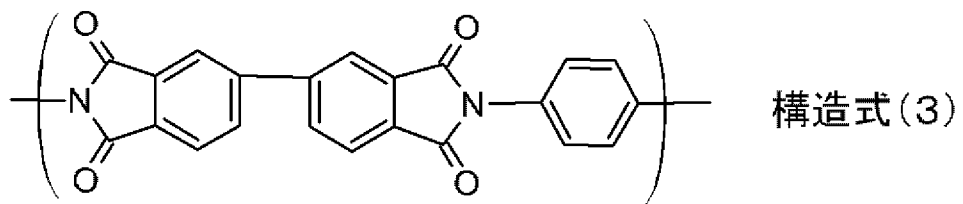
[請求項6] テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、１．００／１．００～０．９６／１．００である請求項１から５のいずれかに記載のポリイミド。

[請求項7] テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率（テトラカルボン酸成分／ジアミン成分）が、 $1.00/1.00 \sim 0.98/1.00$ である請求項1から6のいずれかに記載のポリイミド。

[請求項8] 下記構造式（3）で表される繰り返し単位を有するポリイミドであって、

平均厚み $20 \mu\text{m}$ のフィルムに成形した際の、前記フィルムの線膨張係数が、 $2.00 \text{ ppm/K} \sim 7.00 \text{ ppm/K}$ であることを特徴するポリイミド。

[化3]



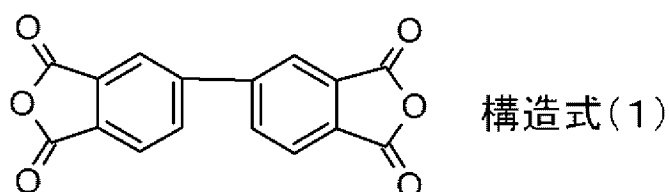
[請求項9] フィルムの線膨張係数が、 $3.00 \text{ ppm/K} \sim 7.00 \text{ ppm/K}$ である請求項8に記載のポリイミド。

[請求項10] 構造式（3）で表される繰り返し単位が、ポリイミドの繰り返し単位の総量に対して、90モル%以上である請求項8から9のいずれかに記載のポリイミド。

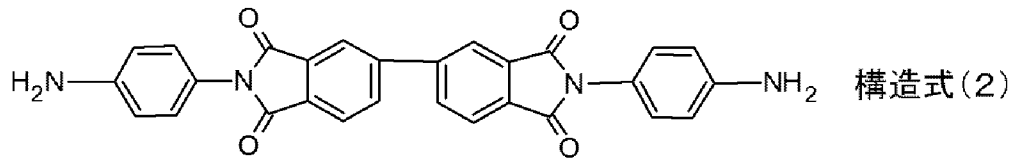
[請求項11] テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られ、
前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式（1）で表される化合物を含有し、

前記ジアミン成分が、下記構造式（2）で表される化合物を、前記ジアミン成分に対して、60モル%以上含有する請求項8から10のいずれかに記載のポリイミド。

[化4]



[化5]



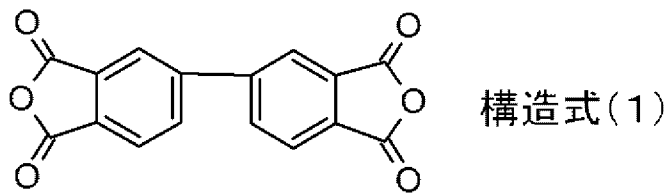
[請求項12]

テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とを反応して得られるポリ
アミド酸であって、

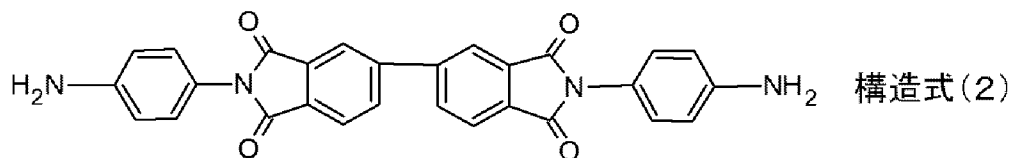
前記テトラカルボン酸成分が、下記構造式(1)で表される化合物
を含有し、

前記ジアミン成分が、下記構造式(2)で表される化合物を、60
モル%以上含有することを特徴とするポリアミド酸。

[化6]



[化7]



[請求項13]

ジアミン成分が、構造式(2)で表される化合物を、95モル%以
上含有する請求項12に記載のポリアミド酸。

[請求項14]

テトラカルボン酸成分が、構造式(1)で表される化合物を、95
モル%以上含有する請求項12から13のいずれかに記載のポリアミ
ド酸。

[請求項15]

テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率(テトラカル
ボン酸成分/ジアミン成分)が、1.00/1.00~0.96/1
.00である請求項12から14のいずれかに記載のポリアミド酸。

[請求項16]

テトラカルボン酸成分と、ジアミン成分とのモル比率(テトラカル
ボン酸成分/ジアミン成分)が、1.00/1.00~0.98/1

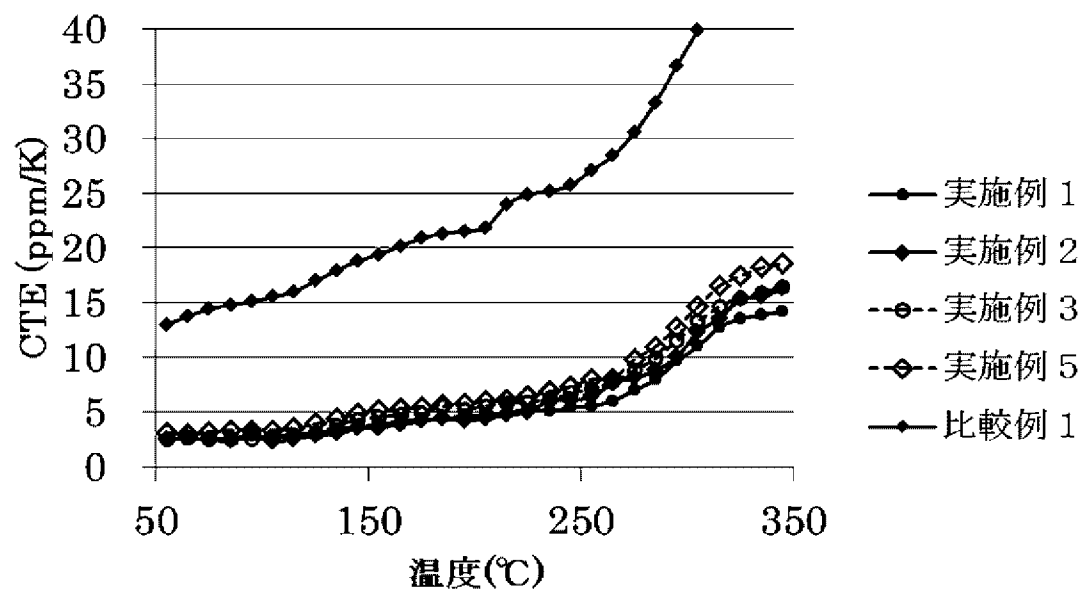
． 00である請求項12から15のいずれかに記載のポリアミド酸。

[請求項17] ポリアミド酸を10質量％含有する液の、25℃で1ヶ月経過後の粘度が、1 Pa・s以上である請求項12から16のいずれかに記載のポリアミド酸。

[請求項18] 請求項1から11のいずれかに記載のポリイミド、及び請求項12から17のいずれかに記載のポリアミド酸のいずれかを含有することを特徴とする樹脂組成物。

[請求項19] 請求項1から11のいずれかに記載のポリイミド、及び請求項12から17のいずれかに記載のポリアミド酸のいずれかを含有することを特徴とするフレキシブルディスプレイ用基板。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/069729

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G73/10(2006.01)i, C08L79/08(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(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)

C08G73/10-73/16

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)

CAlpha/REGISTRY (STN)

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 2011-68867 A (Du Pont-Toray Co., Ltd.), 07 April 2011 (07.04.2011), claims; paragraphs [0002] to [0008], [0015] to [0020]; synthesis example 5; example 5; paragraph [0067] & JP 2014-111788 A & KR 10-2011-0020198 A & TW 201107117 A & KR 10-2013-0080028 A & TW 201422412 A	1-18 19
Y A	WO 2013/047873 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 04 April 2013 (04.04.2013), paragraphs [0001] to [0005] & TW 201333113 A & JP 2013-847873 A	19 1-18



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

04 September 2015 (04.09.15)

Date of mailing of the international search report

15 September 2015 (15.09.15)

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/JP2015/069729

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2008-44229 A (Toyobo Co., Ltd.), 28 February 2008 (28.02.2008), claims; paragraphs [0001] to [0005], [0007] to [0040], [0052]; example 6; paragraph [0065] (Family: none)	1-18 19
X Y	JP 4-224824 A (International Business Machines Corp.), 14 August 1992 (14.08.1992), claims; paragraphs [0001], [0012], [0021] to [0022]; examples 1, 2; paragraphs [0058] to [0063] & US 5115090 A & EP 455571 A2	1-18 19
X A	JP 2009-67042 A (Ube Industries, Ltd.), 02 April 2009 (02.04.2009), claims; paragraphs [0001], [0008], [0046] to [0052] & JP 2010-149494 A & US 2011/0084419 A1 & US 2015/0035199 A1 & WO 2009/148060 A1 & KR 10-2011-0031293 A & CN 102112293 A & TW 201006875 A	1-18 19
X A	JP 2006-321229 A (Ube Industries, Ltd.), 30 November 2006 (30.11.2006), claims; paragraphs [0001], [0015] to [0036], [0048] to [0049], [0059] to [0101] & US 2009/0068454 A1 & WO 2006/112523 A1 & CN 101175633 A	1-18 19
A	JP 8-504197 A (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organization), 07 May 1996 (07.05.1996), claims; examples 1 to 4 & US 5708127 A & WO 1994/013670 A1 & AU 5619194 A & NZ 258489 A & CA 2150567 A	1-19
A	JP 9-188812 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 22 July 1997 (22.07.1997), entire text (Family: none)	1-19
A	JP 10-182607 A (Dainippon Ink and Chemicals, Inc.), 07 July 1998 (07.07.1998), entire text (Family: none)	1-19
P, A	JP 2014-152221 A (Ube Industries, Ltd.), 25 August 2014 (25.08.2014), entire text (Family: none)	1-19

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C08G73/10(2006.01)i, C08L79/08(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(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. C08G73/10-73/16			
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/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	
X Y	JP 2011-68867 A（東レ・デュポン株式会社）2011.04.07, 特許請求の範囲, [0002]-[0008], [0015]-[0020], 合成例5, 実施例5, [0067] & JP 2014-111788 A & KR 10-2011-0020198 A & TW 201107117 A & KR 10-2013-0080028 A & TW 201422412 A	1-18 19	
Y A	WO 2013/047873 A1（日産化学工業株式会社）2013.04.04, [0001]-[0005] & TW 201333113 A & JP 2013-847873 A	19 1-18	
☒ 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 0 4 . 0 9 . 2 0 1 5		国際調査報告の発送日 1 5 . 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） 内田 靖恵 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	4 J 9 5 5 3

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 Y	JP 2008-44229 A (東洋紡績株式会社) 2008.02.28, 特許請求の範囲, [0001]-[0005], [0007]-[0040], [0052], 実施例 6, [0065] (ファミリーなし)	1-18 19
X Y	JP 4-224824 A (インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コー ポレイション) 1992.08.14, 特許請求の範囲, [0001], [0012], [0021]-[0022], 実施例 1, 実施例 2, [0058]-[0063] & US 5115090 A & EP 455571 A2	1-18 19
X A	JP 2009-67042 A (宇部興産株式会社) 2009.04.02, 特許請求の範囲, [0001], [0008], [0046]-[0052] & JP 2010-149494 A & US 2011/0084419 A1 & US 2015/0035199 A1 & WO 2009/148060 A1 & KR 10-2011-0031293 A & CN 102112293 A & TW 201006875 A	1-18 19
X A	JP 2006-321229 A (宇部興産株式会社) 2006.11.30, 特許請求の範 囲, [0001], [0015]-[0036], [0048]-[0049], [0059]-[0101] & US 2009/0068454 A1 & WO 2006/112523 A1 & CN 101175633 A	1-18 19
A	JP 8-504197 A (コモンウェルス・サイエンティフィック・アンド・ インダストリアル・リサーチ・オーガニゼーション) 1996.05.07, 特 許請求の範囲, 実施例 1 - 実施例 4 & US 5708127 A & WO 1994/013670 A1 & AU 5619194 A & NZ 258489 A & CA 2150567 A	1-19
A	JP 9-188812 A (三井東圧化学株式会社) 1997.07.22, 全文 (ファミリーなし)	1-19
A	JP 10-182607 A (大日本インキ化学工業株式会社) 1998.07.07, 全 文 (ファミリーなし)	1-19
P, A	JP 2014-152221 A (宇部興産株式会社) 2014.08.25, 全文 (ファミリーなし)	1-19