(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
2009 年 9 月 24 日(24.09.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/116609 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 101/00 (2006.01) *C08K 5/45* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
C08K 5/109 (2006.01) *C08L 75/04* (2006.01)
C08K 5/41 (2006.01) *H05K 3/28* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/055389

(22) 国際出願日: 2009 年 3 月 19 日(19.03.2009)

(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 2008-072803 2008 年 3 月 21 日(21.03.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社(**SHOWA DENKO K. K.**) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大西 美奈 (**ONISHI, Mina**) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 大家 邦久, 外(**OHIE, Kunihisa** et al.); 〒1030013 東京都中央区日本橋人形町二丁目１４番６号 セルバ人形町６階 大家特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, 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**: RESIN COMPOSITION AND CURED FILM THEREOF

(54) 発明の名称: 樹脂組成物及びその硬化膜

(57) **Abstract**: Disclosed is a resin composition containing (A) a resin, (B) a filler and (C) a solvent. The solvent (C) contains at least one organic solvent selected from the group consisting of propylene carbonate, dimethylsulfoxide and sulfolane. A cured film obtained by curing the resin composition and use of the cured film as a over coat for electronic circuit boards or the like are also disclosed. The resin composition has a high filtration rate when prepared and has excellent productivity. A cured film obtained by curing the resin composition has excellent long-term electrical reliability and is useful in the fields of solder resists, electrical insulating materials such as interlayer insulating films, sealing materials for IC or ultra LSI, laminates and the like.

(57) 要約: 本発明は、樹脂（Ａ）、充填剤（Ｂ）、及び溶剤（Ｃ）を含む樹脂組成物であって、溶剤（Ｃ）がプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも１種類の有機溶剤を含む樹脂組成物、その樹脂組成物を硬化して得られる硬化膜、及びその硬化膜の電子回路基板用オーバーコート等に対する用途を提供する。本発明の樹脂組成物は調製時のろ過速度が速く生産性に優れ、硬化させて得られる膜は長期電気信頼性に優れ、ソルダーレジスト、層間絶縁膜等の電気絶縁材料、ＩＣや超ＬＳＩ封止材料、積層板等の分野において有用である。

WO 2009/116609 A1

明 細 書

樹脂組成物及びその硬化膜

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂と充填剤と溶剤からなる樹脂組成物に関する。さらに詳しく言えば、充填剤の分散性に優れ、電子回路基板用オーバーコート用等の樹脂組成物の調製時のろ過性が向上し、高い長期電気信頼性を有する電子回路基板用オーバーコート等を提供できる樹脂組成物、及びその樹脂組成物を硬化してなる硬化膜とその用途に関する。

背景技術

[0002] 従来、フレキシブル配線回路の表面保護膜としては、カバーレイフィルムと呼ばれるポリイミドフィルムを、パターンにあわせた金型で打ち抜いた後に接着剤を用いて貼りつけるタイプや、可撓性を持たせた紫外線硬化型、熱硬化型のオーバーコート剤が知られている。

[0003] 近年、電子機器の軽量小型化に伴い、フレキシブル基板も軽薄化が進み、配線のピッチサイズが著しく狭くなりオーバーコートする樹脂組成物中の充填剤の分散性の影響が、長期電気信頼性に対してより顕著に現れるようになってきた。そのため、オーバーコートする樹脂組成物の生産にあたっては、樹脂組成物中の充填剤の平均粒径を特定の範囲にするためのろ過工程が必須となるが、配線のピッチサイズにあわせて、ろ過孔径はより狭くなる傾向にある。狭いピッチでも長期電気信頼性を保持するためには、配線間の距離の半分以下のろ過孔径でオーバーコートする樹脂組成物をろ過することが望ましいが、その場合、ろ過速度が著しく劣り、生産性が低下するだけではなく、回収率も劣り経済的に大きな負担となる。そこで、充填剤の分散性を機械的な工程を変更することなく改善し、ろ過速度を上げて生産性を向上できるようにすることが望まれている。

[0004] 絶縁樹脂及びそれを用いた配線板で非プロトン性極性溶剤を用いた先行技術として、特開2007－77234号公報（特許文献1）は、シリカ（成分A）、エポキシ樹脂（成分B）、官能基としてエポキシ基またはアミノ基を有するシランカップリング剤（成分C）

、ジメチルホルムアミド（DMF）、Ｎ－メチル－２－ピロリドン（NMP）及びジメチルアセトアミド（DMAC）の少なくとも1種から選択される溶剤（成分D）を含む溶液（E）からなる絶縁樹脂組成物を開示しており、溶剤（D）をシリカ同士の凝集を防止する目的で使用している。

[0005] また、特開平4－249523号公報（特許文献2；米国特許第5395911号明細書）はプロピレンカーボネートを用いた熱硬化性混合物を開示し、その請求項1には、芳香族ジグリシジルエーテル類もしくは芳香族ポリグリシジルエーテル類と、ホルムアミド化合物とを含有するものを記載し、好ましい態様としてさらにシクロカーボネートを含有するものを記載し（請求項2）、シクロカーボネートの具体例としてプロピレンカーボネートを挙げている（請求項14）。しかし、特許文献2ではシクロカーボネートは専ら反応性希釈剤として用いられており、シクロカーボネートが充填剤の分散性を改善する旨の記載、及びそれを示唆する記載は全くない。

[0006] 特許文献1：特開2007－77234号公報

特許文献2：特開平4－249523号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 従って、本発明の課題は、樹脂と充填剤と溶剤からなる樹脂組成物において、充填剤の分散性を改善して樹脂組成物の調製時のろ過性を向上させ、生産性、長期電気信頼性に優れた硬化物を形成可能な樹脂組成物、特に電子回路基板用オーバーコート樹脂組成物及びソルダーレジストインキ用樹脂組成物を提供することにある。

また、本発明の他の課題は、前記樹脂組成物を硬化して得られる硬化膜、及びその硬化膜の、フレキシブルプリント配線板、チップ・オン・フィルム配線板、それら配線板を用いた電子機器等への用途を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、特許文献1に開示されているジメチルホルムアミド（DMF）、Ｎ－メチル－２－ピロリドン（NMP）及びジメチルアセトアミド（DMAC）以外の特定のプロトン性極性溶剤（プロピレンカーボネート、

ジメチルスルホキシド及びスルホラン)を必須成分として用いることにより、シリカ及び他の充填剤の分散性を向上させること、その結果樹脂組成物調製時のろ過性が向上し、電子回路基板用オーバーコート等を大規模に取り扱う工業的用途の樹脂組成物として極めて有利に使用でき、長期電気信頼性に優れた硬化膜を与える樹脂組成物が得られることを見出し、本発明を完成した。

[0009] すなわち、本発明は以下の事項に関する。

[1]樹脂(A)、充填剤(B)、及び溶剤(C)を含む樹脂組成物であって、溶剤(C)がプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤を含むことを特徴とする樹脂組成物。

[2]前記樹脂(A)が熱硬化性または紫外線硬化性樹脂である請求項[1]に記載の樹脂組成物。

[3]前記熱硬化性樹脂が、カルボキシル基含有ポリウレタン樹脂及び/またはエポキシ化合物である請求項[2]に記載の樹脂組成物。

[4]前記樹脂組成物中の固形分濃度が40～80質量%である請求項[1]～[3]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[5]前記溶剤(C)が、プロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド、及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤と樹脂(A)を溶解する他の溶剤との混合溶媒である請求項[1]に記載の樹脂組成物。

[6]前記樹脂組成物の25℃における粘度が、15,000～200,000mPa・sであり、かつ粒子径10～20μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な有効面積500cm^2のカートリッジフィルターを用い、40℃、0.4MPaで加圧ろ過したとき、初期ろ過速度が20g/分以上で、初期ろ過速度に対するろ過開始30分後のろ過速度の比率が70%以上である請求項[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[7]前記樹脂組成物の25℃における粘度が、15,000～200,000mPa・sであり、かつ粒子径5～10μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な有効面積600cm^2のカートリッジフィルターを用い、40℃、0.4MPaで加圧ろ過したとき、初期ろ過速度が20g/分以上で、初期ろ過速度に対するろ過開始30分後のろ過速度の比率が70%以上である請求項[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[8]前記充填剤(B)が、質量平均粒子径0．01～3μmの充填剤を含む請求項[1]に記載の樹脂組成物。

[9]前記充填剤(B)が、硫酸バリウム及び／またはシリカを含む請求項[1]または[8]に記載の樹脂組成物。

[10]請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物を硬化して得られることを特徴とする硬化膜。

[11]請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物を硬化してなることを特徴とする電子回路基板用オーバーコート。

[12]表面の一部もしくは全部が請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物の硬化膜で被覆されていることを特徴とするフレキシブルプリント配線板。

[13]表面の一部もしくは全部が請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物の硬化膜で被覆されていることを特徴とするチップ・オン・フィルム配線板。

[14]請求項[12]に記載のフレキシブルプリント配線板または請求項[13]に記載のチップ・オン・フィルム配線板を内蔵することを特徴とする電子機器。

[15]電子回路基板用オーバーコート用である請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[16]ソルダーレジストインキ用である請求項[1]～[9]のいずれかに記載の樹脂組成物。

発明の効果

[0010] 樹脂(A)、充填剤(B)、及びプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤を含む溶剤(C)を必須成分とする本発明の樹脂組成物によれば、充填剤(B)の分散性が改善され、樹脂組成物調製時のろ過速度が向上し、大規模な工業的用途において容易に取扱いができる。従って、充填剤が電子回路基板の配線間をまたがない実質的に均一な樹脂組成物を容易に製造することができ、得られた樹脂組成物はソルダーレジストインキ及び層間絶縁膜等の電気絶縁材料として用いられるオーバーコート用インキ、このインキを硬化させたフレキシブルプリント配線板、積層板等の長期電気信頼性に優れた硬化物として好適に利用できる。

発明を実施するための最良の形態

[0011] 以下、本発明に係る樹脂組成物について詳細に説明する。

本発明の樹脂組成物は、特に電子回路基板の表面保護膜として用いられる。このような用途の樹脂組成物には、絶縁性があること、長期電気信頼性に優れていること、耐久性があること、熱膨張率が低いことが求められる。このためには樹脂(A)に充填剤(B)を配合すること、及び電子回路基板上に塗膜を形成できる流動性を与える溶剤(C)を含むことが必須である。

[0012] 本発明者らは、樹脂組成物の固形分濃度が高く、かつ粘度が高い場合であっても、溶剤(C)として、少なくとも1種類の特定の非プロトン性極性溶剤を含むものを用いることによって充填剤(B)と樹脂(A)の親和性が高くなり樹脂組成物中での分散性が改善されることを見出し、さらに検討を進めた結果、非プロトン性極性溶剤の中でも、特に有機炭酸化合物(プロピレンカーボネート)と双極子モーメントをもつ非プロトン性溶剤(ジメチルスルホキシド及びスルホラン)が充填剤の分散効果が高いことを確認した。

ここで固形分とは、樹脂組成物を120℃で1時間、次いで150℃で2時間加熱したときの加熱残分を意味し、樹脂組成物が充填剤を含む場合はポリマーと充填剤が主成分となるが、厳密にはポリマー生成時の未反応モノマーをも含む。

[0013] 本発明者は、充填剤の分散性を向上ささせる溶剤を見出すべく、特許文献1に記載されているDMF、NMP及びDMA以外の溶剤について検討した。

有機炭酸化合物として、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジビニルカーボネート、ジ－n－プロピルカーボネート、ジイソプロピルカーボネート、ジ－sec－ブチルカーボネート、ジヘキサデシルカーボネート、ジ－2－エチルヘキシルカーボネート、ジシクロヘキシルカーボネート等について検討したところ、これらの中でも特にプロピレンカーボネートが好ましいことが判明した。プロピレンカーボネートは充填剤(B)の分散性が非常によいだけでなく、取扱い易いため大規模な工業的用途に有利に使用できる。

[0014] 本発明者らはさらに双極子モーメントをもつ非プロトン性溶剤として、クロロホルム、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン(THF)、ジオキサン、アセトン、アセトニトリル、

ニトロベンゼン、ニトロメタン、ピリジン、ジメチルホルムアミド（DMF）、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、スルホランについて検討した。その結果、これらの中でもジメチルスルホキシド及びスルホランが好ましいことが判明した。ジメチルスルホキシド及びスルホランは充填剤（B）の分散性が非常によいだけではなく、取扱い易いため大規模な工業的用途において有利に使用できる。

[0015] すなわち、本発明の樹脂組成物は、樹脂（A）、充填剤（B）、及び溶剤（C）を含む樹脂組成物であって、溶剤（C）がプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤を含むものである。

[0016] 溶剤（C）は、有機炭酸化合物としてプロピレンカーボネート、双極子モーメントをもつ非プロトン性溶剤としてジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤を含んでいれば特に制限はないが、樹脂（A）を溶解する他の溶剤を含んでいてもよい。

[0017] 本発明の樹脂組成物において、充填剤の分散性を向上させる目的で配合されるプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランのうち、ジメチルスルホキシドは硬化性樹脂組成物の溶剤として使用し、これを熱硬化する際に、特異な硫黄臭を生じるために、使用が限定されるおそれがあり、また、スルホランの場合は常温で固体であるため、予め他の溶剤と混合して常温で使用できるようにする必要がある。従って、これら溶剤のうちプロピレンカーボネートが最も有利であると言える。

[0018] 樹脂組成物中の固形分濃度は、40～80質量％であることが好ましい。樹脂組成物中の固形分濃度が40質量％未満の場合は、樹脂組成物の粘度が低くなり、結果として充填剤の濡れ性、分散性が向上し、ろ過速度を上げることが可能となるが、樹脂組成物の固形分濃度が下がるために表面保護膜として必要な膜厚が確保できないばかりでなく、樹脂組成物を電子回路基板に印刷した際に毛細現象によって印刷面以外の電子回路基板の配線間に樹脂組成物が流れ出すために印刷精度を確保できない。また、樹脂組成物の固形分濃度が下がり溶剤成分が増えると、表面保護膜形成時に溶剤が揮発しにくくなって溶剤が残存しやすくなり、後工程で溶剤が揮発して作業環境が悪化するおそれがある。樹脂に対する充填剤の添加量を増やして印刷時に起こる毛細管現象を抑える方法もあるが、表面保護膜としては脆くなり、割

れの発生や塗膜強度が低下するので好ましくない。

[0019] 一方、樹脂組成物の固形分濃度が80質量%を超えると、充填剤の濡れ性が劣り分散が困難となり好ましくない。樹脂に対する充填剤の添加量を下げてろ過性を向上させる方法もあるが、充填剤が担う本来の表面保護膜としての耐久性や低熱膨張化の効果が期待できなくなるため、好ましくない。

[0020] 本発明において、プロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランと混合して使用される、樹脂(A)を溶解する他の溶剤としては、樹脂の溶解性に優れ、かつ臭気が少なく取り扱いが容易であるグリコール骨格を持つ溶剤が挙げられる。具体例としては、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、カルビトールアセテート、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールメチルエーテルアセテート、エチルカルビトールアセテート、ブチルカルビトールアセテート等が挙げられる。その他の溶剤として、γ—ブチロラクトン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ニトロベンゼン、イソホロン、メトキシプロピオン酸メチル、エトキシプロピオン酸エチル、酢酸n－ブチル、N，N－ジメチルホルムアミド、n－メチルピロリドン等が挙げられる。

[0021] 本発明の樹脂組成物で用いられるプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランは、必ずしも樹脂(A)の良溶剤である必要はなく、前述のグリコール骨格を持つ溶剤、その他の溶剤と併用し混合溶剤として用いたときに、樹脂(A)が溶解するものであればよい。

[0022] プロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランの添加量は充填剤(B)の分散助剤として働く量であり、通常は樹脂組成物中の溶剤(C)全体の1～50質量%の範囲、充填剤100質量部に対して5～100質量部、好ましくは15～100質量部の範囲で用いることにより充填剤に対する分散性向上の効果が充分得られる。

[0023] 本発明の樹脂組成物に含まれる樹脂(A)としては、天然樹脂、変性樹脂またはオリゴマー合成樹脂等が挙げられる。

[0024] 天然樹脂の具体例としては、ロジン樹脂、ダンマル、マスチック、バルサム等が挙げられる。変性樹脂としては、ロジン樹脂誘導体、ゴム誘導体が挙げられる。オリゴマー合成樹脂としては、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、マレイン酸誘導体、ポリエステル樹

脂、メラミン樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミック酸樹脂、ポリイミド・アミド樹脂等が挙げられる。

[0025] 表面保護膜としての塗膜強度を保つためには、熱あるいは紫外線で硬化できる硬化性樹脂が好ましい。

[0026] 熱硬化性樹脂としては、カルボキシル基含有ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、あるいは酸無水物基、カルボキシル基、アルコール性基、アミノ基を含有する化合物とエポキシ化合物を反応させて得られる樹脂、カルボキシル基、アルコール性基、アミノ基を含有する化合物とカルボジイミドを反応させて得られる樹脂等が挙げられる。さらにポリアミック酸樹脂の特定部位にアルコキシシラン化合物を反応させて、イミドの閉環反応とアルコキシシランの加水分解と縮合により熱硬化を可能にしたポリイミドシリカハイブリット「HBAA－02」(荒川化学工業(株)製)等も挙げられる。

[0027] エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、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、脂環式エポキシ樹脂、N－グリシジル型エポキシ樹脂、ビスフェノールAのノボラック型エポキシ樹脂、キレート型エポキシ樹脂、グリオキザール型エポキシ樹脂、アミノ基含有エポキシ樹脂、ゴム変性エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンフェノリック型エポキシ樹脂、シリコーン変性エポキシ樹脂、ε－カプロラクトン変性エポキシ樹脂等の、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物から得られる樹脂が挙げられる。

[0028] また、塩素、臭素等のハロゲンや燐等の原子をその構造中に導入した難燃性のエポキシ樹脂を使用してもよい。さらに、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ジグリシジルフタレート樹脂、ヘテロサイクリックエポキシ樹脂、ビキシレノール型エポキシ樹脂、ビフェノール型エポキシ樹脂及びテトラグリシジルキシレノイルエタン樹脂等を使用してもよい。

[0029] エポキシ樹脂としては、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物を用いて得られるものが好ましいが、1分子中にエポキシ基を1個のみ有するエポキシ化合物を併用してもよい。エポキシ化合物あるいはカルボジイミドと組み合わせて

用いられるカルボキシル基を含有する化合物、アルコール性基を含有する化合物、アミノ基を含有する化合物としては特に限定されるものではなく、例えばアクリル系樹脂を重合する際、モノマー成分としてアクリル酸やメタクリル酸などのカルボキシル基を有するモノマー、あるいはヒドロキシアクリレートやヒドロキシメタクリレートなどのアルコール性基を有するモノマー、あるいはアリルアミンやアミノアルキルアクリレートなどのアミノ基を有するモノマーを使用して得られる重合物をあげることができる。

[0030] 紫外線硬化性樹脂としては、エチレン性不飽和基を2個以上含む化合物であるアクリル系共重合体、エポキシ(メタ)アクリレート樹脂、ウレタン(メタ)アクリレート樹脂等が挙げられる。

[0031] これらの樹脂(A)は、1種を単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。本発明においては、特にカルボキシル基含有ポリウレタン樹脂及び／またはエポキシ化合物が好ましく用いられる。

[0032] 電子回路基板をスクリーン印刷するために本発明の樹脂組成物を用いる場合には、特定範囲の粘度が必要である。すなわち、25℃の環境下、E型粘度計にてローター回転数1rpmで測定した粘度は、通常15，000～200，000mPa・sの範囲であり、20，000～190，000mPa・sの範囲が好ましい。粘度が15，000mPa・s未満であるとスクリーン印刷時の液ダレがひどく実用に耐えられない。一方、200，000mPa・sを超えると、スクリーン印刷のメッシュサイズを大きくする必要があり、そのために表面粗度が粗くなるために好ましくない。

[0033] 樹脂組成物中の固形分濃度が40～80質量%の範囲で、かつ粘度が15，000～200，000mPa・sの範囲の樹脂組成物中の充填剤(B)の分散性の評価を、測定原理上希釈倍率を高くせざるを得ない粒子径分布装置を用いて行うことは適当ではない。特に、本発明の樹脂組成物調製時のろ過性に関しては、充填剤(B)の粒子径だけでなく、粒子同士の凝集やフロキュレーションが大きく関与するため、濃度を変えずに評価することが好ましい。鋭意検討の結果、実際に樹脂組成物をろ過し、そのろ過速度とろ過寿命を測定して充填剤(B)の分散性を評価する必要のあることが判明した。

[0034] 測定装置としては、一般的なろ過装置が使用可能であるが、樹脂組成物が高粘度

でも対応できる加圧ろ過可能な装置が好ましく、フィルターはメンブレンよりは加圧ろ過に耐え得るカートリッジフィルターが好ましい。

[0035] 具体的な評価方法としては、樹脂組成物を、粒子径10～20μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な、有効面積500cm^{2}のカートリッジフィルター(MCP－7－C10E, ADVANTEC社製)を用い、40℃、0．4MPaで加圧ろ過をした際の、初期ろ過速度及びろ過流量の変化(ろ過寿命)を測定することで、実質上、充填剤(B)の分散性を評価できることが判明した。特に、初期ろ過速度は、初期ろ過速度をろ過開始から5分間の平均ろ過速度(g／分)とした場合に20g／分以上であり、かつろ過寿命はろ過開始30分後のろ過速度を測定し、初期ろ過速度との比率を求めたとき、70%以上であれば、樹脂組成物は大規模工業的用途で使用するのに必要な均質性が確保でき、生産性も確保できるが、70%を下回る場合には、十分な均質性が確保できず生産性が劣ることが判明した。

[0036] さらに、ろ過性の評価に用いるカートリッジフィルターを、粒子径5～10μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な、有効面積600cm^{2}のカートリッジフィルター(MCP－3－C10E, ADVANTEC社製)に代えて、同様に40℃、0．4MPaで加圧ろ過をした際の初期ろ過速度とろ過開始30分後のろ過速度の比率が70%以上であれば、さらに狭ピッチの電子回路基板に適用できることが判明した。

[0037] 本発明で用いられる充填剤(B)としては、例えば、無機担持体にシリコーンオイルを配合させてパウダー化したもの、ウレタン樹脂あるいはアクリル樹脂を粉末化したもの、硫酸バリウム、シリカ、タルク、炭酸カルシウム、アルミナ、ガラス粉、窒化ホウ素繊維等の繊維強化剤、合成雲母等が挙げられる。これらの充填剤は、1種を単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0038] 本発明で用いられる充填剤(B)は、質量平均粒子径が0．01～3μmであることが好ましい。充填剤の質量平均粒子径が前記範囲内であれば、ろ過工程において流量が確保でき、ろ過寿命をかせげるばかりでなく、一層ピッチサイズが狭い電子回路基板への適用が可能となる。充填剤の質量平均粒子径が0．01μm未満の場合には表面エネルギーが大きいために再凝集しやすく、また本来充填剤に求められる耐久性の付与に寄与しなくなる。一方3μmを超えるとろ過寿命が劣り、さらにはピッチ

サイズが狭い電子回路基板への使用が不適となる。

本発明に係る樹脂組成物における質量平均粒子径0．01～3μmの充填剤(B)の配合量は、通常、樹脂(A)固形分100質量部に対して5質量部～1000質量部であり、10～100質量部が好ましい。ここで、樹脂(A)固形分とは、樹脂(A)を含む充填剤未配合の樹脂溶液を120℃で1時間、次いで150℃で2時間加熱したときの加熱残分を意味する。

[0039] なお、本明細書における質量平均粒子径は、メタノールに測定する充填剤を1質量%加え、出力150Wの超音波ホモジナイザーで4分間分散した後、レーザー回折式光散乱式粒度分布計マイクロトラックSPA((株)日機装製)で測定して得られた累積50質量%径である。

[0040] 本発明の組成物では、充填剤(B)として硫酸バリウム及び／またはシリカを用いたときに、最も顕著な効果を示す。

[0041] 樹脂(A)、充填剤(B)、及び溶剤(C)を混合して発明の樹脂組成物を調製するに際しては、相溶性を良好にするために加温してもよい。また、樹脂(A)、充填剤(B)、溶剤(C)、その他、所望に応じて配合される硬化触媒、及び各種添加剤との混合には、例えば、ディスパー、ニーダー、3本ロールミル、ビーズミル等を用いて分散または混練した後、必要に応じてさらに樹脂溶液を加えて再び撹拌し樹脂組成物としてもよい。

[0042] 本発明の樹脂組成物には、用途に合わせて、公知の各種添加剤、例えば、有機顔料等の着色剤、ヒンダードアミン系等の酸化防止剤、ベンゾフェノン系化合物等の紫外線吸収剤、粘度調整剤、抗菌剤、抗黴剤、帯電防止剤、可塑剤、滑剤、発泡剤、消泡剤、レベリング剤、相溶化剤等を配合してもよい。

[0043] 本発明の樹脂組成物を、例えば基板上にスクリーン印刷で塗布し、約80℃で30分程度乾燥した後、100～150℃で1～2時間加熱して硬化することにより、電子回路基板用オーバーコート用として好ましく用いられる硬化膜を得ることができる。

本発明に係る電子回路基板用オーバーコート用樹脂組成物は、プリント配線板等の配線間の絶縁性を確保する目的で配線板等の表面に施される絶縁保護皮膜を形成するために用いられる。また、電子回路基板用オーバーコートは電気的絶縁性を

目的として、対象物上に塗布した後、溶剤を揮発させること及び／または光硬化、熱硬化を行うことにより対象物上の塗膜として形成されるだけでなく、別途形成した皮膜を対象物に貼り合せることもできる。

[0044] プリント配線板とは、基材上に、銅等の金属配線を施した基板表面を、絶縁保護皮膜が覆った構造体を指す。基材としては、エポキシ樹脂ガラス布（または不織布）複合基材、エポキシ樹脂紙複合基材、フェノール樹脂紙複合基材、ビスマレイミド・トリアジン（BT）樹脂ガラス布（または不織布）複合基材、ポリエチレンテレフタレート樹脂（PET）基材、ポリイミド樹脂基材、液晶ポリマー基材、ガラス基材等が用いられる。金属配線は、基材の両側もしくは片側に配され、両側に配される場合は、スルーホール構造等を介して、両側の配線が部分的に繋がっている構成のものもある。配線は基材上に直接形成される場合と、接着剤等を介して接着されている場合とがある。また、部分的に基材が除去され、配線が単独で存在する、いわゆるフライングリード構造を有するものも、配線板に含まれる。配線には、その表面の一部または全部が金メッキや錫メッキ等のメッキ処理を施されているものも含まれる。

[0045] 本発明の樹脂組成物は、フレキシブルプリント配線板に用いることができる。フレキシブルプリント配線板とは、プリント配線板中で、基板を折り曲げることができる配線板である。具体的には、ポリエチレンテレフタレート樹脂（PET）基材、ポリイミド樹脂基材、液晶ポリマー基材等の樹脂フィルムを基材に用いたプリント配線板が挙げられる。

[0046] 本発明の樹脂組成物を硬化して得られる膜は、チップ・オン・フィルム（COF）配線板に用いることができる。チップ・オン・フィルム（COF）とは、フレキシブルプリント配線板の1種類であり、ポリイミド樹脂等の樹脂フィルム上に銅配線を配し、表面が絶縁保護皮膜で被覆され、配線板上にICやLSI等のチップを実装した構造を有するものである。

[0047] 従って、チップ・オン・フィルム（COF）はICやLSI等のチップを実装する絶縁保護皮膜で被覆された配線部位と、信号を入力または出力する絶縁保護皮膜を有しない配線部位とを有する構造を備えている。本発明に係る硬化物が特に効果を発揮するチップ・オン・フィルム（COF）の形態としては、基材としてポリイミド樹脂を用い、その

上の片面に銅配線を接着剤等を介さずに配し、さらにその銅配線の表層の一部または全部が錫メッキにて被覆され、ICやLSI等のチップを実装する部位は、ポリイミド樹脂基材の上に配線を配している構造(フライングリードの構造ではないもの)を持つものである。例えば、液晶テレビ、プラズマテレビ、液晶モニター、パーソナルコンピューター等の液晶画面等のフラットパネルディスプレイの駆動用ドライバーIC(LSI)を搭載する回路基板に用いられる。

[0048] これらのチップ・オン・フィルム(COF)は、画面の高解像度化に伴い、ICやLSI等のチップのピン数が増え、それに伴って駆動用ドライバーとして基板の配線間の距離がますます小さくなる方向性にあり、表面保護膜を形成する樹脂組成物には一層高いろ過効率が求められている。また、現在、30μmから40μmピッチ(配線幅と配線間距離とを足したもの)のチップ・オン・フィルム(COF)が量産されているが、今後、25μmピッチや20μmピッチのデザインの投入が予定されており、微細な配線、及び配線間や配線上の絶縁保護皮膜の長期電気信頼性が必須の課題となっている。本発明の樹脂組成物は、これらの課題に応え得る樹脂組成物である。

実施例

[0049] 以下、本発明を、合成例、実施例及び比較例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0050] [ろ過性の評価方法]

得られた樹脂組成物をPPプリーツコンパクトカートリッジフィルターMCP－3－C10S(公称孔径3μm、粒子径5～10μmの粒子捕捉効率98%、ADVANTEC社製)を用いて、0.4MPa(40℃)で加圧ろ過した際に、初期流量(ろ過開始から5分以内の平均値:g／分)に対する30分後の流量(g／分)の変化を測定し、下記の基準により評価した。

◎:初期ろ過速度が25g／分を上回り、30分後の流量が初期流量と比較して70%以上である、

○:初期ろ過速度が20～25g／分で、30分後の流量が初期流量と比較して70%以上である、

△:30分後の流量が初期流量と比較して50%以上70%未満の範囲である、

×:30分後の流量が初期流量と比較して50%未満である。

[0051] [印刷条件]

市販の基板(IPC規格)のIPC－C(櫛型パターンL／S＝30μm／30μm)に、#250メッシュポリエステル版でスクリーン印刷により塗布した。

[0052] [硬化条件]

上記印刷条件で印刷したのち、室温にて5分間以上乾燥し、さらに空気雰囲気下、150℃2時間熱硬化した。

[0053] [長期電気信頼性の評価方法]

熱硬化した基板を85℃、相対湿度85%の雰囲気下において100Vのバイアス電圧を印加して2000時間放置し、以下の基準で電気絶縁性を評価した。

○:マイグレーション、絶縁抵抗値の低下、共になし、

△:1000～2000時間でマイグレーションまたは絶縁抵抗値の低下あり、

×:1000時間以下でマイグレーションまたは絶縁抵抗値の低下あり。

[0054] [耐熱性の評価方法]

熱硬化した基板を420℃のホットプレートに10秒間のせ、変色を確認し、下記の基準により耐熱性を評価した。

○:変色なし、

△:若干の変色が見られる、

×:黄変もしくは褐変が見られる。

[0055] [印刷性の評価方法]

熱硬化した基板の印刷端部から配線間ににじみ出ている距離をデジタルマイクロスコープVH－8000((株)キーエンス製)で計測し、下記の基準により印刷性を評価した。

○:印刷端部からにじみ出ている距離が100μm未満である、

△:印刷端部からにじみでている距離が100μm以上150μm未満である、

×:印刷端部からにじみでている距離が150μm以上である。

[0056] 合成例:

撹拌装置、温度計及びコンデンサーを備えた反応容器に、ポリカーボネートジオー

ルとして「C－1065N」(原料ジオールモル比:1，9－ノナンジオール:2－メチル－1，8－オクタンジオール＝65:35，分子量991，(株)クラレ製)707g、カルボキシル基を有するジヒドロキシル化合物として2，2－ジメチロールブタン酸(日本化成(株)製)114g、溶剤としてジエチレングリコールエチルエーテルアセテート(ダイセル化学工業(株)製)1079gを仕込み、90℃ですべての原料を溶解した。反応液の温度を70℃まで下げ、滴下ロートにより、ポリイソシアネートとして「T－80」(2，4－トリレンジイソシアネート及び2，6－トリレンジイソシアネートの80:20の混合物、三井武田ケミカル(株)製)258gを30分かけて滴下した。滴下終了後、80℃で1時間、90℃で1時間、100℃で2時間、イソシアネートが消費するまで反応を行った。なお、イソシアネートの消費は、反応液の赤外線吸収スペクトルを測定し、イソシアネートに帰属する2300cm^{-1}付近のピークの消失を確認した後、イソブタノール(和光純薬工業(株)製)7gを滴下し、さらに105℃にて1．5時間反応を行ってカルボキシル基含有ポリウレタン(U－1)2165gを得た。

得られたカルボキシル基含有ポリウレタン(U－1)は、固形分濃度が50質量%であり、数平均分子量は12，000であり、固形分の酸価は39．9mgKOH／gであった。

[0057] 実施例1:

溶剤としてジエチレングリコールエチルエーテルアセテート500g、プロピレンカーボネート(PC)200g、合成例1で得られたポリウレタン溶液(U－1)200gをかるく撹拌した後、熱硬化性触媒として「1B2MZ」(四国化成工業(株)製)10g、充填剤として硫酸バリウム(質量平均粒子径0．5μm)200g及びアエロジル＃380(日本アエロジル(株)製シリカ微粒子の商品名、質量平均粒子径12nm)200g、消泡剤として「フローレンAC300HF」(共栄社化学(株)製)5gを粗混練し、ついで3本ロールミルを用いて3回混練を繰り返して本混練を行った。

[0058] さらに、ポリウレタン溶液(U－1)1800g及びエポキシ樹脂「エピコート828EL」(ジャパンエポキシレジン(株)製)132g(ポリウレタン溶液のカルボキシル基に対してエポキシ基が1当量となる量)を加えてレジンミキサーにて撹拌し、さらに粘度185，000mPa・sになるようにジエチレングリコールエチルエーテルアセテートで調整し、固形分濃度45質量%の樹脂組成物3150gを得た。

この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性を評価をした結果を表1に示す。

[0059] 実施例2:

溶剤としてジメチルスルホキシド(DMSO)1200g、合成例1で得られたポリウレタン溶液(U－1)200g、充填剤としてスタフィロイドAC3664(ガンツ化成(株)製ゴム状コアシェルポリマー，質量平均粒子径0．1μm)500gをかるく撹拌した後、熱硬化性触媒として「2MZ」(四国化成工業(株)製)10．0g、硫酸バリウム200g、消泡剤として「消泡シリコーンTSA750」(GE東芝シリコーン(株)製)30．0gを粗混練し、ついで3本ロールミルを用いて3回混練を繰り返して本混練を行った。さらに、ポリウレタン溶液(U－1)1800g及びエポキシ樹脂「エピコート828EL」132gを加えてレジンミキサーにて撹拌し、γ―ブチロラクトンで希釈して、粘度100，000mPa・s、固形分濃度44質量%の樹脂組成物4210gを得た。この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性の評価をした結果を表1に示す。

[0060] 実施例3:

溶剤としてジエチレングリコールエチルエーテルアセテート1000g、スルホラン200g及びエポキシ樹脂「エピコート1007」(ジャパンエポキシレジン(株)製)1000gを50℃温浴中でよく撹拌した後、熱硬化性触媒として「1B2MZ」30g及びメラミン30g(質量平均粒子径3μm)、5000PJ(松村産業(株)製微粉タルク，質量平均粒子径1．7μm)200g及びアエロジル＃380を100g、消泡剤として「フローレンAC300HF」20gを粗混練し、ついで3本ロールミルを用いて3回混練を繰り返して本混練を行った。さらに、ジエチレングリコールエチルエーテルアセテートで粘度32，000mPa・sに調整し、固形分濃度42質量%の樹脂組成物2885gを得た。この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性の評価をした結果を表1に示す。

[0061] 実施例4:

ジエチレングリコールエチルエーテルアセテート500g、プロピレンカーボネート(PC)200g、合成例1で得られたポリウレタン溶液(U－1)200gをかるく撹拌した後、「1B2MZ」10g、硫酸バリウム200g及びアエロジル＃380を200g、「フローレンAC300HF」5gを粗混練し、ついで3本ロールミルを用いて3回混練を繰り返して本混練

を行った。

さらに、ポリウレタン溶液（Ｕ－１）1800g及びエポキシ樹脂「エピコート828EL」132g及びジエチレングリコールエチルエーテルアセテート1000gを加えてレジンミキサーにて撹拌し、さらに粘度18，000mPa・sになるようにジエチレングリコールエチルエーテルアセテートで調整し、固形分濃度35質量％の樹脂組成物4050gを得た。この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性の評価をした結果を表1に示す。

[0062] 比較例1：

プロピレンカーボネート（PC）を用いず溶剤としてジエチレングリコールエチルエーテルアセテートのみ700gを用いたこと以外は実施例1と同様にして樹脂組成物3250gを得た。この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性の評価をした結果を表1に示す。

[0063] 比較例2：

充填剤を用いず、プロピレンカーボネート（PC）200g、合成例1で得られたポリウレタン溶液（Ｕ－１）2000gをレジンミキサーにて撹拌し、粘度50，000cPの樹脂溶液2200gを得た。この組成物について、ろ過性、長期電気信頼性、耐熱性及び印刷性の評価をした結果を表1に示す。

[0064] [表1]

表１

実施例・比較例	内容	ろ過性	長期電気信頼性	耐熱性	印刷性
実施例１	ＰＣ	◎	○	○	○
実施例２	ＤＭＳＯ	○	○	○	○
実施例３	スルホラン	○	○	○	○
実施例４	ＰＣ（注１）	○	○	○	△
比較例１	（注２）	×	○	○	○
比較例２	（注３）	○	○	×	×

（注１）低粘度・低固形分

（注２）非プロトン性極性溶剤を用いない

（注３）充填剤がはいっていない

産業上の利用可能性

[0065] 本発明によれば、充填剤の分散性に優れ、樹脂組成物の調製時のろ過性が向上し、高い長期電気信頼性を有する電子回路基板用オーバーコート等を提供できる樹脂組成物が得られる。本発明の樹脂組成物は、柔軟性に優れた熱硬化性のフレキシブル回路オーバーコート用樹脂組成物、絶縁性に優れたソルダーレジスト、層間絶縁膜等の電気絶縁材料、ICや超LSI封止材料、積層板等の分野において有用である。

請求の範囲

[1] 樹脂(A)、充填剤(B)、及び溶剤(C)を含む樹脂組成物であって、溶剤(C)がプロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤を含むことを特徴とする樹脂組成物。

[2] 前記樹脂(A)が熱硬化性または紫外線硬化性樹脂である請求項1に記載の樹脂組成物。

[3] 前記熱硬化性樹脂が、カルボキシル基含有ポリウレタン樹脂及び／またはエポキシ化合物である請求項2に記載の樹脂組成物。

[4] 前記樹脂組成物中の固形分濃度が40～80質量%である請求項1～3のいずれかに記載の樹脂組成物。

[5] 前記溶剤(C)が、プロピレンカーボネート、ジメチルスルホキシド、及びスルホランからなる群から選択される少なくとも1種類の有機溶剤と樹脂(A)を溶解する他の溶剤との混合溶媒である請求項1に記載の樹脂組成物。

[6] 前記樹脂組成物の25℃における粘度が、15，000～200，000mPa・sであり、かつ粒子径10～20μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な有効面積500cm^{2}のカートリッジフィルターを用い、40℃、0．4MPaで加圧ろ過したとき、初期ろ過速度が20g／分以上で、初期ろ過速度に対するろ過開始30分後のろ過速度の比率が70%以上である請求項1～5のいずれかに記載の樹脂組成物。

[7] 前記樹脂組成物の25℃における粘度が、15，000～200，000mPa・sであり、かつ粒子径5～10μmの粒子を98%以上の捕捉効率でろ過可能な有効面積600cm^{2}のカートリッジフィルターを用い、40℃、0．4MPaで加圧ろ過したとき、初期ろ過速度が20g／分以上で、初期ろ過速度に対するろ過開始30分後のろ過速度の比率が70%以上である請求項1～5のいずれかに記載の樹脂組成物。

[8] 前記充填剤(B)が、質量平均粒子径0．01～3μmの充填剤を含む請求項1に記載の樹脂組成物。

[9] 前記充填剤(B)が、硫酸バリウム及び／またはシリカを含む請求項1または8に記載の樹脂組成物。

[10] 請求項1～9のいずれかに記載の樹脂組成物を硬化して得られることを特徴とする

硬化膜。

[11] 請求項1～9のいずれかに記載の樹脂組成物を硬化してなることを特徴とする電子回路基板用オーバーコート。

[12] 表面の一部もしくは全部が請求項1～9のいずれかに記載の樹脂組成物の硬化膜で被覆されていることを特徴とするフレキシブルプリント配線板。

[13] 表面の一部もしくは全部が請求項1～9のいずれかに記載の樹脂組成物の硬化膜で被覆されていることを特徴とするチップ・オン・フィルム配線板。

[14] 請求項12に記載のフレキシブルプリント配線板または請求項13に記載のチップ・オン・フィルム配線板を内蔵することを特徴とする電子機器。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/055389

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L101/00(2006.01)i, *C08K3/00*(2006.01)i, *C08K5/109*(2006.01)i, *C08K5/41*(2006.01)i, *C08K5/45*(2006.01)i, *C08L63/00*(2006.01)i, *C08L75/04*(2006.01)i, *H05K3/28*(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)
C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08

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 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

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	JP 2008-45032 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 28 February, 2008 (28.02.08), Claims; Par. No. [0079]; examples (Family: none)	1-14
X	WO 2007/125806 A1 (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 08 November, 2007 (08.11.07), Claims; Par. Nos. [0034], [0043] to [0045]; examples & EP 2017307 A1 & KR 2009-0009923 A & US 2009/0065244 A1	1-14

☒ 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
08 April, 2009 (08.04.09)	21 April, 2009 (21.04.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/055389

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-277540 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 25 October, 2007 (25.10.07), Claims; Par. Nos. [0051] to [0052], [0061]; examples & EP 1996658 A1 & KR 2008-0108228 A & US 2009/0054577 A1 & WO 2007/108550 A1	1-14
X	JP 2007-270137 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 18 October, 2007 (18.10.07), Claims; Par. Nos. [0037] to [0046], [0055] to [0058]; examples & EP 1991618 A1 & KR 2008-0100486 A & US 2009/0008138 A1 & WO 2007/105781 A1	1-14
X	WO 2007/105713 A1 (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 20 September, 2007 (20.09.07), Claims; Par. Nos. [0001], [0093] to [0095]; examples & EP 1997843 A1 & KR 2008-0100492 A	1-14
X	WO 2007/097405 A1 (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 30 August, 2007 (30.08.07), Claims; Par. Nos. [0053], [0057] to [0059]; examples & CN 101389712 A & EP 2031023 A1 & KR 2008-0102250 A	1-14
X	JP 2007-154134 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 21 June, 2007 (21.06.07), Claims; Par. Nos. [0001], [0083] to [0096]; examples & CN 101309944 A & EP 1957552 A1 & KR 2008-0080620 A & WO 2007/066816 A1	1-14
X	JP 2007-100038 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 19 April, 2007 (19.04.07), Claims; Par. Nos. [0001], [0026], [0035] to [0037]; examples & CN 101278010 A & EP 1937776 A2 & KR 2008-0065638 A & WO 2007/043536 A2	1-14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/055389

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2006-348278 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 28 December, 2006 (28.12.06), Claims; Par. Nos. [0078], [0088]; examples; Par. Nos. [0126] to [0127] & CN 101175787 A & EP 1899397 A1 & KR 2008-0026105 A & US 2009/0082518 A1 & WO 2006/123804 A1	1-14
X	JP 2006-274258 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 12 October, 2006 (12.10.06), Claims; Par. Nos. [0026], [0027]; examples; Par. Nos. [0055], [0056] & CN 101133096 A & EP 1856177 A1 & JP 2006-283009 A & KR 2007-0117581 A & US 2008/0188625 A1 & WO 2006/093355 A1	1-14
X	JP 2006-124681 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 18 May, 2006 (18.05.06), Claims; Par. Nos. [0028] to [0029]; examples & CN 101023112 A & EP 1802674 A1 & JP 2006-117922 A & KR 2007-0068355 A & US 2007/0293636 A1 & WO 2006/033439 A1	1-14
P,X	JP 2008-297440 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 11 December, 2008 (11.12.08), Claims; Par. No. [0084]; examples (Family: none)	1-14

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０５５３８９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L101/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/109(2006.01)i, C08K5/41(2006.01)i, C08K5/45(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, C08L75/04(2006.01)i, H05K3/28(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08

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	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９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	JP 2008-45032 A (昭和電工株式会社) 2008.02.28 特許請求の範囲,【００７９】, 実施例 （ファミリーなし）	1-14
X	WO 2007/125806 A1 (昭和電工株式会社) 2007.11.08 請求の範囲,［００３４］,［００４３］－［００４５］, 実施例 &EP 2017307 A1 &KR 2009-0009923 A &US 2009/0065244 A1	1-14

☑　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 ０８．０４．２００９	国際調査報告の発送日 ２１．０４．２００９
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）　４Ｊ　９０４２ 大熊　幸治 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
X	JP 2007-277540 A (昭和電工株式会社) 2007.10.25 特許請求の範囲,【００５１】－【００５２】,【００６１】, 実施例 &EP 1996658 A1 &KR 2008-0108228 A &US 2009/0054577 A1 &WO 2007/108550 A1	1-14
X	JP 2007-270137 A (昭和電工株式会社) 2007.10.18 特許請求の範囲,【００３７】－【００４６】, 【００５５】－【００５８】, 実施例 &EP 1991618 A1 &KR 2008-0100486 A &US 2009/0008138 A1 &WO 2007/105781 A1	1-14
X	WO 2007/105713 A1 (昭和電工株式会社) 2007.09.20 請求の範囲, ［０００１］, ［００９３］－［００９５］, 実施例 &EP 1997843 A1 &KR 2008-0100492 A	1-14
X	WO 2007/097405 A1 (昭和電工株式会社) 2007.08.30 請求の範囲, ［００５３］, ［００５７］－［００５９］, 実施例 &CN 101389712 A &EP 2031023 A1 &KR 2008-0102250 A	1-14
X	JP 2007-154134 A (昭和電工株式会社) 2007.06.21 特許請求の範囲,【０００１】,【００８３】－【００９６】, 実施例 &CN 101309944 A &EP 1957552 A1 &KR 2008-0080620 A &WO 2007/066816 A1	1-14
X	JP 2007-100038 A (昭和電工株式会社) 2007.04.19 特許請求の範囲,【０００１】,【００２６】, 【００３５】－【００３７】, 実施例 &CN 101278010 A &EP 1937776 A2 &KR 2008-0065638 A &WO 2007/043536 A2	1-14
X	JP 2006-348278 A (昭和電工株式会社) 2006.12.28 特許請求の範囲,【００７８】,【００８８】, 実施例, 【０１２６】－【０１２７】 &CN 101175787 A &EP 1899397 A1 &KR 2008-0026105 A &US 2009/0082518 A1 &WO 2006/123804 A1	1-14
X	JP 2006-274258 A (昭和電工株式会社) 2006.10.12 特許請求の範囲,【００２６】,【００２７】, 実施例,【００５５】, 【００５６】 &CN 101133096 A &EP 1856177 A1 &JP 2006-283009 A &KR 2007-0117581 A &US 2008/0188625 A1 &WO 2006/093355 A1	1-14

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	JP 2006-124681 A (昭和電工株式会社) 2006.05.18 特許請求の範囲，【００２８】－【００２９】，実施例 &CN 101023112 A &EP 1802674 A1 & JP 2006-117922 A &KR 2007-0068355 A &US 2007/0293636 A1 &WO 2006/033439 A1	1-14
PX	JP 2008-297440 A (昭和電工株式会社) 2008.12.11 特許請求の範囲，【００８４】，実施例 （ファミリーなし）	1-14