

# 審決

無効2012-800199

山口県宇部市大字小串1978番地の96  
請求人 宇部興産 株式会社

東京都中央区日本橋茅場町3丁目10番9号 ティーエスビル7階 伊藤克博国際特許事務所  
代理人弁理士 伊藤 克博

東京都中央区日本橋茅場町3丁目10番9号 ティーエスビル7階 伊藤克博国際特許事務所  
代理人弁理士 小野 暁子

東京都千代田区丸の内2丁目2番2号 丸の内三井ビル シティユーワ法律事務所  
代理人弁護士 尾崎 英男

東京都千代田区丸の内2丁目2番2号 丸の内三井ビル シティユーワ法律事務所  
代理人弁護士 日野 英一郎

東京都千代田区丸の内2丁目2番2号 丸の内三井ビル シティユーワ法律事務所  
代理人弁護士 上野 潤一

東京都千代田区丸の内2丁目2番2号 丸の内三井ビル シティユーワ法律事務所  
代理人弁護士 今田 瞳

東京都中央区日本橋本町一丁目1番1号  
被請求人 東レ・デュポン 株式会社

東京都千代田区永田町2丁目13番1号 ボッシュビル赤坂5階 LTE法律事務所  
代理人弁護士 増井 和夫

東京都千代田区永田町2丁目13番1号 ボッシュビル赤坂5階 LTE法律事務所  
代理人弁護士 橋口 尚幸

東京都千代田区永田町2丁目13番1号 ボッシュビル赤坂5階 LTE法律事務所  
代理人弁護士 齋藤 誠二郎

上記当事者間の特許第4777471号発明「ポリイミドフィルムおよびそれを基材とした銅張積層体」の特許無効審判事件について、次のとおり審決する。

結 論

本件審判の請求は、成り立たない。  
審判費用は、請求人の負担とする。

## 理 由

### 第 1 手続の経緯

本件審判に係る特許（以下、「本件特許」という。）は、平成17年3月25日（優先権主張 平成16年3月30日）を出願日とする特願2005-88334号（以下、「原出願」という。）の一部を平成22年8月11日に新たな出願（特願2010-180128号（以下、「本件出願」という。））とし、平成23年7月8日に設定登録（特許第4777471号、発明の名称「ポリイミドフィルムおよびそれを基材とした銅張積層体」（請求項の数11）。以下、その明細書を「本件特許明細書」という。）がされたものである。

そして、本件特許を無効とすることについて、宇部興産株式会社（以下、「請求人」という。）から、本件審判の請求がされた。

本件審判の手続の経緯は、以下のとおりである。

平成24年11月30日付け	審判請求書、甲第1～第6号証提出
平成25年 2月15日付け	審判事件答弁書、乙第1～第5号証提出
同 年 3月13日付け	審理事項通知書
同 年 4月10日付け	口頭審理陳述要領書（請求人） 甲第7～第18号証提出
同 年 4月10日付け	口頭審理陳述要領書（被請求人） 乙第6～第7号証提出
同 年 4月22日付け	上申書（被請求人） 乙第8～第10号証提出
同 年 4月24日	口頭審理
同 年 5月24日付け	上申書（請求人）提出
同 年 5月24日付け	上申書（被請求人）提出 乙第11号証及び参考資料1及び2提出

### 第 2 本件特許に係る発明

本件特許に係る発明は、特許請求の範囲の請求項1～11に記載された以下のとおりのものである（以下、「本件特許発明1」～「本件特許発明11」といい、併せて「本件特許発明」ともいう。）。

#### 「【請求項1】

パラフェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルムであって、該ポリイミドフィルムが、粒子径が0.07～2.0 $\mu$ mである微細シリカを含み、島

津製作所製 TMA-50 を使用し、測定温度範囲：50～200℃、昇温速度：10℃/min の条件で測定したフィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数  $\alpha_{MD}$  が 10 ppm/℃ 以上 20 ppm/℃ 以下の範囲にあり、前記条件で測定した幅方向（TD）の熱膨張係数  $\alpha_{TD}$  が 3 ppm/℃ 以上 7 ppm/℃ 以下の範囲にあり、前記微細シリカがフィルムに均一に分散されているポリイミドフィルムを基材とし、この上に厚みが 1～10  $\mu\text{m}$  の銅を形成させた銅張積層体を有することを特徴とする COF 用基板。

【請求項 2】

島津製作所製 TMA-50 を使用し、測定温度範囲：50～200℃、昇温速度：10℃/min の条件で測定したフィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数  $\alpha_{MD}$  が 14 ppm/℃ 以上 18 ppm/℃ 以下、前記条件で測定した幅方向（TD）の熱膨張係数  $\alpha_{TD}$  が 3 ppm/℃ 以上 7 ppm/℃ 以下の範囲にあることを特徴とする請求項 1 記載の COF 用基板。

【請求項 3】

微細シリカがフィルム樹脂重量当たり 0.03～0.30 重量%の割合でフィルムに均一に分散され、かつ表面には微細な突起が形成されていることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の COF 用基板。

【請求項 4】

微細シリカの平均粒子径が、0.10  $\mu\text{m}$  以上 0.90  $\mu\text{m}$  以下であることを特徴とする請求項 3 記載の COF 用基板。

【請求項 5】

微細シリカの平均粒子径が、0.10  $\mu\text{m}$  以上 0.30  $\mu\text{m}$  以下であることを特徴とする請求項 3 記載の COF 用基板。

【請求項 6】

微細シリカにより形成される突起数が 1 mm<sup>2</sup> 当たり  $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$  個存在することを特徴とする請求項 3～5 のいずれかに記載の COF 用基板。

【請求項 7】

パラフェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび 3,4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる 1 以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および 3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる 1 以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルムであって、該ポリイミドフィルムが、粒子径が 0.07～2.0  $\mu\text{m}$  である微細シリカを含み、島津製作所製 TMA-50 を使用し、測定温度範囲：50～200℃、昇温速度：10℃/min の条件で測定したフィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数  $\alpha_{MD}$  が 10 ppm/℃ 以上 20 ppm/℃ 以下の範囲にあり、前記条件で測定した幅方向（TD）の熱膨張係数  $\alpha_{TD}$  が 3 ppm/℃ 以上 7 ppm/℃ 以下の範囲にあり、前記微細シリカがフィルムに均一に分散されているポリイミドフィルムを基材とし、この上に厚みが 1～10  $\mu\text{m}$  の銅を形成させたことを特徴とする銅張積層体。

【請求項 8】

島津製作所製 TMA-50 を使用し、測定温度範囲：50～200℃、昇温速度：10℃/min の条件で測定したフィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数  $\alpha_{MD}$  が 14 ppm/℃ 以上 18 ppm/℃ 以下、前記条件で測定した幅方向（TD）の熱膨張係数  $\alpha_{TD}$  が 3 ppm/℃ 以上 7 ppm/℃ 以下の範囲にあることを特徴とする請求項 7 記載の銅張積層体。

【請求項 9】

パラフェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび 3,4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる 1 以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および 3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる 1 以上の酸無

水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルムであって、該ポリイミドフィルムが、粒子径が0.07～2.0 $\mu$ mである微細シリカを含み、島津製作所製TMA-50を使用し、測定温度範囲：50～200 $^{\circ}$ C、昇温速度：10 $^{\circ}$ C/minの条件で測定したフィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数 $\alpha$ MDが10ppm/ $^{\circ}$ C以上20ppm/ $^{\circ}$ C以下の範囲にあり、前記条件で測定した幅方向（TD）の熱膨張係数 $\alpha$ TDが3ppm/ $^{\circ}$ C以上7ppm/ $^{\circ}$ C以下の範囲にあり、前記微細シリカがフィルムに均一に分散されているポリイミドフィルム。

【請求項10】

パラフェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3,4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して得られるフィルムを、140 $^{\circ}$ C以下の温度で

1.05～1.6倍の延伸倍率（MDX）で機械搬送方向に延伸し、機械搬送方向の延伸倍率の1.1～1.5倍の延伸倍率（TDX）で幅方向に延伸処理する工程を含むことを特徴とする、請求項1～6のいずれかに記載されたCOF用基板の製造方法。

【請求項11】

パラフェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3,4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して得られるフィルムを、140 $^{\circ}$ C以下の温度で

1.05～1.6倍の延伸倍率（MDX）で機械搬送方向に延伸し、機械搬送方向の延伸倍率の1.1～1.5倍の延伸倍率（TDX）で幅方向に延伸処理する工程を含むことを特徴とする、請求項9に記載されたポリイミドフィルムの製造方法。」

### 第3 請求人の主張する無効理由の概要及び請求人が提出した証拠方法

#### 1. 無効理由の概要

請求人は、審判請求書において、請求の趣旨の欄を「特許第4777471号発明の特許請求の範囲の請求項1～11に係る発明についての特許を無効とする。審判費用は被請求人の負担とする。との審決を求めらる。」とし、以下の無効理由を主張した。

【無効理由1】

本件特許明細書の発明の詳細な説明は、実施例で開示された4成分系以外のポリイミドフィルム、例えば2成分系のポリイミドフィルムに係る発明について、当業者が実施することができる程度に明確かつ十分に記載されておらず、本件特許請求の範囲の記載にはかかる2成分系のポリイミドフィルムが包含されるものである。

よって、本件特許発明1ないし11に関し、発明の詳細な説明の記載は、特許法第36条第4項第1号に規定する要件を満たしておらず、併せて、本件特許発明1ないし11に係る特許請求の範囲の記載は特許法第36条第6項第1号に適合しておらず、特許法第36条第6項に規定する要件を満たしていないことから、特許法第123条第1項第4号の規定によって無効とされるべきものである。

【無効理由2】

本件特許明細書の発明の詳細な説明は、本件特許発明10に係るCOF用基板の製造方法により本件特許発明1に係るCOF用基板が得られるか否か明らかでなく、同様に、本件特許明細書の発明の詳細な説明は、本件特許発明11に係るポリイミドフィルムの製造方法により本件特許発明9に係るポ

リミドフィルムが得られるか否か明らかでないから、本件特許発明10及び11を当業者が実施することができる程度に明確かつ十分に記載されていない。

よって、本件特許明細書の記載は、特許法第36条第4項第1号に規定する要件を満たしておらず、併せて、本件特許発明10及び11に係る特許請求の範囲の記載は、特許法第36条第6項第1号に適合しておらず、特許法第36条第6項の規定する要件を満たしていないことから、特許法第123条第1項第4号の規定によって無効とされるべきものである。

なお、請求人は、口頭審理において、特許法第17条の2第3項及び同法第29条第1項第3号に係る無効理由を取り下げている。

## 2. 請求人が提出した証拠方法

請求人は、以下の証拠方法を提出した。

### [証拠方法]

甲第1号証：特開2001-72781号公報  
甲第2号証：特開2004-122372号公報  
甲第3号証：特願2005-88334号（本件特許出願の親出願）の平成24年7月12日付け拒絶理由通知書  
甲第4号証：特開2003-335874号公報  
甲第5号証：本件特許の審査における平成22年12月10日付け早期審査に関する事情説明書  
甲第6号証：特開2005-314669号公報（本件特許の親出願の公開公報）  
甲第7号証：POLYMER, 1989, Vol. 30, June (Conference issue) 1170~1173頁（抄訳は一部のみ）  
甲第8号証：仙波恒太郎企画編集「一流企業実務者が明かす、最先端の”材料”と”技術” 最新エレクトロニクス実装大全集<上巻>」136頁（発行日 2007年6月29日、株式会社技術情報協会発行）  
甲第9号証：Thin Solid Films 339 (1999) 68~73頁（抄訳は一部のみ）  
甲第10号証：POLYMER, 1987, Vol. 28, December 2282~2288頁（抄訳は一部のみ）  
甲第11号証：Macromolecules 1996, 29, 7897~7909頁（抄訳は一部のみ）  
甲第12号証：Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 381 1995, 19~29頁（抄訳は一部のみ）  
甲第13号証：特開平5-237928号公報  
甲第14号証：特開2004-255845号公報  
甲第15号証：特開2003-109989号公報  
甲第16号証：特開平11-80390号公報  
甲第17号証：株式会社カネカ APICALカタログ（発行日不明）  
甲第18号証：東レ・デュポン株式会社 「カプトン」のカタログ（発行日 1999年10月）

## 第4 被請求人の主張

### 1. 被請求人の主張の概要

被請求人は、審判事件答弁書において、「本件無効審判は成り立たない、審判費用は請求人の負担とする、」との審決を求め、「審判請求人の主張す

る無効理由1～4は、いずれも成り立たない。」旨の反論をした。

## 2. 被請求人が提出した証拠方法

被請求人は、以下の証拠方法及び参考資料を提出した。

### [証拠方法]

乙第1号証：低熱膨張ポリイミドフィルムカプトン150EN-A（本件特許発明実施品である被請求人製品のカatalog）

乙第2号証：「躍進するポリイミドの最新動向II」表紙、目次、1～8頁、17～20頁、奥付（2000年12月 住ベテクノリサーチアブ株式会社発行）

乙第3号証：宇部興産株式会社 ポリイミドフィルム「ユーピレックス-S」（ユーピレックスSを紹介した請求人ウェブサイトをプリントアウトしたもの、URL [http://www.ube-ind.co.jp/japanese/products/fine/\\_01\\_01.htm](http://www.ube-ind.co.jp/japanese/products/fine/_01_01.htm)）

乙第4号証：東レ・デュポン株式会社 カプトン技術・開発部 製品技術課長 澤崎孔一が作成した2012年8月31日付け分析結果報告書（従来品ユーピレックスSシリーズの熱膨張係数の分析結果）

乙第5号証：東レ・デュポン株式会社 カプトン技術・開発部 製品技術課長 澤崎孔一が作成した2012年3月30日付け分析結果報告書（従来品ユーピレックス35SGV1の熱膨張係数の分析結果）

乙第6号証：岩波理化学事典第5版 表紙、405頁、944頁、奥付（1998年2月20日 株式会社岩波書店発行）

乙第7号証：旭硝子研究報告57（2007）37～44頁

乙第8号証：特許第3085529号公報

乙第9号証：特許第3994946号公報

乙第10号証：特許第3355986号公報

乙第11号証：特公平4-6213号公報

### [参考資料]

参考資料1：特開昭63-297029号公報

参考資料2：特許第3346228号公報

## 第5 当審の判断

当審は、請求人が主張する上記無効理由1乃至2は、いずれも理由がないものと判断する。その理由は、以下のとおりである。

### 1. 本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載事項

上記無効理由1乃至2はいずれも本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載要件に係るものであることに鑑み、まず、これらのうちのいずれかの無効理由に関連すると認められる発明の詳細な説明の記載を以下に摘記する。

#### ア 「【技術分野】

本発明は、寸法安定性に優れ、ファインピッチ回路用基板、特にフィルム幅方向に狭ピッチに配線されるCOF（Chip on Film）用に好適なポリイミドフィルム及びそれを基材とした銅張積層体に関するものである。」（段落【0001】）

イ 「ところで近年、配線の微細化への対応で、銅貼り積層体は接着剤を用いない2層タイプ（ポリイミドフィルム上に銅層が直接形成）が採用されて

いる。これはフィルム上へのめっき法により銅層を形成させる方法、銅箔上にポリアミック酸をキャストした後イミド化させる方法があるが、いずれもラミネーション方式のような熱圧着工程ではなく、したがってフィルムのMDの熱膨張係数をTDより小さくする必要は無くなり、さらには2層タイプで主流をしめるCOF用途では、フィルムのTDに狭ピッチで配線されるパターンが一般的で、逆にTDの熱膨張係数が大きいとチップ実装ボンディング時等で配線間の寸法変化が大きくなり、ファインピッチ化要求への対応が困難であった。これに対応するにはフィルムの熱膨張係数をシリコンに近似させるほどに小さくさせるのが理想であるが、銅との熱膨張差異が生じるのでチップ実装のボンディング時をはじめとする加熱される工程によりひずみが生じるという問題がある。」（段落【0005】）

#### ウ 「【発明の概要】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上述した従来技術における問題点の解決を課題として検討した結果なされたものであり、金属に近似した熱膨張係数を保持しつつ、フィルムTDの寸法変化を低減させることができるCOF用などのファインピッチ回路用基板に好適なポリイミドフィルムおよびそれを基材とした銅張り積層体の提供を目的とするものである。」（段落【0006】～【0007】）

#### エ 「【課題を解決するための手段】

上記の目標を達成するために、本発明のポリイミドフィルムは、フィルムの機械搬送方向（MD）の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が $10 \sim 20 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ 、幅方向（TD）の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が $3 \sim 10 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ であり、好ましくは $\alpha_{MD}$ が $14 \sim 18 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ 、 $\alpha_{TD}$ が $3 \sim 7 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ であることを特徴とする。」（段落【0007】～【0008】）

#### オ 「【発明の効果】

本発明のポリイミドフィルムは、フィルムのTDへの配向を進ませることで、この方向の熱膨張係数を低く抑えることができ、かつMDの熱膨張係数は金属に近似した値を持ち、さらに加熱収縮率も低く、また高い引っ張り弾性率を保持している。」（段落【0010】～【0011】）

#### カ 「【発明を実施するための最良の形態】

本発明のポリイミドフィルムを製造するに際しては、まず芳香族ジアミン成分と酸無水物成分とを有機溶媒中で重合させることにより、ポリアミック酸溶液を得る。

上記芳香族ジアミン類の具体例としては、パラフェニレンジアミン、メタフェニレンジアミン、ベンジジン、パラキシリレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、1, 5-ジアミノナフタレン、3, 3'-ジメトキシベンチジン、1, 4-ビス(3メチル-5アミノフェニル)ベンゼンおよびこれらのアミド形成性誘導体が挙げられる。この中でフィルムの引っ張り弾性率を高くする効果のあるパラフェニレンジアミン、ベンジジン、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルなどのジアミンの量を調整し、最終的に得られるポリイミドフィルムの引っ張り弾性率が4.0GPa以上にすることが、ファインピッチ基板用として好ましい。

上記酸無水物成分の具体例としては、ピロメリット酸、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、2, 3', 3, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、2, 3, 6, 7-ナフタレンジカルボン酸、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル、ピリジン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸およびこれらのアミド形成性誘導体などの酸無水物が挙げられる。

また、本発明において、ポリアミック酸溶液の形成に使用される有機溶媒の具体例としては、例えば、ジメチルスルホキシド、ジエチルスルホキシドなどのスルホキシド系溶媒、N、N-ジメチルホルムアミド、N、N-ジエチルホルムアミドなどのホルムアミド系溶媒、N、N-ジメチルアセトアミド、N、N-ジエチルアセトアミドなどのアセトアミド系溶媒、N-メチル-2-ピロリドン、N-ビニル-2-ピロリドンなどのピロリドン系溶媒、フェノール、o-, m-, またはp-クレゾール、キシレノール、ハロゲン化フェノール、カテコールなどのフェノール系溶媒、あるいはヘキサメチルホスホルアミド、γ-ブチロラクトンなどの非プロトン性極性溶媒を挙げることができ、これらを単独又は混合物として用いるのが望ましいが、さらにはキシレン、トルエンのような芳香族炭化水素の使用も可能である。」(段落【0011】～【0015】)

キ 「次に、本発明のポリイミドフィルムの製造方法について説明する。

ポリイミドフィルムを製膜する方法としては、ポリアミック酸溶液をフィルム状にキャストし熱的に脱環化脱溶媒させてポリイミドフィルムを得る方法、およびポリアミック酸溶液に環化触媒及び脱水剤を混合し化学的に脱環化させてゲルフィルムを作成しこれを加熱脱溶媒することによりポリイミドフィルムを得る方法が挙げられるが、後者の方が得られるポリイミドフィルムの熱膨張係数を低く抑えることができるので好ましい。

なお、このポリアミック酸溶液は、フィルムの易滑性を得るため必要に応じて、酸化チタン、微細シリカ、炭酸カルシウム、リン酸カルシウム、リン酸水素カルシウムおよびポリイミドフィラーなどの化学的に不活性な有機フィラーや無機フィラーを、含有することができる。この中では特に粒子径0.07~2.0μmである微細シリカをフィルム樹脂重量当たり0.03~0.30重量%の割合でフィルムに均一に分散されることによって微細な突起を形成させるのが好ましい。粒子径0.07~2.0μmの範囲であれば該ポリイミドフィルムの自動工学検査システムでの検査が問題なく適応できるので好ましい。添加量については、0.30重量%を越えると機械的強度の低下が見られ、また0.03重量%以下では、十分な易滑性効果が見られず好ましくない。また平均粒子径については、0.10μm以上0.90μm以下が好ましく、0.10μm以上0.30μm以下がより好ましい。平均粒子径が0.10μm以下になると、フィルムの易滑性効果が低下するので好ましくなく、0.90μm以上になると局所的に大きな粒子となって存在するので好ましくない。

上記ポリアミック酸溶液は、環化触媒(イミド化触媒)、脱水剤およびゲル化遅延剤などを含有することができる。

本発明で使用される環化触媒の具体例としては、トリメチルアミン、トリエチレンジアミンなどの脂肪族第3級アミン、ジメチルアニリンなどの芳香族第3級アミン、およびイソキノリン、ピリジン、ベータピコリンなどの複素環第3級アミンなどが挙げられるが、複素環式第3級アミンから選ばれる少なくとも一種類のアミンを使用するのが好ましい。

本発明で使用される脱水剤の具体例としては、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水酪酸などの脂肪族カルボン酸無水物、および無水安息香酸などの芳香族カルボン酸無水物などが挙げられるが、無水酢酸および/または無水安息香酸が好ましい。・・・

ポリアミック酸溶液からポリイミドフィルムを製造する方法としては、環化触媒および脱水剤を含有せしめたポリアミック酸溶液をスリット付き口金から支持体上に流延してフィルム状に成形し、支持体上でイミド化を一部進行させて自己支持性を有するゲルフィルムとした後、支持体より剥離し、加熱乾燥/イミド化し、熱処理を行う。

上記ポリアミック酸溶液は、スリット状口金を通してフィルム状に成型され、加熱された支持体上に流延され、支持体上で熱閉環反応をし、自己支持性を有するゲルフィルムとなって支持体から剥離される。

上記支持体とは、金属製の回転ドラムやエンドレスベルトであり、その温度は液体または気体の熱媒によりおよび/または電気ヒーターなどの輻射熱により液体または気体の熱媒によりおよび/または電気ヒーターなどの輻射

熱により制御される。

上記ゲルフィルムは、支持体からの受熱および／または熱風や電気ヒータなどの熱源からの受熱により30～200℃、好ましくは40～150℃に加熱されて閉環反応し、遊離した有機溶媒などの揮発分を乾燥させることにより自己支持性を有するようになり、支持体から剥離される。

上記支持体から剥離されたゲルフィルムは、通常回転ロールにより走行速度を規制しながら走行方向に延伸される。機械搬送方向への延伸倍率

(MDX)は、140℃以下の温度で1.01～1.9倍、好ましくは1.05～1.6倍、さらに好ましくは1.05～1.4倍で実施される。搬送方向に延伸されたゲルフィルムは、テンター装置に導入され、テンタークリップに幅方向両端部を把持されて、テンタークリップと共に走行しながら、幅方向へ延伸される。この時フィルムの機械搬送方向(MD)の延伸倍率に比べ幅方向(TD)の延伸倍率を高く設定すること、具体的には幅方向の延伸倍率を機械搬送方向の延伸倍率の1.1～1.5倍に設定することによってフィルムTDに配向勝ったフィルムすなわちフィルムMDには金属に近似した熱膨張係数を保持しつつ、フィルムTDの熱膨張係数を低く抑えたフィルムを得ることができる。これら範囲内にて両者の延伸倍率の調整を行い、フィルムのMDの熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が3～10ppm/℃、フィルムのTDの熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が10～20ppm/℃の範囲にするのが好ましく、 $\alpha_{MD}$ が3～7ppm/℃、 $\alpha_{TD}$ が14～18ppm/℃の範囲がより好ましい。」(段落【0023】～【0033】)

ク 「このようにして得られたポリイミドフィルムをさらに200～500℃の温度でアニール処理を行うことが好ましい。そうすることによってフィルムの熱リラックスが起こり加熱収縮率を小さく抑えることができる。本発明ポリイミドフィルムの製法ではフィルムTDへの配向が強いため、その分この方向での加熱収縮率が高くなってしまいがちであるが、アニール処理からの熱リラックスにより200℃での加熱収縮率をフィルムのMD、TD共に0.05%以下に抑えることができるのでより一層寸法精度が高くなり好ましい。具体的には200～500℃の炉の中を、低張力下にてフィルムを走行させ、アニール処理を行う。炉の中でフィルムが滞留する時間が処理時間となるが、走行速度を変えることでコントロールすることになり、30秒～5分の処理時間であることが好ましい。これより短いとフィルムに充分熱が伝わらず、また長いと過熱気味になり平面性を損なうので好ましくない。また走行時のフィルム張力は10～50N/mが好ましく、さらには20～30N/mが好ましい。この範囲よりも張力が低いとフィルムの走行性が悪くなり、また張力が高いと得られたフィルムの走行方向の熱収縮率が高くなるので好ましくない。」(段落【0036】)

ケ 「【実施例】

以下、実施例により本発明を具体的に説明する。

なお、実施例中PPDはパラフェニレンジアミン、4,4'-ODAは4,4'-ジアニノジフェニルエーテル、3,4'-ODAは3,4'-ジアミノジフェニルエーテル、PMDAはピロメリット酸二無水物、BPDAは3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物、DMAcはN,N-ジメチルアセトアミドをそれぞれ表す。

(7) 銅配線形成したフィルムの、半田浴処理前後の寸法変化率、及びカー

(i) 銅層形成

(ii) フォトリジストパターン形成

(iii) 銅エッチング

(iv) フォトリジスト除去

...

(v) 錫鍍金

...

(vi) 寸法変化率、及びカール測定

錫鍍金後、TD方向の寸法を測定(L3)した。次に、250°Cの半田浴に30秒浸漬し、浸漬後に再びTD方向の寸法を測定(L4)した。半田浴による処理前後の寸法変化率を下記式により求めた。

$$\text{寸法変化率}(\%) = (L4 - L3) / L3 \times 100$$

また、カールについては、半田浴による処理後に平坦な場所にサンプルを静置し、サンプルの端部の床からの反り上がり量を「カール」として評価した。

[実施例1]

500mlのセパブルフラスコにDMAc 239.1gを入れ、ここにPPD4.53g(0.042モル)、4,4'-ODA 21.53g(0.108モル)、BPDA 8.79g(0.030モル)、PMDA 26.06g(0.119モル)を投入し、常温常圧中で1時間反応させ、均一になるまで攪拌してポリアミック酸溶液を得た。

続いて粒径0.08μm未満及び2μm以上が排除された平均径0.30μmのシリカのN,N-ジメチルアセトアミドスラリーを前記ポリアミド酸溶液に樹脂重量当たり0.03重量%添加し、十分攪拌、分散させた。

その後このポリアミック酸溶液をマイナス5°Cで冷却した後、ポリアミック酸溶液100重量%に対して無水酢酸15重量%とβ-ピコリン15重量%を混合することにより、ポリアミック酸のイミド化を行った。

こうして得られたポリイミドポリマーを、90°Cの回転ドラムに30秒流延させた後、得られたゲルフィルムを100°Cで5分間加熱しながら、走行方向に1.1倍延伸した。次いで幅方向両端部を把持して、270°Cで2分間加熱しながら幅方向に1.5倍延伸した後、380°Cにて5分間加熱し、38μm厚のポリイミドフィルムを得た。このポリイミドフィルムを220°Cに設定された炉の中で20N/mの張力をかけて1分間アニール処理を行った後、各特性を評価した。

フィルムMDの熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ : 15.8ppm/°C

フィルムTDの熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ : 4.8ppm/°C

200°C加熱収縮率(MD): 0.02%

200°C加熱収縮率(TD): 0.02%

引っ張り弾性率(MD): 6.0GPa

引っ張り弾性率(TD): 6.6GPa

シリカ添加量: 0.03重量%

粒度分布: 0.08~2.0μm

平均粒径: 0.30μm

突起数:  $3.2 \times 10^5$  個/mm<sup>2</sup>

寸法変化率: 0.02%

カール: 2.5mm

摩擦係数: 0.90

[実施例2~15]

実施例1と同様の手順で、芳香族ジアミン成分および芳香族テトラカルボン酸成分の原料及び比率、シリカの添加量、平均粒子径を表1、2、3に示すように反応させ、それぞれポリアミック酸溶液を得た後、横方向・縦方向の延伸倍率を表1、2、3のように行い実施例1と同じ操作で得られたポリイミドフィルムの各特性評価を行い、表1、2、3にその結果を示した。

【表1】

実施例		1	2	3	4	5
各原料の比率 (モル比*)		PPD 28 4,4'-ODA 72 BPDA 20 PMDA 80				
延伸倍率(MDX) (TDX)		1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5
熱膨張係数(MD) (TD)	ppm/°C	15.8 4.8	15.8 4.8	15.8 4.8	15.8 4.8	15.8 4.8
加熱収縮率(MD) (TD)	%	0.02 0.02	0.02 0.02	0.02 0.02	0.02 0.02	0.02 0.02
引張弾性率(MD) (TD)	GPa	6.0 6.6	6.0 6.6	6.0 6.6	6.0 6.6	6.0 6.6
シリカ添加量	重量%	0.03	0.10	0.10	0.15	0.10
流度分布	μm	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0
平均粒径	μm	0.30	0.30	0.50	0.50	0.70
突起数	個/mm <sup>2</sup>	3.2×10 <sup>5</sup>	9.3×10 <sup>5</sup>	7.7×10 <sup>5</sup>	1.2×10 <sup>6</sup>	5.8×10 <sup>5</sup>
寸法変化率	%	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
カール	mm	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
摩擦係数		0.90	0.72	0.75	0.42	0.51

【表 2】

実施例		6	7	8	9	10
各原料の比率 (モル比*)		PPD 25 4,4'-ODA 75 BPDA 20 PMDA 80				
延伸倍率(MDX) (TDX)		1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5	1.1 1.5
熱膨張係数(MD) (TD)	ppm/°C	16.4 6.0	16.4 6.0	16.4 6.0	16.4 6.0	16.4 6.0
加熱収縮率(MD) (TD)	%	0.01 0.01	0.01 0.01	0.01 0.01	0.01 0.01	0.01 0.01
引張弾性率(MD) (TD)	GPa	5.9 6.4	5.9 6.4	5.9 6.4	5.9 6.4	5.9 6.4
シリカ添加量	重量%	0.03	0.10	0.10	0.15	0.10
流度分布	μm	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0
平均粒径	μm	0.30	0.30	0.50	0.50	0.70
突起数	個/mm <sup>2</sup>	4.1×10 <sup>5</sup>	1.2×10 <sup>6</sup>	7.3×10 <sup>5</sup>	1.3×10 <sup>6</sup>	6.4×10 <sup>5</sup>
寸法変化率	%	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02
カール	mm	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3
摩擦係数		0.95	0.75	0.71	0.39	0.49

【表 3】

実施例		11	12	13	14	15
各原料の比率 (モル比*)		PPD 20 3,4'-ODA 80 BPDA 20 PMDA 80				
延伸倍率(MDX) (TDX)		1.1	1.1	1.1	1.1	1.1
		1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熱膨張係数(MD) (TD)	ppm/°C	14.1	14.1	14.1	14.1	14.1
		4.5	4.5	4.5	4.5	4.5
加熱収縮率(MD) (TD)	%	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
		0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
引張弾性率(MD) (TD)	GPa	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7
		7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
シリカ添加量	重量%	0.03	0.10	0.10	0.15	0.10
流度分布	μm	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0	0.08~2.0
平均粒径	μm	0.30	0.30	0.50	0.50	0.70
突起数	個/mm <sup>2</sup>	5.5×10 <sup>5</sup>	1.2×10 <sup>6</sup>	8.2×10 <sup>5</sup>	1.4×10 <sup>6</sup>	7.6×10 <sup>5</sup>
寸法変化率	%	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
カール	mm	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6
摩擦係数		0.88	0.71	0.72	0.35	0.54

\* 表中のモル比は、全芳香族ジアミン成分中におけるモル%及び全芳香族テトラカルボン酸類成分中におけるモル%をそれぞれ示す。

[比較例 1~4]

実施例 1 と同様の手順で、芳香族ジアミン成分および芳香族テトラカルボン酸成分、シリカの添加量、平均粒子径をを表 4 に示す割合でそれぞれポリアミック酸溶液を得た後、横方向・縦方向の延伸倍率を表 4 のように行い実施例 1 と同じ操作で得られたポリイミドフィルムの各特性評価を行い、表 4 にその結果を示した。

【表 4】

比較例		1	2	3	4
各原料の比率 (モル比*)		PPD 70 4,4'-ODA 30 BPDA 25 PMDA 75	PPD 25 4,4'-ODA 75 BPDA 20 PMDA 80		PPD 28 4,4'-ODA 72 BPDA 20 PMDA 80
延伸倍率(MDX) (TDX)		1.2 1.3	1.2 1.3	1.1 1.5	1.1 1.5
熱膨張係数(MD) (TD)	ppm/°C	7.5 6.0	12.3 13.2	16.4 6.0	15.8 4.8
加熱収縮率(MD) (TD)	%	0.03 0.02	0.02 0.01	0.01 0.01	0.02 0.02
引張弾性率(MD) (TD)	GPa	7.7 8.0	6.2 6.3	5.9 6.4	6.0 6.6
シリカ添加量	重量%	0.03	0.03	無し	無し
流度分布	μm	0.08~2.0	0.08~2.0	—	—
平均粒径	μm	0.30	0.30	—	—
突起数	個/mm <sup>2</sup>	2.5×10 <sup>5</sup>	3.5×10 <sup>5</sup>	0	0
寸法変化率	%	0.02	0.06	0.02	0.02
カール	mm	9.7	4.7	3.3	2.5
摩擦係数		0.85	0.80	2.24	2.08

\*表中のモル比は、全芳香族ジアミン成分中におけるモル%及び全芳香族テトラカルボン酸類成分中におけるモル%をそれぞれ示す。(段落【0039】～【0069】)

#### コ 「【産業上の利用可能性】

本発明のポリイミドフィルムは、ファインピッチ回路用基板、特にフィルムのTDに狭ピッチに配線されるCOF (Chip on Film) 用に好適に用いることができる。(段落【0069】～【0070】)

### 2. 無効理由1について

#### (1) 本件特許発明について

本件特許発明(前記「第2 本件特許に係る発明」参照。)は、従来の「ところで近年、配線の微細化への対応で、銅貼り積層体は接着剤を用いない2層タイプ(ポリイミドフィルム上に銅層が直接形成)が採用されている。これはフィルム上へのめっき法により銅層を形成させる方法、銅箔上にポリアミック酸をキャストした後イミド化させる方法があるが、いずれもラミネーション方式のような熱圧着工程ではなく、したがってフィルムのMDの熱膨張係数をTDより小さくする必要は無くなり、さらには2層タイプで主流をしめるCOF用途では、フィルムのTDに狭ピッチで配線されるパターンが一般的で、逆にTDの熱膨張係数が大きいとチップ実装ボンディング時等で配線間の寸法変化が大きくなり、ファインピッチ化要求への対応が困難であった。これに対応するにはフィルムの熱膨張係数をシリコンに近似させるほどに小さくさせるのが理想であるが、銅との熱膨張差異が生じるのでチップ実装のボンディング時をはじめとする加熱される工程によりひずみ

が生じるという問題」(摘示イ)を解決するために「金属に近似した熱膨張係数を保持しつつ、フィルムTDの寸法変化を低減させることができるCOF用などのファインピッチ回路用基板に好適なポリイミドフィルムおよびそれを基材とした銅張り積層体の提供を目的」(摘示ウ)とするものであって、本件特許における特許請求の範囲に記載の本件特許発明1乃至6で特定されるCOF用基板、本件特許発明7乃至8で特定される銅張り積層体、本件特許発明9で特定されるポリイミドフィルムによって発明の課題の解決を達成し、当該課題を解決するCOF用基板及びポリイミドフィルムを得る製造方法が、本件特許発明10及び11であると認められる。

そして、本件特許発明における「島津製作所製TMA-50を使用し、測定温度範囲：50～200℃、昇温速度：10℃/minの条件で測定したフィルムの機械搬送方向(MD)の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が10ppm/℃以上20ppm/℃以下の範囲にあり、前記条件で測定した幅方向(TD)の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が3ppm/℃以上7ppm/℃以下の範囲にあ」るポリイミドフィルムをうるためには、「本発明のポリイミドフィルムを製造する際には、まず芳香族ジアミン成分と酸無水物成分とを有機溶媒中で重合させることにより、ポリアミック酸溶液を得」(摘示カ)、「ポリイミドフィルムを製膜する方法としては、ポリアミック酸溶液をフィルム状にキャストし熱的に脱環化脱溶媒させてポリイミドフィルムを得る方法、およびポリアミック酸溶液に環化触媒及び脱水剤を混合し化学的に脱環化させてゲルフィルムを作成しこれを加熱脱溶媒することによりポリイミドフィルムを得る方法が挙げられ」(摘示キ)、望ましいゲルフィルムを得る方法として「後者の方が得られるポリイミドフィルムの熱膨張係数を低く抑えることができるので好ましい。」(摘示キ)とされており、「上記支持体から剥離されたゲルフィルムは、通常回転ロールにより走行速度を規制しながら走行方向に延伸される。機械搬送方向への延伸倍率(MDX)は、140℃以下の温度で1.01～1.9倍、好ましくは1.05～1.6倍、さらに好ましくは1.05～1.4倍で実施される。搬送方向に延伸されたゲルフィルムは、テンター装置に導入され、テンタークリップに幅方向両端部を把持されて、テンタークリップと共に走行しながら、幅方向へ延伸される。この時フィルムの機械搬送方向(MD)の延伸倍率に比べ幅方向(TD)の延伸倍率を高く設定すること、具体的には幅方向の延伸倍率を機械搬送方向の延伸倍率の1.1～1.5倍に設定することによってフィルムTDに配向勝ったフィルムすなわちフィルムMDには金属に近似した熱膨張係数を保持しつつ、フィルムTDの熱膨張係数を低く抑えたフィルムを得ることができる。」(摘示キ)とされている。

そして、本件特許発明に係る4成分系のポリイミドフィルムについての製造過程が実施例1として具体的に記載され、当該ポリイミドフィルムからCOF用基板を製造する具体的な方法と当該ポリイミドフィルムを用いて製造されたCOF用基板が示す物性について、実施例1～15として表1～3に記載(摘示ケ)されている。

## (2) 無効理由1に係る特許法第36条第4項第1号について

前記「(1)本件特許発明について」に記載したとおり、本件特許発明は、「パラフェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3,4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルム」であることをその発明を特定するための事項(以下、「発明特定事項」という。)としているが、当該選択肢の中の4成分系であるパラフェニレンジアミン及び4,4'-ジアミノジフェニルエーテルの芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3,3'-4,4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物である酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミド

フィルム及びパラフェニレンジアミン3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルムについては、具体的な実施例（前者の4成分系については実施例1～10、後者の4成分系については実施例11～15）として記載されている。

そうすると、上記本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載は、本件特許発明について、その技術的な意義について明確に記載されており（摘示ア～ウ）、本件特許発明に係るポリイミドフィルムを得るための一般的手段についても明記（摘示エ）されていて、その実施例についても、上記のとおり4成分系のものについて具体的に開示されている。

してみると、本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載は、本件特許発明における複数の選択肢の一つである4成分系のポリイミドフィルムの発明に関して、特許法第36条第4項第1号の要件、いわゆる実施可能要件を満足していることは明らかである。

なお、請求人から、当該実施例を当業者が実施をすることができないという主張もなされていない。

そこで、本件特許発明における複数の選択肢の一つである2成分系でのポリイミドフィルムについて、当業者が本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識に基づいても、その実施ができないという具体的な理由があるか否かを以下検討する。

請求人が提示した甲第1号証、甲第2号証、甲第3～17号証には、2成分系でのポリイミドフィルムのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が

3 ppm/°C以上7 ppm/°C以下であり、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が10 ppm/°C以上20 ppm/°C以下のポリイミドフィルムは記載されておらず、さらに、2成分系でのポリイミドフィルムのTD方向及びMD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ 及び $\alpha_{MD}$ がともに10 ppm/°C以上

20 ppm/°C以下の範囲内に入るポリイミドフィルムについても記載されていない。そして、前記甲各号証を精査しても、2成分系でのポリイミドフィルムのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が3 ppm/°C以上7 ppm/°C以下であり、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が10 ppm/°C以上20 ppm/°C以下のポリイミドフィルムを得る方法については記載されていない。

しかしながら、乙第11号証には、その特許請求の範囲に

「1 ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とを重合して生成したポリマーの溶液から得られた芳香族ポリイミド製のフィルムであり、そのポリイミドフィルムは、約50°Cから300°Cまでの温度範囲での平均

線膨張係数が、約 $0.1 \times 10^{-5} \sim 2.5 \times 10^{-5} \text{ cm/cm} \cdot \text{°C}$ であつて、しかもフィルムの長手方向（MD方向）と横断方向（TD方向）との線膨張係数の比

（MD/TD）が、約1/5～4程度であり、さらに、常温から400°Cまで昇温し、400°Cの温度に2時間維持する加熱を行つた前後の常温でのフィルムの寸法の変化率で示す熱寸法安定性が、約0.3%以下であることを特徴とする寸法安定なポリイミドフィルム。

2 ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とを有機極性溶媒中で重合して得られたポリマーの溶液を調製し、

次いで、そのポリマー溶液を使用して、支持体表面に、前記溶液の薄膜を形成し、その薄膜を乾燥して、前記溶媒及び生成水分が約27～60重量%残存している固化フィルム状体を形成し、

さらに、その固化フィルム状体を前記支持体表面から剥離し、

100 g/mm<sup>2</sup>以下の低張力下および約80～250°Cの範囲内の温度で乾燥して、前記溶媒及び生成水分が約5～25重量%の範囲内で含有されている固化フィルムを形成し、最後に、前記固化フィルムを、前記乾燥温度より高い200～500°Cの範囲内の温度で、少なくとも一対の両端縁を固定した状態で、

乾燥・熱処理することを特徴とする寸法安定なポリイミドフィルムの製法。」

と記載があり、その発明の詳細な説明において、

「この発明の方法では、前述のドープ液の調製に続いて、

(a) 前記ドープ液を使用し、好ましくは連続的または断続的に、公知の溶液流延法などで、平滑な表面を有する金属製のドラムまたはベルトなどの支持体の表面に、均質な厚さの前記ドープ液の薄膜を形成し、

(i) 好ましくは約40～180℃、特に好ましくは50～150℃の乾燥温度で、薄膜の溶媒及び生成水分を徐々に蒸発させて、その薄膜を前記支持体上で乾燥して、

前記溶媒及び生成水分が、約27～60重量%、好ましくは30～50重量%残存している固化フィルム状態を形成し、

(b) 次いで、その固化フィルム状態を、前記支持体の表面から剥離し、

(i) 100 g/mm<sup>2</sup>以下、好ましくは80 g/mm<sup>2</sup>以下である『実質的にフリーな状態ないしは前記上限までの低張力下』、および

(ii) 約80～250℃、好ましくは100～230℃の範囲内の乾燥温度で、好ましくは約1～200分間、特に2～100分間乾燥して、

前記溶媒及び生成水分が、約5～25重量%、好ましくは10～23重量%の範囲内で含有されている固化フィルムを、好ましくは連続的または断続的に、形成するのである。

前述の第1段階の乾燥温度から第2段階の乾燥温度に昇温する際には、比較的短時間に昇温することが好ましく、例えば、10℃/分以上の昇温速度であることが好適である。

この発明の方法においては、前記の固化フィルム状態を支持体から剥離した後に乾燥する際に固化フィルム状態に対して加えられる張力を増大することによつて、最終的に得られるポリイミドフィルムの平均線膨張係数を小さくすることができ、この平均線膨張係数を前述の範囲内において希望する値に調節することができる。」(公報第4頁7欄28行～8欄24行)

と具体的な製造方法が記載され、同じく発明の詳細な説明には、実施例として2成分系(3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物とパラフェニレンジアミン)でのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が

12 ppm/℃、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が14 ppm/℃のポリイミドフィルム(実施例5)や2成分系(3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物とパラフェニレンジアミン)でのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が13 ppm/℃、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が

11 ppm/℃のポリイミドフィルム(実施例4)、及び、MD方向とTD方向の線膨張係数の比の調整方法についても具体的に記載されていることから、 $\alpha_{TD}$ 及び $\alpha_{MD}$ が本件特許発明のものと重複一致したポリイミドフィルムを開示する当該特許公告公報を知り得た当業者は、本件特許発明のPPD/BPDAの2成分系のポリイミドフィルムを得ることができたと考えるのが自然である。

他方、その他の2成分系の本件特許発明のポリイミドフィルムについては、すべての証拠を検討しても、提示された証拠に記載されている2成分系のポリイミドフィルムから本件特許発明のポリイミドフィルムを得ることができたとはいえないが、本件原出願時において、当該提示された証拠のものしか存在せず、その他の2成分系のポリイミドフィルムが存在していなかったとまではいえないことから、当該主張をもって、本件原出願時の技術常識(熱膨張係数は、フィルムの厚みにより薄くなると低下する変化をすること、フィルムの熱処理により熱膨張係数が変化すること等)を有し、上記請求人による特公平4-6213号公報を知り得た当業者が、本件特許発明の特定のTD方向およびMD方向の線膨張係数を有するポリイミドフィルムを得ることができなかつたとまではいえない。

そうすると、本件特許発明における2成分系でのポリイミドフィルムについて、当業者が本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識に基づいても、その実施ができないという具体的な理由があるとまではいえない。

以上のことから、本件特許明細書の発明の詳細な説明には、本件特許発明についての技術的な意義（摘示ア～ウ）、本件特許発明に係るポリイミドフィルムを得るための一般的手段（摘示エ）、4成分系のポリイミドフィルムについて具体的な実施例（摘示ケ）、が各々記載されていて、本件特許発明の2成分系のポリイミドフィルムについて発明の詳細な説明の記載及び本件原出願時の技術常識に基づいても実施できないという具体的な理由があるとまではいえないから、発明の詳細な説明は、本件特許発明を当業者が理解し、実施することができる程度に明確かつ十分に記載したものであるといえる。

そうであってみれば、本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載は、特許法第36条第4項第1号の規定を満足しているといえる。

### （3）無効理由1に係る特許法第36条第6項違反について

特許請求の範囲の記載が、特許法第36条第6項第1号に規定する要件（以下、「サポート要件」ともいう。）に適合するか否かは、特許請求の範囲に記載された本件特許発明と発明の詳細な説明に記載された発明とを対比し、特許請求の範囲に記載された本件特許発明が、発明の詳細な説明に記載された発明であって、発明の詳細な説明の記載により当業者が当該発明の課題を解決できると認識できる範囲のものであるか否かを検討して判断すべきものである。

本件特許発明は「パラフェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルム」であることを発明特定事項としているから、当該記載に含まれる2成分系を含む多種のポリイミドフィルムについての本件特許発明が、当業者において、本件特許発明の課題を解決できると認識できるような記載があるか否かについて確認する。

本件特許発明に関しての本件特許明細書の記載は、上記（1）において言及したとおりであって、当該記載に基づけば、本件原出願時における当業者の技術常識を踏まえれば、ポリイミドフィルムを構成する樹脂組成には無関係に、ポリイミドフィルムのTD方向及びMD方向の熱膨張係数を特定値とすることで、本件特許発明の課題を解決できると理解できるものと認められる。

そうすると、2成分系を含む「パラフェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルおよび3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる1以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる1以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルム」についての本件特許発明が、当業者において、本件特許発明の課題を解決できると認識できるような記載があるといえることから、本件の特許請求の範囲の本件特許発明は、発明の詳細な説明に記載された発明であって、特許法第36条第6項第1号の規定を満足しているといえる。

### （4）請求人の主張について

無効理由1について、請求人は、審判請求書及び平成25年4月10日付け口頭審理陳述要領書並びに平成25年5月24日付け上申書において、以下の事項を主張している。

（ア）ポリイミドフィルムの延伸技術において、MD方向の熱膨張係数とTD方向の熱膨張係数を、それぞれ所定の数値範囲にするには、ポリイミド

の原料の選択、フィルムの延伸温度及び延伸倍率などの運転条件のより細かい制御が必要であって、延伸制御においても、MD方向の延伸によりMD方向の熱膨張係数は低下していくがTD方向の熱膨張係数は上昇し、MD方向およびTD方向の両方の熱膨張係数を所定の範囲に収めることは、非常に多くの試行錯誤が必要であり、特定の条件が満たされた範囲でしか達成できない。

(イ) PPD (パラフェニレンジアミン) と BPDA (3, 3' - 4, 4' -ジフェニルテトラカルボン酸無水物) との2成分系のポリイミドフィルムの熱膨張係数は、5 ppm以下のものが圧倒的に多く、本件特許発明の熱膨張係数に比べて小さすぎるため、延伸することによって本件特許発明の熱膨張係数とすることはできない。

(ウ) ODA (ジアミノジフェニルエーテル) とPMDA (ピロメリット酸二無水物) との2成分系のポリイミドフィルムは、熱膨張係数が大きすぎるため、延伸することによって本件特許発明の熱膨張係数とすることはできない。

(エ) ODAとBPDAの2成分系のポリイミドフィルムは、熱膨張係数が大きすぎるため、延伸することによって本件特許発明の熱膨張係数とすることはできない。

(オ) 特許請求の範囲の全範囲が実施可能でなければならないが、上記(イ)(ウ)(エ)の記載のとおり、2成分系のポリイミドフィルムは実施できないから、特許法第36条第4項第1号の要件を満足していない。

(カ) 被請求人が提出している乙第8～11号証に記載されている2成分系のポリイミドフィルムの製造方法は、本件特許明細書における実施例で記載されている化学閉環法による製造方法ではなく、熱閉環法による製造方法であるため、本件特許明細書に記載の製造方法は適用できず、当業者においても、本件原出願時に本件特許発明のMD方向及びTD方向の特定の線膨張係数のフィルムを得ることはできない。

(キ) 被請求人が提出している乙第8～11号証には、PPD/BPDAの2成分系の熱膨張係数が10～20 ppm/°Cのポリイミドフィルムが記載されているが、当業者は、所望の熱膨張係数(10～20 ppm/°C)を有するPPD/BPDAの2成分系のポリイミドフィルムを製造できない。

(ク) 乙第8～11号証のポリイミドフィルムが延伸に不適当なことは甲第13号証にも記載されて、PPD/BPDAの2成分系ポリイミドフィルムでは、本件特許明細書に記載されている化学イミド化によると、熱膨張係数は本件特許発明の数値範囲より小さな値となり、本件特許明細書に記載されている延伸ではその数値を実現することが不可能である。熱イミド化により製造されるポリイミドフィルムの場合は、延伸が困難であり、当業者は、本件特許発明のフィルムを製造することができない。

(ケ) 請求人は、延伸だけでなく、独自のノウハウで、本件特許発明の数値範囲の熱膨張係数を実現できるが、本件特許明細書の記載には実施可能性がないことが明白である。

(コ) ODAとPMDAの2成分系およびODAとBPDAの2成分系については、被請求人が、これがあれば実施可能であるとする、未延伸で12～20 ppm/°Cのポリイミドフィルムの存在を示す証拠の提出は、これまで一切なく、また、ODAとBPDAの2成分系、又は被請求人のポリイミドフィルムの製品組成であり被請求人が熱膨張係数をよく知っているはずのODAとPMDAの2成分系ですら、本件特許発明の所定の熱膨張係数が達成されるとする主張は、これまで一切ないことから、ODAとPMDA

の2成分系、及びODAとBPDAの2成分系により本件特許発明の所定の熱膨張係数を有するポリイミドフィルムが得られないことが裏付けられている。

以下、これらの主張について検討する。

[主張（ア）について]

ポリイミドフィルムの延伸技術において、ポリイミドの原料の選択、フィルムの延伸温度及び延伸倍率などの運転条件等の細かな制御が必要であること、及び、延伸制御において、一方向の延伸により当該方向の熱膨張係数は低下していくが他方向の熱膨張係数は上昇する変化をすることは、本件原出願時の当業者の技術常識であって、本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識を踏まえれば、本件特許発明の実施に過度の試行錯誤を要するものとはいえず、請求人の主張（ア）は、採用できない。

[主張（イ）～（エ）について]

主張（イ）～（エ）については、上記2.（2）において検討したとおりである。

[主張（オ）について]

特許法第36条第4項第1号の規定は、「発明の詳細な説明の記載は、・・・その発明の属する技術の分野における通常の知識を有する者がその実施をすることができる程度に明確かつ十分に記載したものであること」とされており、請求項に記載されている発明のすべての選択肢についての実施の形態を示すことを要求するものであると解することはできない。

そして、本件特許発明における選択肢である2成分系のポリイミドフィルムについて、当業者が本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識をもってしても実施できないという理由があるとまではいえないことは、上記検討のとおりであるから、請求人の主張（オ）は、採用できない。

[主張（カ）～（ケ）について]

まず、本願発明10及び11で特定している製造方法には、ポリイミドの硬化方法についての記載はなく、本願発明10及び11は、熱閉環法に限定されているものではないから、請求人の主張は、その前提から誤っている。

次に、乙第8～11号証に記載されているポリイミドフィルムの製造方法は、熱閉環法による製造方法であり、本件特許明細書の実施例に記載されている化学閉環法による製造方法とは異なっているが、本件特許明細書においては、本件特許発明に係るポリイミドフィルムの製造方法として、熱閉環法について「ポリイミドフィルムを製膜する方法としては、ポリアミック酸溶液をフィルム状にキャストし熱的に脱環化脱溶媒させてポリイミドフィルムを得る方法、およびポリアミック酸溶液に環化触媒及び脱水剤を混合し化学的に脱環化させてゲルフィルムを作成しこれを加熱脱溶媒することによりポリイミドフィルムを得る方法が挙げられる」（摘示キ）との記載からみて、熱閉環法による製造を全く除外しているものではない。

そして、乙第11号証を知り得ていた本件原出願時の当業者の技術常識を参酌すれば、少なくとも乙第11号証に記載されているPPDとBPDAの2成分系のポリイミドフィルムについては、熱閉環法を利用して本件特許発明に係るポリイミドフィルムを得ることができたといえることは、上記2.

（2）での検討のとおりである。

さらに、乙第11号証の公告公報において、実施例として記載されているポリイミドフィルムを、当業者が製造できないとする主張は、その具体的根拠が不明であり、受け入れられない。

してみれば、請求人の主張は失当であって、採用できない。

#### [主張（コ）について]

本件特許発明は、上記（３）のサポート要件についての検討において確認したとおり、COF用のポリイミドフィルムにおいてのMD方向の熱膨張係数とTD方向の熱膨張係数を特定の範囲とすることで、寸法安定性に優れたファインピッチ用基板を得ることができるというものであって、２成分系を含む「パラフェニレンジアミン、４，４′-ジアミノジフェニルエーテルおよび３，４′-ジアミノジフェニルエーテルからなる群から選ばれる１以上の芳香族ジアミン成分と、ピロメリット酸二無水物および３，３′-４，４′-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物からなる群から選ばれる１以上の酸無水物成分とを使用して製造されるポリイミドフィルム」についての本件特許発明が、当業者において、本件特許発明の課題を解決できると認識できるように記載されていると認められるものである。

そして、組成として複数の選択肢がある本件特許発明において、本件特許明細書において４成分系のポリイミドフィルムについてのみの実施例の開示であったとしても、２成分系のポリイミドフィルムについても、本件特許明細書の記載及び本件原出願時の当業者の技術常識を勘案すれば、実施できなかったとまではいえないことは上記２．（２）での検討のとおりであるから、被請求人が、実施できる証拠を提示しないことをもって、本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載が、特許法第３６条第４項第１号の規定に違反しているということとはできず、請求人の主張は採用できない。

#### （５）無効理由１についてのまとめ

以上のとおりであるから、請求人の主張する無効理由１によっては、本件特許を無効とすることはできない。

### ３．無効理由２について

#### （１）無効理由２に係る特許法第３６条第４項第１号違反について

本件特許発明１０及び１１は、物を生産する方法の発明であるから、当該方法の発明について実施することができるとは、その方法を使用できることであるから、発明の実施の形態も、これが可能となるように記載されていることが必要であり、このための要件として、以下の２つが必要とされる。

その１：当該方法の発明について明確に説明されていること。

その２：その方法により物を作ることができること。

そこで、本件特許の発明の詳細な説明の記載において、上記２つの要件について確認すると、「その１」については、摘示キから、本件特許発明１０及び１１については、明確に説明されている。

「その２」については、摘示ケには、４成分系のポリイミドフィルムについての具体的な製造過程と本件特許発明９のポリイミドフィルム及び本件特許発明１のCOF用基板が製造されていると認められることから、本件特許発明１０及び１１のポリイミドフィルムの中の選択肢に含まれる一部の実施の形態が具体的に開示されている。

してみると、本件特許明細書の発明の詳細な説明の記載は、本件特許発明１０及び１１における複数の選択肢の一つである４成分系の本件特許発明９のポリイミドフィルムの製造方法である本件特許発明１１及び本件特許発明１のCOF用基板の製造方法である本件特許発明１０に関しては、特許法第３６条第４項第１号の要件、いわゆる実施可能要件を満足していることは明らかである。

なお、請求人から、当該実施例を当業者が実施をすることができないという主張もなされていない。

そこで、本件特許発明10及び11における複数の選択肢の一つである2成分系での本件特許発明9のポリイミドフィルムの製造方法である本件特許発明11及び本件特許発明1のCOF用基板の製造方法である本件特許発明10について、当業者が本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識に基づいても、その物を作ることができないという具体的な理由があるか否かを以下検討する。

上記2.(2)で検討したとおり、乙第11号証には、実施例として2成分系(3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物とパラフェニレンジアミン)でのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が

12ppm/°C、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が14ppm/°Cのポリイミドフィルム(実施例5)や2成分系(3, 3'-4, 4'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物とパラフェニレンジアミン)でのTD方向の熱膨張係数 $\alpha_{TD}$ が13ppm/°C、MD方向の熱膨張係数 $\alpha_{MD}$ が

11ppm/°Cのポリイミドフィルム(実施例4)、及び、MD方向とTD方向の線膨張係数の比の調整方法についても具体的に記載されていることから、 $\alpha_{TD}$ 及び $\alpha_{MD}$ が本件特許発明のものと重複一致したポリイミドフィルムを開示する当該特許公告公報を知り得た当業者は、当該記載のポリイミドフィルムについて本願発明10又は11に記載の延伸処理を行うことで、本件特許発明のPPD/BPDAの2成分系のポリイミドフィルムを得ることができたと考えるのが自然である。

なお、請求人は、乙第8~11号証の条件で1.1倍以上延伸するとフィルムが破断してしまうと主張しているが、延伸時の温度条件により延伸の可否は変化するものであるから、延伸温度を規定しない当該主張は失当で採用できない。

他方、その他の2成分系の本件特許発明のポリイミドフィルムについては、すべての証拠を検討しても、提示された証拠に記載されているその他の2成分系のポリイミドフィルム及びその製造方法から本件特許発明のその他の2成分系のポリイミドフィルムが得られているとはいえないが、本件原出願時において、当該提示された証拠のものしか存在せず、その他の2成分系のポリイミドフィルムが存在していなかったとまではいえないことから、本件原出願時の技術常識(熱膨張係数は、フィルムの厚みが薄くなると低下すること、フィルムの熱処理により熱膨張係数が変化すること等)を有し、上記請求人による特公平4-6213号公報を知り得た当業者が、本件特許発明10及び11の製造方法により、特定のTD方向およびMD方向の線膨張係数を有する本件特許発明のポリイミドフィルムを得ることができなかつたとまではいえない。

そうすると、本件特許発明10及び11における2成分系でのポリイミドフィルムの製造方法について、当業者が本件特許明細書の記載及び本件原出願時の技術常識に基づいても、その実施ができないという具体的な理由があるとまではいえない。

以上のことから、本件特許明細書の発明の詳細な説明には、本件特許発明10及び11を当業者が理解し、実施することができる程度に明確かつ十分に記載したものであるといえるから、特許法第36条第4項第1号の規定を満足している。

## (2) 無効理由2に係る特許法第36条第6項違反について

上記2.(3)において検討した同様の理由により、本件の特許請求の範囲の本件特許発明10及び11は、発明の詳細な説明に記載された発明であって、特許法第36条第6項第1号の規定を満足しているといえる。

## 第6 むすび

以上のおりであるから、審判請求書、平成25年4月10日付け口頭審理陳述要領書、及び、平成25年5月24日付け上申書における請求人の主張、並びに、証拠方法を考慮しても、請求人の主張する無効理由1乃至2によっては、本件特許を無効とすることはできない。

審判に関する費用については、特許法第169条第2項の規定で準用する民事訴訟法第61条の規定により、請求人が負担すべきものとする。

よって、結論のおり審決する。

平成25年 7月30日

審判長	特許庁審判官	田口 昌浩
	特許庁審判官	小野寺 務
	特許庁審判官	大島 祥吾

(行政事件訴訟法第46条に基づく教示)

この審決に対する訴えは、この審決の謄本の送達があった日から30日(附加期間がある場合は、その日数を附加します。)以内に、この審決に係る相手方当事者を被告として、提起することができます。

---

[審決分類] P 1 1 1 3. 5 3 6 - Y (C 0 8 J)  
5 3 7

---

審判長	特許庁審判官	田口 昌浩	8521
	特許庁審判官	小野寺 務	8118
	特許庁審判官	大島 祥吾	8710