

(19) 日本国特許庁(JP)

再 公 表 特 許(A1)

(11) 国際公開番号

W02013/147156

発行日 平成27年12月14日 (2015.12.14)

(43) 国際公開日 平成25年10月3日 (2013.10.3)

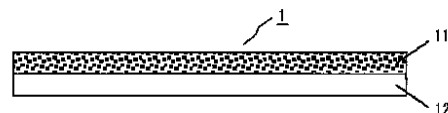
(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/04 (2006.01)	H05B 33/04	3K107
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14	4J004
C09J 7/00 (2006.01)	C09J 7/00	4J040
C09J 201/00 (2006.01)	C09J 201/00	
C09J 163/00 (2006.01)	C09J 163/00	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 21 頁) 最終頁に続く		

出願番号	特願2013-543432 (P2013-543432)	(71) 出願人	000005290
(21) 国際出願番号	PCT/JP2013/059520		古河電気工業株式会社
(22) 国際出願日	平成25年3月29日 (2013.3.29)		東京都千代田区丸の内二丁目2番3号
(31) 優先権主張番号	特願2012-83117 (P2012-83117)	(74) 代理人	100076439
(32) 優先日	平成24年3月30日 (2012.3.30)		弁理士 飯田 敏三
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(74) 代理人	100131288
			弁理士 宮前 尚祐
		(72) 発明者	鈴木 俊宏
			東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
		(72) 発明者	服部 聡
			東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物、その製造方法、該樹脂組成物を用いた接着フィルム、ガスバリアフィルム、有機エレクトロルミネッセンス素子および有機エレクトロル

(57) 【要約】

乾燥剤および硬化性成分を含み、硬化後のせん断破壊面の表面粗さRaが0.5 μm以上である有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物、その製造方法、該樹脂組成物からなる接着フィルム、ガスバリアフィルム、これを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンスパネル。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

乾燥剤および硬化性成分を含み、硬化後のせん断破壊面の表面粗さ R_a が $0.5 \mu m$ 以上であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 2】

さらに、バインダー樹脂を含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 3】

前記乾燥剤の平均粒径が、 $0.01 \sim 5 \mu m$ であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 4】

前記バインダー樹脂が、(メタ)アクリル系ポリマー、ゴム系ポリマー、フェノキシ樹脂、ウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエチレン樹脂およびポリスチレン樹脂から選択される 1 種以上の樹脂であることを特徴とする請求項 2 または 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 5】

前記バインダー樹脂が、(メタ)アクリル系ポリマー、フェノキシ樹脂およびポリエステル樹脂から選択される 1 種以上の樹脂であることを特徴とする請求項 2 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 6】

前記乾燥剤、前記バインダー樹脂および溶剤の混合物を、該乾燥剤の平均粒径が $5 \mu m$ 以下になるまで破碎した後に、硬化性成分を混合して得られてなることを特徴とする請求項 2 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

【請求項 7】

請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物からなる接着剤層を有し、該接着剤層の両面または片面に剥離フィルムを仮着させてなることを特徴とする接着フィルム。

【請求項 8】

前記接着フィルムが、2 層以上の接着剤層を有し、該接着剤層の少なくとも 1 層は請求項 7 に記載の接着剤層であって、かつ有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の接着剤層が、乾燥剤を含有しないことを特徴とする請求項 7 に記載の接着フィルム。

【請求項 9】

請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物を含むことを特徴とするガスバリアフィルム。

【請求項 10】

請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物で封止されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 11】

請求項 10 に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 12】

乾燥剤、硬化性成分およびバインダー樹脂を含み、硬化後のせん断破壊面の表面粗さ R_a が $0.5 \mu m$ 以上である有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物の製造方法であって、該バインダー樹脂と該乾燥剤を溶剤中で混合し、ビーズミルを用いて該乾燥剤の平均粒径が $5 \mu m$ 以下になるまで破碎したプレワニスを作製した後に、該硬化性成分を混合することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物の製造方法。

10

20

30

40

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電界の印加によって高輝度発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の封止に使用する樹脂組成物に関し、さらに詳しくは有機エレクトロルミネッセンス素子を水分その他から保護するために、基板上に形成された有機エレクトロルミネッセンス素子の全面に被覆形成される樹脂組成物、その製造方法、該樹脂組成物を用いた接着フィルム、ガスバリアフィルム、有機エレクトロルミネッセンス素子および有機エレクトロルミネッセンスパネルに関する。

【背景技術】

10

【0002】

発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機もしくは有機エレクトロルミネッセンス素子（以降、無機もしくは有機EL素子と称す）が挙げられる。無機EL素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。有機EL素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、さらに自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

20

【0003】

有機EL素子は多結晶の半導体デバイスであり、低電圧で高輝度の発光を得られるため液晶のバックライトなどに使用され、薄型平面表示デバイスと期待されている。しかしながら、有機EL素子は水分にきわめて弱く、金属電極と有機EL層との界面が水分の影響で剥離してしまったり、金属が酸化して高抵抗化してしまったり、有機物自体が水分によって変質してしまったりし、このようなことから発光しなくなったり、輝度が低下してしまったりという欠点がある。

有機EL素子は大気に含まれる水分等に触れると発光特性が劣化する性質があるので、有機ELパネルを長時間安定的に作動させるためには、有機EL素子を大気から遮断するための封止構造が必要不可欠になっている。有機ELパネルの封止構造としては、金属製又はガラス製の封止部材と有機EL素子が形成された基板とを貼り合わせて、有機EL素子を囲う封止空間を形成し、その封止空間内に乾燥剤を配備する構造（中空封止構造）が一般に採用されてきたが、パネルの更なる薄型化や強度向上等を考慮して、基板上の有機EL素子を空間なく直接封止材料で被覆する固体封止構造の検討が進められている（特許文献1参照）。また、近年では封止材料中に乾燥剤を添加してこれを有機EL素子上に積層して水分による影響から有機EL素子を守る方法が提案されている（特許文献2、3参照）。

30

【0004】

しかしながら、このように樹脂中に乾燥剤を添加させた場合でも、十分に樹脂中の水分の移動を抑制することができず、非発光点や発光面の周囲において発光が得られない表示欠陥、いわゆるダークスポットによる劣化が十分に改善できなかった。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2007-5107号公報

【特許文献2】特開2009-26648号公報

【特許文献3】特開2004-335208号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

50

【0006】

本発明は上記問題を解決し、有機エレクトロルミネッセンス素子に悪影響を及ぼすことなく封止を行うことにより長期間にわたって安定な発光特性を維持することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用の樹脂組成物、該樹脂組成物からなる接着フィルム、ガスバリアフィルム、これを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンスパネルを提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、接着剤層中の水分低減に使用する乾燥剤と樹脂界面の密着性の重要性から、硬化後の接着剤層のせん断破壊面の表面粗さが課題解決に対して重要であることを見出し、本発明を完成させるに至ったものである。

【0008】

すなわち、本発明の上記課題は下記的手段により達成された。

(1) 乾燥剤および硬化性成分を含み、硬化後のせん断破壊面の表面粗さ R_a が $0.5 \mu m$ 以上であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(2) さらに、バインダー樹脂を含有することを特徴とする(1)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(3) 前記乾燥剤の平均粒径が、 $0.01 \sim 5 \mu m$ であることを特徴とする(1)または(2)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(4) 前記バインダー樹脂が、(メタ)アクリル系ポリマー、ゴム系ポリマー、フェノキシ樹脂、ウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエチレン樹脂およびポリスチレン樹脂から選択される1種以上の樹脂であることを特徴とする(2)または(3)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(5) 前記バインダー樹脂が、(メタ)アクリル系ポリマー、フェノキシ樹脂およびポリエステル樹脂から選択される1種以上の樹脂であることを特徴とする(2)～(4)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(6) 前記乾燥剤、前記バインダー樹脂および溶剤の混合物を、該乾燥剤の平均粒径が $5 \mu m$ 以下になるまで破碎した後に、硬化性成分を混合して得られてなることを特徴とする(2)～(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物。

(7) 前記(1)～(6)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物からなる接着剤層を有し、該接着剤層の両面または片面に剥離フィルムを仮着させてなることを特徴とする接着フィルム。

(8) 前記接着フィルムが、2層以上の接着剤層を有し、該接着剤層の少なくとも1層は(7)に記載の接着剤層であって、かつ有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の接着剤層が、乾燥剤を含有しないことを特徴とする(7)に記載の接着フィルム。

(9) 前記(1)～(6)のいずれか1項に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物を含むことを特徴とするガスバリアフィルム。

(10) 前記(1)～(6)のいずれか1項に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物で封止されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

(11) 前記(10)に記載の前記有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネル。

(12) 乾燥剤、硬化性成分およびバインダー樹脂を含み、硬化後のせん断破壊面の表面粗さ R_a が $0.5 \mu m$ 以上である有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物の製造方法であって、該バインダー樹脂と該乾燥剤を溶剤中で混合し、ビーズミルを用いて該乾燥剤の平均粒径が $5 \mu m$ 以下になるまで破碎したプレワニスを作製した後に、該硬化性成分を混合することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物の製造方法。

【発明の効果】

【0009】

本発明により、有機エレクトロルミネッセンス素子に悪影響を及ぼすことなく封止を行うことにより長期間にわたって安定な発光特性を維持することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用の樹脂組成物、その製造方法、該樹脂組成物からなる接着フィルム、ガスバリアフィルム、これを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンスパネルが提供できる。

本発明の上記及び他の特徴及び利点は、適宜添付の図面を参照して、下記の記載からより明らかになるであろう。

【図面の簡単な説明】

【0010】

10

【図1】図1は、本発明の封止用接着フィルムの好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【図2】図2は、本発明の封止用接着フィルムで封止された有機エレクトロルミネッセンス素子の別の好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【図3】図3は、本発明の2層の接着剤層の封止用接着フィルムで封止された有機エレクトロルミネッセンス素子の好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【図4】図4は、本発明の2層の接着剤層の封止用接着フィルムで封止された有機エレクトロルミネッセンス素子の別の好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【図5】図5は、せん断破壊面の表面粗さRaを測定する際のせん断破壊の模式図である。

20

【発明を実施するための形態】

【0011】

以下に本発明の実施の形態を詳細に説明する。

本発明の樹脂組成物は、有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）封止用樹脂組成物である。

有機エレクトロルミネッセンス素子の封止は、次のように行われる。

まず、ガラスまたはフィルム基板上に透明電極を約0.1 μm の厚みで成膜する。透明電極の成膜に際しては、真空蒸着およびスパッタ等による方法がある。ただし、真空蒸着による成膜は、結晶粒が成長して膜表面の平滑度を低下させることがあり、薄膜エレクトロルミネッセンスに適用する場合には絶縁破壊膜や不均一発光の原因を作るため注意を要する。一方、スパッタによる成膜は表面の平滑性がよく、その上に薄膜デバイスを積層する場合に好ましい結果が得られている。続いて、透明電極の上部に正孔輸送層及び有機エレクトロルミネッセンス層を0.05 μm 厚みで順次成膜する。また、有機エレクトロルミネッセンス層の上部に背面電極を0.1～0.3 μm の厚みで成膜する。

30

【0012】

これらの素子の成膜を終えたガラスまたはフィルム基板の上部に本発明の熱硬化型の樹脂組成物をロールラミネータ等で転写する。この時、本発明の熱硬化型の樹脂組成物は予め基体フィルム（離型フィルム）上に延展されフィルム状に形成されていて、このフィルム状に形成された熱硬化型組成物をロールラミネータで転写する。次いで、転写した熱硬化型の樹脂組成物の上から非透水性ガラスまたはフィルム基板を重ね合わせる。これを、真空ラミネータ装置を用いて加熱圧着させ、上下基板の仮固着を行う。その後、加熱し、この加熱工程の温度で熱硬化型樹脂を完全硬化させる。なお、この加熱工程における加熱硬化の温度は、有機エレクトロルミネッセンス素子にダメージを与えないように120℃以下で行うことが望ましい。

40

【0013】

<樹脂組成物および接着剤層>

本発明の樹脂組成物は、少なくとも乾燥剤および硬化性成分を含み、硬化後の接着層のせん断破壊面の表面粗さRaが0.5 μm 以上である。

せん断破壊面の表面粗さRaは、0.5 μm 以上2.0 μm 以下が好ましく、0.5 μm 以上1.5 μm 以下がより好ましく、0.5 μm 以上1.0 μm 以下がさらに好ましい

50

。

【0014】

表面粗さ R_a を上記のように $0.5 \mu\text{m}$ 以上になるように乾燥剤／樹脂界面の密着を弱めることで、界面の水の拡散が早くなり、乾燥剤が十分に水を吸収でき、ダークスポットの発生が抑えられるものと考えられる。

硬化後の接着層のせん断破壊面の表面粗さ R_a は以下のようにして求めることができる。

。

【0015】

(せん断破壊面の表面粗さ R_a の測定方法)

厚み $20 \mu\text{m}$ の接着剤層の両面に剥離シートを有する接着フィルムの有機エレクトロルミネッセンス素子側に貼合する側の剥離フィルムを剥がし、 5mm 角のガラスに 60°C で加熱しながら貼り合わせる。その後、封止基板を接着させる側の接着剤層の剥離シートを剥離し、 12mm 角のガラスに $60^\circ\text{C} / 500 \text{gf} / 3 \text{s}$ で圧着させる。このようにして作製したサンプルを加熱炉中 100°C 、3 時間で加熱硬化させる。ガラス／接着フィルム／ガラスと積層されたサンプルの 5mm 角の接着フィルム部分に水平にヘッドを当て、破壊するまでせん断力をかけ、図 5 のようにして接着フィルムを破壊する。

破壊した接着フィルムの表面を表面形状測定レーザー顕微鏡（例えば、KEYENCE 社製 VF-7500：試料表面に He-Ne レーザーを照射し、反射光を読み取る方式の表面形状測定顕微鏡）により、表面粗さ R_a を測定する。なお、表面粗さ R_a は中心線平均粗さ R_a で、少なくとも 5 箇所以上の部分の算術平均として算出する。

なお、接着剤層を 2 層以上有した場合も、この 2 層以上積層された状態でせん断破壊面の表面粗さ R_a を求めるものである。

【0016】

本発明の樹脂組成物は、硬化型の樹脂組成物であり、この樹脂組成物を半硬化させた接着フィルム状態とすることが取り扱い性の面から好ましい。

すなわち、樹脂組成物からなるフィルム状の接着剤層を形成するものであり、該接着剤層の両面または片面に剥離フィルムを仮着させることが取り扱い性の面からより好ましい。

。

【0017】

このため、以下、樹脂組成物を接着剤層と称して説明する。

接着剤層は、硬化性成分を含む。

これらの硬化性成分を硬化させる目的で種々の成分の硬化剤を適宜使用することもできる。

接着剤層の厚さは、 $3 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、 $5 \sim 50 \mu\text{m}$ がより好ましい。

【0018】

(バインダー樹脂)

接着剤層には、フィルムに可とう性を付与する目的でバインダー樹脂を使用することができる。

【0019】

このようなバインダー樹脂としては、(メタ)アクリル系ポリマー、ゴム系ポリマー、フェノキシ樹脂、ウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリスチレン樹脂等が挙げられる。これらは 1 種でも 2 種以上併用してもよい。

このうち、本発明においては、(メタ)アクリル系ポリマー、フェノキシ樹脂、ポリエステル樹脂が好ましい。

(メタ)アクリル系ポリマーとしては、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸 2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸ヒドロキシメチル、(メタ)アクリル酸ヒドロキシエチル等の(メタ)アクリル酸エステルを構成成分とする重合体もしくは共重合体であることが好ましい。また、水酸基、カルボキシ基、エポキシ基、ニトリル基等を有する(メタ)アクリル酸や(メタ)アクリル酸エステルを構成成分に含んでもよい。(メタ)アクリル系ポリマーの調製

10

20

30

40

50

方法に特に制限はなく、溶液重合、エマルジョン重合、懸濁重合、塊状重合等の通常の方法で合成することができる。

このような（メタ）アクリル系ポリマーは質量平均分子量が5万以上であることが好ましく、特に10～100万であることがより好ましい。質量平均分子量が5万以上であると、シート状またはフィルム状としたときの可とう性、強度、タック性が適当である。質量平均分子量とは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定し、標準ポリスチレン検量線を用いて換算した値を示す。

また、（メタ）アクリル系ポリマーのガラス転移温度（ T_g ）は、 $-10\sim 30\text{ }^{\circ}\text{C}$ が好ましく、 $0\sim 20\text{ }^{\circ}\text{C}$ がより好ましい。

【0020】

フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA骨格、ビスフェノールF骨格、ビスフェノールS骨格、ビスフェノールアセトフェノン骨格、ノボラック骨格、ビフェニル骨格、フルオレン骨格、ジシクロペンタジエン骨格、ノルボルネン骨格、ナフタレン骨格、アントラセン骨格、アダマンタン骨格、テルペン骨格、トリメチルシクロヘキサン骨格から選択される1種以上の骨格を有するものが挙げられる。これらは1種または2種以上を使用してもよい。フェノキシ樹脂の質量平均分子量としては、30,000～100,000が好ましく、40,000～80,000であることがより好ましい。

【0021】

フェノキシ樹脂の市販品としては、具体的には、ジャパンエポキシレジン（株）製1256、4250（ビスフェノールA骨格含有フェノキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン（株）製YX8100（ビスフェノールS骨格含有フェノキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン（株）製YX6954（ビスフェノールアセトフェノン骨格含有フェノキシ樹脂）、ユニオンカーバイド社製PKHH（質量平均分子量（ M_w ）42600、数平均分子量（ M_n ）11200）、東都化成（株）製FX280、FX293、ジャパンエポキシレジン（株）製YL7553BH30、YL6794、YL7213、YL7290、YL7482等が挙げられ、なかでもジャパンエポキシレジン（株）製1256（ビスフェノールA骨格含有フェノキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン（株）製YX8100（ビスフェノールS骨格含有フェノキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン（株）製YX6954（ビスフェノールアセトフェノン骨格含有フェノキシ樹脂）、ユニオンカーバイド社製PKHH（質量平均分子量（ M_w ）42,600、数平均分子量（ M_n ）11,200）が好ましい。

【0022】

ポリエステル樹脂は、多価カルボン酸成分とポリオール（グリコール）成分との重縮合により得られる。当該多価カルボン酸として、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、オルソフタル酸、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、シクロヘキサジカルボン酸、トリメリット酸等の公知のものが挙げられる。また、上記ポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコールなどの脂肪族アルコールや、ポリエチレングリコールやポリプロピレングリコールなどのポリエーテルポリオールなどが挙げられる。本発明に用いるポリエステル樹脂の質量平均分子量は5,000～50,000であることが好ましく、10,000～30,000であることがより好ましい。

【0023】

また、本発明に用いるポリエステル樹脂のガラス転移温度（ T_g ）は、 $-20\sim 80\text{ }^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、 $0\sim 60\text{ }^{\circ}\text{C}$ であることがさらに好ましい。

T_g が高すぎると、樹脂組成物の可とう性が劣ってくる、逆に低すぎると樹脂組成物のタックが高くなり、作業性が悪化することがある。

【0024】

バインダー樹脂の樹脂組成物中の含有量は、固形分（不揮発成分）100質量部に対し、10～90質量部が好ましく、30～70質量部がより好ましい。

【0025】

（硬化性成分）

10

20

30

40

50

硬化性成分とは、熱、光などにより硬化反応を起こす組成物をいう。具体的には例えば、接着剤に使用される公知のポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエステルイミド樹脂、フェノキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリエーテルケトン樹脂、塩素化ポリプロピレン樹脂、アクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアクリルアミド樹脂、メラミン樹脂等やその混合物が挙げられる。

このうち本発明においてはエポキシ基を有するエポキシ化合物もしくは樹脂（以下、まとめてエポキシ樹脂と称する）が好ましい。

【0026】

エポキシ樹脂は、硬化して接着作用を呈するものであれば特に制限はないが、二官能基以上で、好ましくは分子量もしくは質量平均分子量が5,000未満、より好ましくは3,000未満のエポキシ樹脂が使用できる。また、好ましくは分子量が500以上、より好ましくは800以上のエポキシ樹脂が使用できる。

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、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、脂肪族鎖状エポキシ樹脂、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、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールのジグリシジリエーテル化物、ナフタレンジオールのジグリシジリエーテル化物、フェノール類のジグリシジリエーテル化物、アルコール類のジグリシジリエーテル化物、及びこれらのアルキル置換体、ハロゲン化物、水素添加物などの二官能エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂が挙げられる。また、多官能エポキシ樹脂や複素環含有エポキシ樹脂等、一般に知られているものを適用することもできる。これらは単独または二種類以上を組み合わせる使用することができる。さらに、特性を損なわない範囲でエポキシ樹脂以外の成分が不純物として含まれていてもよい。本発明においては、少なくとも2つのエポキシ基を有するエポキシ樹脂が好ましく、ビスフェノール型エポキシ樹脂（グリシジル基でフェノールの水酸基がエーテル化されたp-連結のビスフェノールもしくはノボラック型樹脂）が特に好ましい。

エポキシ樹脂のエポキシ当量は100～1000 g/e qが好ましく、150～500 g/e qがより好ましい。

エポキシ樹脂の樹脂組成物中の含有量は、固形分（不揮発成分）で全樹脂組成物100質量部に対し、10～70質量部が好ましく、20～60質量部がより好ましい。

【0027】

（硬化剤）

エポキシ樹脂の硬化剤としては、例えば、フェノール系樹脂を使用できる。フェノール系樹脂としては、アルキルフェノール、多価フェノール、ナフトール、ビスフェニレン等のフェノール類とアルデヒド類との縮合物等が特に制限されことなく用いられる。これらのフェノール系樹脂に含まれるフェノール性水酸基は、エポキシ樹脂のエポキシ基と加熱により容易に付加反応して、耐衝撃性の高い硬化物を形成できる。

フェノール系樹脂の水酸基当量は50～300 g/e qが好ましく、95～240 g/e qがより好ましい。フェノール系樹脂の含有量としては、エポキシ樹脂のエポキシ当量/フェノール系樹脂の水酸基当量で0.5～2程度が好ましく、0.8～1.2程度がより好ましい。

【0028】

さらに、フェノール系樹脂には、フェノールノボラック樹脂、o-クレゾールノボラック樹脂、p-クレゾールノボラック樹脂、t-ブチルフェノールノボラック樹脂、ジシクロペンタジエンクレゾール樹脂、ポリパラビニルフェノール樹脂、ビスフェノールA型ノボラック樹脂、フェノールビスフェニレン樹脂、あるいはこれらの変性物等が好ましく用いられる。

【0029】

その他の硬化剤として、熱活性型潜在性エポキシ樹脂硬化剤を使用することもできる。

この硬化剤は、室温ではエポキシ樹脂と反応せず、ある温度以上の加熱により活性化し、エポキシ樹脂と反応するタイプの硬化剤である。活性化方法としては、加熱による化学反応で活性種（アニオン、カチオン）を生成する方法、室温付近ではエポキシ樹脂中に安定に分散しており高温でエポキシ樹脂と相溶・溶解し、硬化反応を開始する方法、モレキュラーシーブ封入タイプの硬化剤により高温で溶出して硬化反応を開始する方法、マイクロカプセルによる方法等が存在する。

【0030】

熱活性型潜在性エポキシ樹脂硬化剤としては、各種のオニウム塩や、二塩基酸ジヒドラジド化合物、ジシアンジアミド、アミンアダクト硬化剤、イミダゾール化合物等の高融点活性水素化合物等を挙げることができる。

【0031】

（硬化促進剤）

また、助剤として硬化促進剤等を使用することもできる。本発明に用いることができる硬化促進剤としては特に制限がなく、例えば、第三級アミン、イミダゾール類、第四級アンモニウム塩などを用いることができる。本発明において好ましく使用されるイミダゾール類としては、例えば、２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾリウムトリメリテート等が挙げられ、これらは１種または２種以上を併用することもできる。イミダゾール類は、例えば、四国化成工業（株）から、２Ｅ４ＭＺ、２ＰＺ、２ＰＺ－ＣＮ、２ＰＺ－ＣＮＳという商品名で市販されている。

硬化促進剤の含有量は、エポキシ樹脂１００質量部に対し、硬化促進剤は０．０２～５質量部が好ましく、０．１～２質量部がより好ましい。

【0032】

（乾燥剤）

接着剤層中の水分低減、低透湿とするために乾燥剤を添加することが好ましく、本発明においては、少なくとも１層の接着剤層に乾燥剤を含有する。ここで、得られる乾燥剤含有接着剤層の状態として、乾燥剤と樹脂界面の密着を弱い状態にすることが好ましい。乾燥剤／樹脂界面の密着が強い場合、接着剤層中の乾燥剤／樹脂界面の水の拡散が遅くなり、結果として接着剤層の樹脂中に水が残りがやすく、乾燥剤表面に水が拡散しにくくなるため乾燥剤が十分に水を吸収できない。また、乾燥剤の吸水能が低くなるために水が透過しやすくなり、低透湿も達成困難となる。これに対し、乾燥剤／樹脂界面の密着が弱い場合、界面の水の拡散が早くなり、乾燥剤が十分に水を吸収でき、結果として接着剤層の樹脂中の水分を乾燥剤が吸水することで、樹脂中の水分が減少し、有機エレクトロルミネッセンス素子中へダメージが抑えられる。また、乾燥剤の吸水能が高くなるために水が透過しにくくなり、低透湿が達成可能となる。

【0033】

乾燥剤としては特に限定されず、例えば、シリカゲル、モレキュラーシーブ、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化ストロンチウム等の金属酸化物等が挙げられ、酸化マグネシウムまたは酸化カルシウムが好ましい。このような乾燥剤としては、平均粒径０．０１～１０μｍの範囲の粒子であることが好ましく、０．０１～５μｍであることがより好ましく、０．１～５μｍであることがさらに好ましい。平均粒径が０．０１μｍ以下だと、乾燥剤／樹脂界面の密着が弱い場合、接着剤層の硬化後の強度が低下し問題となる。また、１０μｍ以上になると、フィルム状にした際に平滑な面が得られない、乾燥剤の吸水能が得られない等の問題がある。

乾燥剤の含有量は、固形分（不揮発成分）で全樹脂組成物１００質量部に対し、乾燥剤は５～５０質量部が好ましく、１０～４０質量部がより好ましい。

【0034】

本発明は、せん断破壊面の表面粗さＲ_aが０．５μｍ以上になるように乾燥剤／樹脂界面の密着を弱めることで、乾燥剤の吸水能を十分発揮させ、ダークスポットの問題を克服するものである。

乾燥剤／樹脂界面の密着を弱め、せん断破壊面の表面粗さを $0.5\mu\text{m}$ 以上にするには、樹脂、乾燥剤の種類や、乾燥剤の添加方法等を適宜変更することで達成することができる。

【0035】

具体的には、バインダー樹脂（例えば、アクリル系ポリマーや分子量 $1\sim 10$ 万のフェノキシ樹脂やポリエステル樹脂）と乾燥剤（例えば、酸化マグネシウム、酸化カルシウムのような金属酸化物からなる乾燥剤）を使用し、ビーズミルを用いてバインダー樹脂と乾燥剤を溶剤希釈し混合した状態で乾燥剤の平均粒径が $5\mu\text{m}$ 以下（好ましくは $0.01\sim 5\mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.5\sim 5\mu\text{m}$ ）になるまで破碎したプレワニスを作製し、その後、硬化成分を混合して最終的な接着剤ワニスを作製すること、エポキシ当量の高いエポキシ樹脂（ $400\sim 800\text{g/eq}$ ）とエポキシ当量の低いエポキシ樹脂（ $150\sim 300\text{g/eq}$ ）を併用すること等で調整できる。バインダー樹脂と金属酸化物を先に混合して破碎することで金属酸化物表面に密着性の悪いバインダー樹脂が被覆された状態となり、乾燥剤／樹脂界面の密着が弱くなる。エポキシ樹脂に関してはエポキシ当量の高いエポキシ樹脂を併用することで硬化後のエポキシ樹脂と乾燥剤界面の密着性を弱くすることができ、乾燥剤／樹脂界面の密着が弱くなる。ここでエポキシ当量の低いエポキシ樹脂のみだと硬化後のエポキシ樹脂と乾燥剤界面の密着性が強くなり、適当ではない。また、エポキシ当量の高いエポキシ樹脂のみだと接着性で問題となることがある。

【0036】

（その他の添加剤）

接着剤層には、シランカップリング剤を含有してもよい。

シランカップリング剤としては、具体的には3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、2-（3，4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、N-フェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-（2-アミノエチル）3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-（2-アミノエチル）3-アミノプロピルメチルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、N-（2-（ビニルベンジルアミノ）エチル）3-アミノプロピルトリメトキシシラン塩酸塩、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤等が挙げられる。これらのシランカップリング剤は2種類以上を混合してもよい。これらの中でも、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（KBM-403：信越化学工業社製）は、エポキシ樹脂との相性がよく、安定性に優れているため好ましい。シランカップリング剤の含有量は、固形分（不揮発成分）で全樹脂組成物100質量部（乾燥剤除く）に対して $0.02\sim 5$ 質量部が好ましく、 $0.1\sim 2$ 質量部がより好ましい。

【0037】

本発明では、本発明の目的を達成可能な限り、さらにその他の成分、例えば保存安定剤、酸化防止剤、可塑剤、タック調整剤や樹脂安定剤等を添加することも可能であるが、それらの添加成分中の水分や不純物には注意が必要である。

【0038】

<剥離シート>

本発明においては、上記樹脂組成物を接着フィルム状にする際、樹脂組成物からなる接着剤層は片面または両面に剥離シートを仮着させた構成とすることが好ましい。

剥離シートは、接着フィルムの取り扱い性を良くする目的で、また接着剤層を保護する目的で用いられる。

剥離シートとしては、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリブテンフィルム、ポリブタジエンフィルム、ポリメチルペンテンフィルム、ポリ塩化ビニルフィルム、塩化ビニル共重合体フィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリブチレンテレフタレートフィルム、ポリウレタンフィルム、エチレン・酢酸ビニル共重合体フィルム、アイオノマー樹脂フィルム、エチレン

・（メタ）アクリル酸共重合体フィルム、エチレン・（メタ）アクリル酸エステル共重合体フィルム、ポリスチレンフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリイミドフィルム、フッ素樹脂フィルム等が挙げられる。またこれらの架橋フィルムも用いられる。さらにこれらの積層フィルムであってもよい。特にコスト、取り扱い性等の面からポリエチレンテレフタレートを使用することが好ましい。

【0039】

剥離シートの表面張力は、 40 mN/m 以下であることが好ましく、 35 mN/m 以下であることがより好ましい。このような表面張力の低い剥離シートは、材質を適宜に選択して得ることが可能であり、またシートの表面にシリコン樹脂等を塗布して離型処理を施すことで得ることもできる。

剥離シートから接着剤層を剥離する際の剥離力の例としては、 0.3 N/20 mm 以下であることが好ましく、より好ましくは 0.2 N/20 mm である。剥離力の下限に特に制限はないが、 0.005 N/20 mm 以上が实际的である。また、両面に剥離フィルムを仮着させる場合には、取り扱い性を良くするために、剥離力の異なるものを使用することが好ましい。

【0040】

剥離シートの膜厚は、通常は $5\sim300\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\sim200\text{ }\mu\text{m}$ 、特に好ましくは $20\sim100\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。

【0041】

<接着フィルム>

本発明における接着フィルムは、少なくとも1層の接着剤層からなるが、好ましくは、この接着剤層の両面または片面に、上記剥離シートを有する。

接着フィルムは、2層以上の接着剤層を有してもよく、接着剤層以外の層を有してもよい。

2層以上の層を有する場合、好ましくは、2層以上が接着剤層である。この場合、有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層の最外層と基板を接着する側の最外層が接着剤層であることが好ましい。

【0042】

また、前記接着フィルムが、2層以上の層を有する場合、このうち少なくとも1層は乾燥剤を有する本発明の接着剤層であって、かつ有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層が、乾燥剤を含有しないことが好ましい。ここで、2層以上が接着剤層である場合、有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層の最外層が乾燥剤を有さない接着剤層であり、基板を接着する側の最外層が乾燥剤を含有する本発明の接着剤層であることが特に好ましい。

ここで、接着剤層の厚さは、通常は $3\sim100\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $5\sim50\text{ }\mu\text{m}$ であるが、2層以上が接着剤層である場合、有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層の最外層の厚さは $1\sim15\text{ }\mu\text{m}$ が好ましく、 $2\sim10\text{ }\mu\text{m}$ がより好ましい。また、基板を接着する側の最外層が乾燥剤を含有する本発明の接着剤層の厚さは $5\sim50\text{ }\mu\text{m}$ がより好ましく、 $10\sim20\text{ }\mu\text{m}$ がさらに好ましい。また、基板を接着する側の最外層が乾燥剤を含有する本発明の接着剤層の厚さは、有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層の接着剤層より、厚いことが好ましい。

【0043】

ここで、有機エレクトロルミネッセンス素子を接着する側の層の最外層が乾燥剤を有さない接着剤層は、乾燥剤を含有しなければ、どのような接着剤層でも構わないが、乾燥剤を含まない以外は、前述の接着剤層が好ましい。

【0044】

なお、乾燥剤を含有する場合、硬度が高い無機物が接着剤層表面に微細突起となって出ることがあり、この突起が有機エレクトロルミネッセンス素子表面の伝電極層などを傷つけることとなり、リーク電流の原因などを引き起こして有機エレクトロルミネッセンス素子の発光機能を低下させる問題が生じる。これに対し、有機エレクトロルミネッセンス素子

10

20

30

40

50

を接着する側の層の最外層が乾燥剤を含有せず、基板を接着する側の最外層が乾燥剤を含有させることとすれば、有機エレクトロルミネッセンス素子へのダメージが軽減できる。

【0045】

本発明の樹脂組成物は、接着剤層の接着フィルムを得る際、溶剤を含有してもよい。

このような溶剤としては、メチルエチルケトン、トルエン、エタノール、イソプロパノールの有機溶剤や水が挙げられ、有機溶剤が好ましく、メチルエチルケトン、トルエンが特に好ましい。このような溶剤に樹脂組成物に含まれる個々の素材を加え、混合分散し、得られた接着剤ワニス（分散液）を、剥離シートの剥離面上にロールナイフコーター、グラビアコーター、ダイコーター、リバースコーターなど一般に公知の方法にしたがって直接または転写によって塗工し、乾燥させて接着剤層を得ることができる。

10

【0046】

本発明の接着フィルムは、上記のように水分だけでなく水蒸気ガス、炭酸ガス、酸素ガス等のガスバリア性が高く、ガスバリアフィルムの機能も果たし、ガスバリアフィルムとしても有用である。

【0047】

<有機エレクトロルミネッセンス素子、有機エレクトロルミネッセンスパネル>

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、本発明の樹脂組成物、接着フィルムで封止された構造を有する。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の好ましい態様を図4に示す。図4では、基板（31）上に、陽極（32）、正孔注入層（33）、正孔輸送層（34）、発光層（35）、電子注入層（36）、および陰極（37）がこの順に設けられた有機エレクトロルミネッセンス素子が示され、当該素子は本発明の封止材により封止されて気密性が高められている。また、図4に示される接着フィルム（接着剤層）は、2層構造の接着剤層を有し、乾燥剤含有接着剤層（11）を外側に、乾燥剤を含有しない接着剤層（12）を内側にして、陽極（32）、正孔注入層（33）、正孔輸送層（34）、発光層（35）、電子注入層（36）および陰極（37）を覆うように有機エレクトロルミネッセンス素子に密着して配設されている。なお、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の構成は上記態様に限定されるものではなく、有機エレクトロルミネッセンス素子として機能する素子の構成を有し、かつ本発明の封止材で封止されていれば、いずれも本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子に包含される。

20

30

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、気密性に優れ、性能の劣化がより抑えられた素子である。

【0048】

以下、実施例に基づき本発明の構成をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【実施例】

【0049】

実施例1～8、比較例1～3

（接着フィルムの作製）

下記の表1、2に示す配合の樹脂組成物にメチルエチルケトンを加えて攪拌混合して接着剤ワニスを作製した。乾燥剤によっては接着剤ワニス作製前にバインダー樹脂と混合し、ビーズミルにて粉碎したものを使用した。下記表1の樹脂組成物は乾燥剤入りであり封止基板側に貼り付ける接着剤層であり、下記表2に記載の樹脂組成物は乾燥剤なしで有機エレクトロルミネッセンス素子側に貼り付ける接着剤層である。

40

作製した下記表1に記載の樹脂組成物の接着剤ワニスを、剥離シート上に、乾燥後の厚さが15 μm になるように塗工し、110℃で3分間乾燥させ、接着剤層を作製した。次いで、下記表2に記載の樹脂組成物の接着剤ワニスを、別の剥離シート上に、乾燥後の厚さが5 μm になるように塗工し、110℃2分間乾燥させた後、下記表3、4の構成となるように下記表1に記載の接着剤層と貼り合わせ、剥離シート／下記表1に記載の樹脂組成物／下記表2に記載の樹脂組成物／剥離シートがこの順に積層された接着フィルムを作

50

製した。このようにして比較例 1～3、実施例 1～7 の接着フィルムを作製した。また、実施例 8 に関しては下記表 1 に記載の樹脂組成物を乾燥後の厚さ 20 μm となるように塗工し、そのまま剥離シートを貼り合わせ接着フィルムを作製した。

【0050】

ここで接着剤樹脂組成物の各組成は以下の通りである。

【0051】

バインダー樹脂

A1 アクリル系ポリマー：質量平均分子量 80 万 ガラス転移温度 (T_g) 5℃

A2 フェノキシ樹脂：ビスフェノール A 型樹脂 質量平均分子量 5 万

A3 ポリエステル樹脂：質量平均分子量 3 万、ガラス転移温度 (T_g) 5℃

10

【0052】

硬化性成分

B1 エポキシ樹脂：液状ビスフェノール F 型樹脂 エポキシ当量 160～190 g/e q

B2 エポキシ樹脂：ビスフェノール A 型樹脂 エポキシ当量 450～500 g/e q

【0053】

硬化剤

C1 硬化剤：フェノールアラルキル型フェノール樹脂 水酸基当量 172 g/e q

【0054】

硬化促進剤

D1 硬化促進剤：2-フェニルイミダゾール

20

【0055】

乾燥剤

E1 乾燥剤：酸化カルシウム 平均粒径 2 μm

E2 乾燥剤：酸化カルシウム 平均粒径 1 μm (バインダー樹脂混合、粉碎)

E3 乾燥剤：酸化マグネシウム 平均粒径 0.5 μm (バインダー樹脂混合、粉碎)

E4 乾燥剤：酸化マグネシウム 平均粒径 2 μm (バインダー樹脂混合、粉碎)

【0056】

なお、上記 E2、3、4 は先にバインダー樹脂と混合し、ビーズミルで上記の平均粒径に粉碎した。

30

【0057】

【表 1】

接着剤樹脂組成物	1A	1B	1C	1D	1E	1F	1G	1H	1I
A1 アクリルポリマー	100			100	100				
A2 フェノキシ樹脂		100				100	100		
A3 ポリエステル樹脂			100					100	100
B1 エポキシ樹脂	60	60	30	60	30	30	30	15	15
B2 エポキシ樹脂					30	30	30	15	15
C1 硬化剤	60	60	30	60	40	40	40	20	20
D1 硬化促進剤	1	1	0.5	1	1	1	1	0.5	0.5
E1 酸化カルシウム	80	80	60						
E2 酸化カルシウム				80	80	80			
E3 酸化マグネシウム							80	60	
E4 酸化マグネシウム									60

40

【0058】

【表 2】

接着剤樹脂組成物	2A	2B	2C
A1 アクリルポリマー	100		
A2 フェノキシ樹脂		100	
A3 ポリエステル樹脂			100
B1 エポキシ樹脂	60	60	30
C1 硬化剤	60	60	30
D1 硬化促進剤	1	1	0.5

【0059】

(せん断破壊面の表面粗さRaの測定方法)

10

上記のようにして、各実施例、比較例の接着フィルムの有機エレクトロルミネッセンス素子側に貼合する側の剥離フィルムを剥がし、5mm角のガラスに60℃で加熱しながら貼り合わせた。その後、封止基板を接着させる側の接着剤層の剥離シートを剥離し、12mm角のガラスに60℃/500gf/3sで圧着させた。このようにして作製したサンプルを加熱炉中100℃、3時間で加熱硬化させた。ボンドテスター〔(デイズ・ジャパン(株)製、ボンドテスター4000およびプローブ: DAGE DS100)〕を用いて、ガラス/接着フィルム/ガラスと積層されたサンプルの5mm角の接着フィルム部分に水平にヘッドを当て、ステージからのヘッド先端高さ10μm、テストスピード50μm/secで破壊するまでせん断力をかけ、図5のようにして接着フィルムを破壊した。

破壊した接着フィルムの表面を表面形状測定レーザー顕微鏡(KEYENCE社製VF-7500: 試料表面にHe-Neレーザーを照射し、反射光を読み取る方式の表面形状測定顕微鏡)により、表面粗さRaを測定した。なお、測定は倍率: 2500倍、Pitch: 0.1μm、Z-dist: 50μmの条件で行い、6箇所の部分の算術平均を求めた。

20

なお、接着剤層を2層以上有した場合も、この2層以上積層された状態でせん断破壊面の表面粗さRaを求めるものとする。

【0060】

(ダークスポット評価)

接着フィルムの封止基板側の剥離シートを剥離し、封止基板にロールラミネータを用いて60℃で加熱しながら貼り合わせた。貼合後、接着フィルムの有機エレクトロルミネッセンス素子側の剥離シートを剥離し、有機エレクトロルミネッセンス素子が形成されている発光基板に真空ラミネータ〔ニチゴーモートン(株)製 小型加圧式真空ラミネーターモデルV130〕を用いて80℃/0.1MPa/30秒の条件で接着剤層を加熱圧着させた。その後、加熱炉中で接着剤層を100℃、3時間で加熱硬化させた。このようにして有機エレクトロルミネッセンスパネルを作製し、連続点灯で85℃、相対湿度85%の環境でダークスポットの成長を観察した。1000時間経過後の100μm以上のダークスポットがない場合は「無」、ある場合は「有」とした。

30

得られた結果をまとめて下記表3、4に示す。

【0061】

【表 3】

40

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
封止基板側 接着剤樹脂組成物 乾燥後の厚さ	1D 15um	1E 15um	1F 15um	1G 15um	1H 15um	1I 15um	1I 15um	1H 20um
有機EL素子側 接着剤樹脂組成物 乾燥後の厚さ	2A 5um	2B 5um	2B 5um	2B 5um	2C 5um	2C 5um	2A 5um	
表面粗さRa (μm)	0.50	0.53	0.58	0.70	0.68	0.70	0.77	0.95
ダークスポット	無	無	無	無	無	無	無	無

【0062】

【表 4】

	比較例 1	比較例 2	比較例 3
封止基板側 接着剤樹脂組成物 乾燥後の厚さ	1A 15um	1B 15um	1C 15um
有機EL素子側 接着剤樹脂組成物 乾燥後の厚さ	2A 5um	2A 5um	2A 5um
表面粗さRa (μ /m)	0.32	0.36	0.40
ダークスポット	有	有	有

【0063】

10

上記表 3、4 から明らかなように、比較例 1～3 では表面粗さ R a が小さく、乾燥剤の吸水能が十分ではなく、ダークスポットが発生した。これに対して、実施例 1～8 では表面粗さ R a が 0.5 μ m 以上であるため、乾燥剤の吸水能が十分であり、ダークスポット発生なく良好な結果が得られた。

【0064】

本発明をその実施態様とともに説明したが、我々は特に指定しない限り我々の発明を説明のどの細部においても限定しようとするものではなく、添付の請求の範囲に示した発明の精神と範囲に反することなく幅広く解釈されるべきであると考える。

【0065】

本願は、2012 年 3 月 30 日に日本国で特許出願された特願 2012-083117 に基づく優先権を主張するものであり、これらはここに参照してその内容を本明細書の記載の一部として取り込む。

20

【符号の説明】

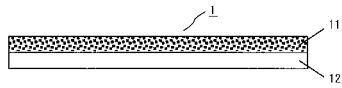
【0066】

- 1 接着フィルム（接着剤層）
- 10 有機薄膜（接着剤層）
- 11 乾燥剤含有接着剤層
- 12 乾燥剤を含有しない接着剤層
- 20 封止基板
- 21 発光側基板
- 22 接着フィルム
- 23 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 30 封止された有機エレクトロルミネッセンス素子
- 31 基板
- 32 陽極
- 33 正孔注入層
- 34 正孔輸送層
- 35 発光層
- 36 電子注入層
- 37 陰極
- 41 ガラス
- 42 ヘッド

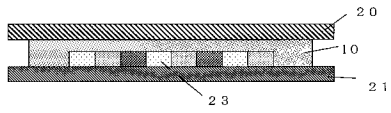
30

40

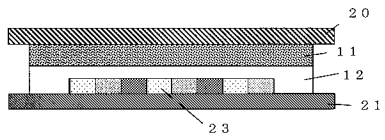
【図 1】



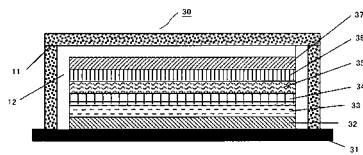
【図 2】



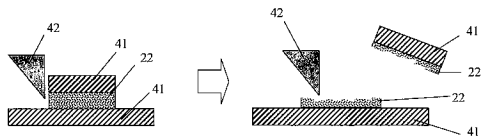
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/059520

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/04(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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)

H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2005-243556 A (Shin-Etsu Polymer Co., Ltd.), 08 September 2005 (08.09.2005), claims 1, 4; paragraphs [0017] to [0028] (Family: none)	1, 3, 10-11 2, 4-5, 7-9 6, 12
Y A	JP 2009-259656 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 05 November 2009 (05.11.2009), claim 1; paragraphs [0128] to [0130] (Family: none)	1-5, 7-11 6, 12
Y A	JP 2004-143310 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 20 May 2004 (20.05.2004), claim 1; paragraphs [0083] to [0093] (Family: none)	1-5, 7-11 6, 12

☒ 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
18 June, 2013 (18.06.13)Date of mailing of the international search report
02 July, 2013 (02.07.13)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/059520

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2003-297559 A (Eastman Kodak Co.), 17 October 2003 (17.10.2003), paragraph [0017] & US 2003/0190763 A1 & US 2003/0203551 A1 & EP 1351323 A2	2, 4-5 1, 3, 6-12
Y A	JP 2010-80293 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 08 April 2010 (08.04.2010), paragraphs [0024] to [0026]; fig. 1 to 3, 7 (Family: none)	7-9 1-6, 10-12
A	JP 2006-134888 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 25 May 2006 (25.05.2006), paragraphs [0016] to [0032], [0124], [0142] to [0143] & US 2006/0097633 A1 & EP 1655792 A1 & KR 10-2006-0041410 A & KR 10-2006-0041411 A & CN 1832222 A	1-12

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 5 9 5 2 0									
A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. H05B33/04(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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. H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10											
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2013年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2013年	日本国実用新案登録公報	1996-2013年	日本国登録実用新案公報	1994-2013年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2013年										
日本国実用新案登録公報	1996-2013年										
日本国登録実用新案公報	1994-2013年										
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
X Y A	JP 2005-243556 A（信越ポリマー株式会社）2005.09.08, 【請求項1】，【請求項4】，段落【0017】-【0028】 （ファミリーなし）	1, 3, 10-11 2, 4-5, 7-9 6, 12									
Y A	JP 2009-259656 A（東洋インキ製造株式会社）2009.11.05, 【請求項1】，段落【0128】-【0130】 （ファミリーなし）	1-5, 7-11 6, 12									
☒ 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。											
<table border="0"> <tr> <td> * 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 </td> <td> 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 </td> </tr> </table>				* 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						
* 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 18.06.2013		国際調査報告の発送日 02.07.2013									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/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） 素川 慎司 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 4844								

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 5 9 5 2 0
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y A	JP 2004-143310 A (凸版印刷株式会社) 2004. 05. 20, 【請求項 1】 , 段落【0083】 - 【0093】 (ファミリーなし)	1-5, 7-11 6, 12
Y A	JP 2003-297559 A (イーストマン コダック カンパニー) 2003. 10. 17, 段落【0017】 & US 2003/0190763 A1 & US 2003/0203551 A1 & EP 1351323 A2	2, 4-5 1, 3, 6-12
Y A	JP 2010-80293 A (大日本印刷株式会社) 2010. 04. 08, 段落【0024】 - 【0026】 , 【図 1】 - 【図 3】 , 【図 7】 (ファミリーなし)	7-9 1-6, 10-12
A	JP 2006-134888 A (三星エスディアイ株式会社) 2006. 05. 25, 段落【0016】 - 【0032】 , 【0124】 , 【0142】 - 【0143】 & US 2006/0097633 A1 & EP 1655792 A1 & KR 10-2006-0041410 A & KR 10-2006-0041411 A & CN 1832222 A	1-12

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	テーマコード (参考)
C 0 9 J 167/00	(2006.01)	C 0 9 J 167/00	
C 0 9 J 133/00	(2006.01)	C 0 9 J 133/00	
C 0 9 J 11/00	(2006.01)	C 0 9 J 11/00	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,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,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC

(72)発明者 三枝 哲也
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 福田 秀人
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 山川 貴紀
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 中村 俊光
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB03 CC23 CC27 EE45 EE49 EE50 EE53 FF08
FF15
4J004 AA10 AA11 AA15 DB02 FA01
4J040 DA021 DF001 EC001 EF001 EF061 JA09 JB09 PA23

(54)【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂組成物、その製造方法、該樹脂組成物を用いた接着フィルム、ガスバリアフィルム、有機エレクトロルミネッセンス素子および有機エレクトロルミネッセンスパネル

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

专利名称(译)	用于包封有机电致发光元件的树脂组合物，其制备方法，使用该树脂组合物的粘合膜，阻气膜，有机电致发光元件和有机电致发光板		
公开(公告)号	JPWO2013147156A1	公开(公告)日	2015-12-14
申请号	JP2013543432	申请日	2013-03-29
申请(专利权)人(译)	古河电气有限公司		
[标]发明人	鈴木俊宏 服部聡 三枝哲也 福田秀人 山川貴紀 中村俊光		
发明人	鈴木 俊宏 服部 聡 三枝 哲也 福田 秀人 山川 貴紀 中村 俊光		
IPC分类号	H05B33/04 H01L51/50 C09J7/00 C09J201/00 C09J163/00 C09J167/00 C09J133/00 C09J11/00		
CPC分类号	H01L51/5246 H01L51/5253 H01L51/5259 H05B33/04 H05B33/10 Y10T428/1476		
FI分类号	H05B33/04 H05B33/14.A C09J7/00 C09J201/00 C09J163/00 C09J167/00 C09J133/00 C09J11/00		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB03 3K107/CC23 3K107/CC27 3K107/EE45 3K107/EE49 3K107/EE50 3K107/EE53 3K107/FF08 3K107/FF15 4J004/AA10 4J004/AA11 4J004/AA15 4J004/DB02 4J004/FA01 4J040/DA021 4J040/DF001 4J040/EC001 4J040/EF001 4J040/EF061 4J040/JA09 4J040/JB09 4J040/PA23		
代理人(译)	Toshizo饭 宫前NaoYu		
优先权	2012083117 2012-03-30 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

包含干燥剂和固化性成分，固化后的剪切断裂面的表面粗糙度Ra为0.5 μm以上的有机电致发光元件密封用树脂组合物，其制造方法，包括该树脂组合物的粘合膜，阻气膜，有机电致发光装置以及使用该阻气膜的有机电致发光面板。

