

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02015/087807

発行日 平成29年3月16日(2017.3.16)

(43) 国際公開日 平成27年6月18日(2015.6.18)

(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			A 4J002		
C08L 63/00 (2006.01)			C08L 63/00			A 4M109		
H01L 23/29 (2006.01)			H01L 23/30			R		
H01L 23/31 (2006.01)								
			審査請求 未請求 予備審査請求 未請求			(全 29 頁)		
出願番号 特願2015-501599 (P2015-501599)			(71) 出願人 000002174					
(21) 国際出願番号 PCT/JP2014/082280			積水化学工業株式会社					
(22) 国際出願日 平成26年12月5日 (2014.12.5)			大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号					
(31) 優先権主張番号 特願2013-256377 (P2013-256377)			(74) 代理人 110000914					
(32) 優先日 平成25年12月11日 (2013.12.11)			特許業務法人 安富国際特許事務所					
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)			(72) 発明者 末▲崎▼ 穰					
(31) 優先権主張番号 特願2014-28593 (P2014-28593)			日本国大阪府三島郡島本町百山2-1 積					
(32) 優先日 平成26年2月18日 (2014.2.18)			水化学工業株式会社内					
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)			(72) 発明者 新城 隆					
			日本国大阪府三島郡島本町百山2-1 積					
			水化学工業株式会社内					
			Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC23 CC25 CC45					
			EE55 FF00 FF03 FF18					
			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表示素子封止用硬化性樹脂組成物、有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート、及び、有機エレクトロルミネッセンス表示素子

(57) 【要約】

本発明は、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れる樹脂シートを得ることができる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート及び有機エレクトロルミネッセンス表示素子を提供することを目的とする。

本発明は、多官能カチオン重合性オリゴマーと、分子量が10万を超えるカチオン重合性ポリマーと、硬化剤とを含有する有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物である。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

多官能カチオン重合性オリゴマーと、分子量が 10 万を超えるカチオン重合性ポリマーと、硬化剤とを含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表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

【請求項 2】

硬化剤は熱カチオン重合開始剤であることを特徴とする請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

【請求項 3】

カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量が 3000 g/mol 以下であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

10

【請求項 4】

カチオン重合性基を有するシランカップリング剤を含有することを特徴とする請求項 1、2 又は 3 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

【請求項 5】

100 における溶融粘度が 1000 ~ 5 万 Pa・s であることを特徴とする請求項 1、2、3 又は 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

【請求項 6】

多官能カチオン重合性オリゴマーは、脂環骨格を有するオリゴマーであることを特徴とする請求項 1、2、3、4 又は 5 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

20

【請求項 7】

多官能カチオン重合性オリゴマーは、エポキシ基又はオキセタニル基を有し、かつ、エポキシ基又はオキセタニル基に含まれる以外のエーテル結合、及び、エステル結合を有さない化合物であることを特徴とする請求項 1、2、3、4、5 又は 6 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物。

【請求項 8】

請求項 1、2、3、4、5、6 又は 7 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物をシート状に成形してなることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート。

30

【請求項 9】

請求項 1、2、3、4、5、6 若しくは 7 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物及び / 又は請求項 8 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シートを用いて製造されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示素子。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れる樹脂シートを得ることができる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物に関する。また、本発明は、該有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート及び有機エレクトロルミネッセンス表示素子に関する。

40

【背景技術】**【0002】**

有機エレクトロルミネッセンス（以下、「有機 EL」ともいう）表示素子は、互いに対向する一対の電極間に有機発光材料層が挟持された積層体構造を有し、この有機発光材料層に一方の電極から電子が注入されるとともに他方の電極から正孔が注入されることにより有機発光材料層内で電子と正孔とが結合して発光する。このように有機 EL 表示素子は自

50

己発光を行うことから、バックライトを必要とする液晶表示素子等と比較して視認性がよく、薄型化が可能であり、しかも直流低電圧駆動が可能であるという利点を有している。

【 0 0 0 3 】

有機ＥＬ表示素子を構成する有機発光材料層や電極は、水分や酸素等により特性が劣化しやすいという問題がある。従って、実用的な有機ＥＬ表示素子を得るためには、有機発光材料層や電極を大気と遮断して長寿命化を図る必要がある。有機発光材料層や電極を大気と遮断する方法としては、封止剤を用いて有機ＥＬ表示素子を封止することが行われている（例えば、特許文献１）。有機ＥＬ表示素子を封止剤で封止する場合、通常、水分や酸素等の透過を十分に抑えるため、有機発光材料層を有する積層体上にパッシベーション膜と呼ばれる無機膜を設け、該無機膜上を封止剤で封止する方法が用いられている。

10

【 0 0 0 4 】

一方、近年、新しいディスプレイの形態として曲面状に変形することができるフレキシブルディスプレイが開発されている。このようなフレキシブルディスプレイは、従来のガラス基板に代わり、耐熱プラスチック製の透明基板や、極薄のガラス基板を用いて有機ＥＬ表示素子を作製することにより得られる。このようなフレキシブルな基板を用いることは製造プロセスにおいても革新をもたらすことが考えられる。即ち、従来の剛直な基板の貼り合わせで多用された真空貼り合せ技術に代わり、より簡便なロール貼り合せをプロセスとして用いることができるため、製造工程の簡略化や、タクト時間の短縮が期待されている。

一方、従来用いられてきた材料にも革新が求められ、封止剤においても、従来の液状封止剤では、ロール貼り合わせの際に余剰の封止剤が周辺にはみ出して設備を汚損したり、気泡の噛みこみや封止剤層の厚みの均一性が取りにくかったりする等の問題が生じることから、シート状の封止材料が求められている。しかしながら、従来の封止剤をシート状にして用いた場合、製造工程で加熱した際や、ロール貼り合わせや使用時の屈曲によりクラックが発生することがあるという問題があった。

20

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 0 5 】

【 特許文献 1 】 特開 2 0 0 7 - 1 1 5 6 9 2 号 公 報

【 発明の概要 】

30

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 6 】

本発明は、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れる樹脂シートを得ることができる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、該有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート及び有機エレクトロルミネッセンス表示素子を提供することを目的とする。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 0 7 】

40

本発明は、多官能カチオン重合性オリゴマーと、分子量が 1 0 万を超えるカチオン重合性ポリマーと、硬化剤とを含有する有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物である。

以下に本発明を詳述する。

【 0 0 0 8 】

本発明者らは、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止するため、封止材料に熱可塑性樹脂等の比較的柔軟性に優れる樹脂を用いることを検討した。しかしながら、このような樹脂を用いた場合、得られる硬化物がバリア性（透湿防止性）に劣るものとなるという問題があった。

そこで本発明者らは、鋭意検討した結果、多官能カチオン重合性オリゴマーと特定のカチ

50

オン重合性ポリマーとを組み合わせるにより、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れた樹脂シートを得ることができる有機EL表示素子用硬化性樹脂組成物を得ることができることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0009】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、多官能カチオン重合性オリゴマーを含有する。

上記多官能カチオン重合性オリゴマーは、1分子中に2個以上のカチオン重合性基を有するオリゴマーであり、カチオン重合性ポリマーに対して可塑剤的に作用し、加熱による流動接着性を発現するとともに、カチオン重合により架橋硬化して強固な接着力とバリア性を与える役割を有する。上記「オリゴマー」とは、重合性単量体であるモノマー、及び、そのモノマーが低重合度で重合した化合物を意味する。

10

【0010】

上記多官能カチオン重合性オリゴマーの有するカチオン重合性基としては、例えば、エポキシ基、オキセタニル基等が挙げられる。なかでも、エポキシ基が好ましい。

また、上記多官能カチオン重合性オリゴマーは、分子内に1つ以上の環状構造を有することが好ましく、環状構造としては、芳香族化合物、脂環式化合物が挙げられる。

【0011】

上記多官能カチオン重合性オリゴマーのカチオン重合性基当量の好ましい下限は50 g/mol、好ましい上限は400 g/molである。上記多官能カチオン重合性オリゴマーのカチオン重合性基当量が50 g/mol未満であると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化物が、加熱や変形によってクラックを発生させることがある。上記多官能カチオン重合性オリゴマーのカチオン重合性基当量が400 g/molを超えると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化物がバリア性に劣るものとなることがある。上記多官能カチオン重合性オリゴマーのカチオン重合性基当量のより好ましい下限は70 g/mol、より好ましい上限は300 g/molである。

20

なお、上記多官能カチオン重合性オリゴマーのカチオン重合性基当量は、多官能カチオン重合性オリゴマーの重量(g)を多官能カチオン重合性オリゴマー中に含まれるカチオン重合性基のモル数(mol)で除して求められる値である。

【0012】

上記多官能カチオン重合性オリゴマーの分子量の好ましい下限は150、好ましい上限は7000である。上記多官能カチオン重合性オリゴマーの分子量が150未満であると、アウトガス発生の原因となることがある。上記多官能カチオン重合性オリゴマーの分子量が7000を超えると、カチオン重合性ポリマーに対する可塑剤的な作用が不十分となり、加熱による流動接着性が低下することがある。上記多官能カチオン重合性オリゴマーの分子量のより好ましい下限は200、より好ましい上限は5000、更に好ましい下限は250、更に好ましい上限は1000、特に好ましい上限は600である。

30

なお、上記多官能カチオン重合性オリゴマーの分子量は、分子構造が特定される化合物については、構造式から求められる分子量であるが、重合度の分布が広い化合物及び変性部位が不特定の化合物については、重量平均分子量を用いて表す場合がある。本明細書において、上記「重量平均分子量」は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)で測定を行い、ポリスチレン換算により求められる値である。GPCによってポリスチレン換算による重量平均分子量を測定する際に用いるカラムとしては、例えば、Shodex LF-804(昭和電工社製)等が挙げられる。

40

【0013】

上記多官能カチオン重合性オリゴマーとしては、例えば、ビスフェノールA骨格、ビスフェノールF骨格、水添ビスフェノールA骨格、水添ビスフェノールF骨格、フェノールノボラック骨格、ピフェニル骨格、水添ピフェニル骨格、ジシクロペンタジエン骨格、ナフタレン骨格、トリアジン骨格等を有するオリゴマーが挙げられる。なかでも、吸湿や水蒸気の透過率が低減し、得られる有機EL表示素子の発光の劣化をより抑制することができ

50

ることから、水添ビスフェノール A 骨格、水添ビスフェノール F 骨格、ジシクロペンタジエン骨格等の脂環骨格を有するオリゴマーが好ましい。また、上記多官能カチオン重合性オリゴマーとして脂環骨格を有するオリゴマーを用いることにより、熱や光による硬化性樹脂組成物の着色が起こりにくく、硬化性樹脂組成物の吸光による E L 発光の損失や色調の変化を小さくすることができる。これらの多官能カチオン重合性オリゴマーは、単独で用いられてもよいし、2 種以上が併用されてもよい。

【0014】

上記脂環骨格を有するオリゴマーとしては、その構造中に脂環骨格と、2 個以上のカチオン重合性基とを有するものであれば特に限定されず、構造中、又は、繰り返し単位内に上記脂環骨格を 1 個だけ有する化合物であってもよく、繰り返し単位内に 2 個以上の脂環骨格を有する化合物であってもよいが、繰り返し単位内に 2 個以上の脂環骨格を有する化合物がより好適に用いられる。上記脂環骨格を有するエポキシ化合物が繰り返し単位内に 2 個以上の脂環骨格を有する化合物である場合、本発明の有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、より耐光性、耐湿性等に優れたものとなる。

10

【0015】

上記脂環骨格を有するオリゴマーのうち市販されているものとしては、例えば、j E R Y X 8 0 3 4、j E R Y L 6 7 5 3（いずれも三菱化学社製）、E P I C L O N H P 7 2 0 0 L（D I C 社製）、D M E - 1 0 0（新日本理化学工業社製）、E P - 4 0 8 5（A D E K A 社製）、セロキサイド 3 0 0 0、E H P E 3 1 5 0（いずれもダイセル社製）等が挙げられる。

20

【0016】

また、上記多官能カチオン重合性オリゴマーは、エポキシ基又はオキセタニル基を有し、かつ、エポキシ基又はオキセタニル基に含まれる以外のエーテル結合、及び、エステル結合を有さない化合物であることが好ましい。このような化合物を用いることにより、アウトガスの発生を抑制することができる。

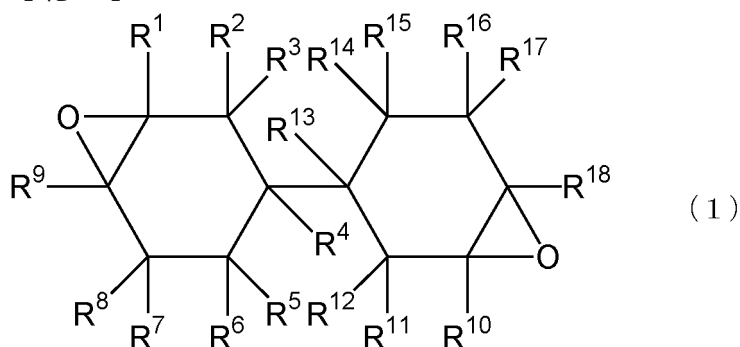
【0017】

上記エポキシ基又はオキセタニル基を有し、かつ、エポキシ基又はオキセタニル基に含まれる以外のエーテル結合、及び、エステル結合を有さない化合物としては、下記式（1）で表される化合物、下記式（2）で表される化合物等が挙げられ、得られる有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化遅延性や粘度を容易に調整できることから、式（1）で表される化合物及び式（2）で表される化合物を含有することが好ましい。

30

【0018】

【化 1】



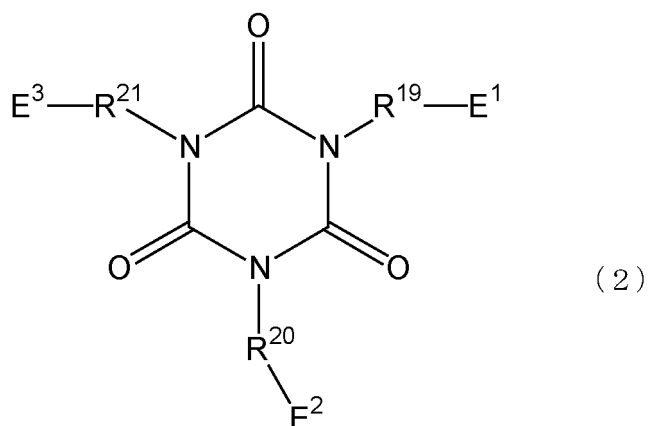
40

【0019】

式（1）中、 $R^1 \sim R^{18}$ は、水素原子、ハロゲン原子、又は、酸素原子若しくはハロゲン原子を含んでもよい炭化水素基であり、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

【0020】

【化 2】



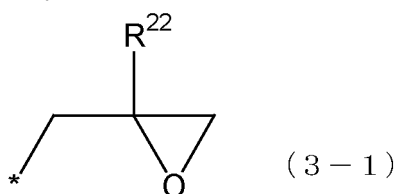
10

【0021】

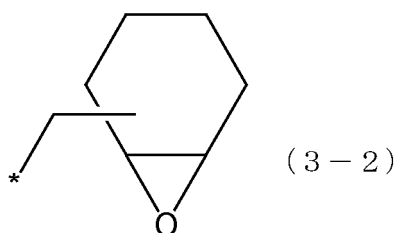
式(2)中、 $R^{19} \sim R^{21}$ は、直鎖状又は分岐鎖状の炭素数2～10のアルキレン基であり、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。E¹～E³は、それぞれ独立して下記式(3-1)又は下記式(3-2)で表される有機基を表す。

【0022】

【化 3】



20



30

【0023】

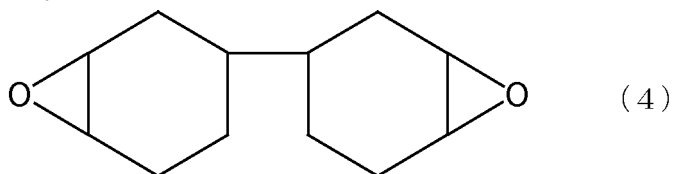
式(3-1)中、 R^{22} は、水素原子又はメチル基である。式(3-1)、(3-2)中、*は結合手を表す。

【0024】

上記式(1)で表される化合物は、良好なカチオン硬化性を示すことから、下記式(4)で表される化合物であることが好ましい。

【0025】

【化 4】



40

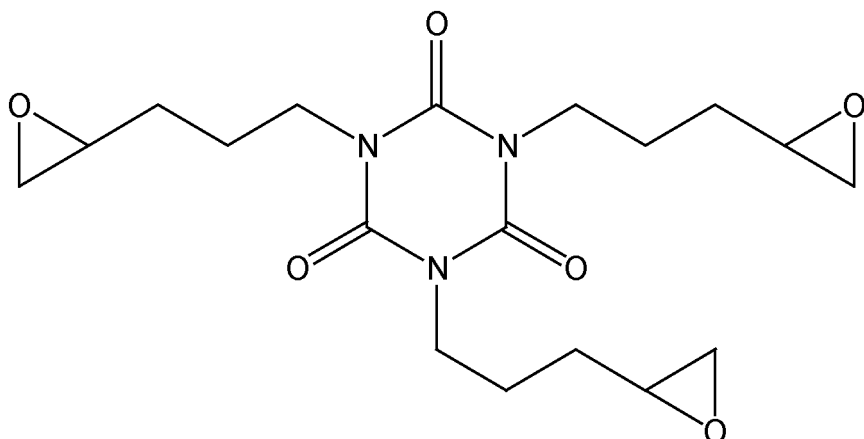
【0026】

上記式(2)で表される化合物は、良好なカチオン硬化性を示し、硬化物が高いガラス転移温度を示すことから、下記式(5)で表される化合物であることが好ましい。

【0027】

50

【化 5】



(5)

10

【0028】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、カチオン重合性ポリマーを含有する。

上記カチオン重合性ポリマーを含有することにより、本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物が特に耐屈曲性やバリア性に優れるものとなる。

【0029】

上記カチオン重合性ポリマーの有するカチオン重合性基としては、例えば、エポキシ基、オキセタニル基等が挙げられる。なかでも、エポキシ基が好ましい。

20

【0030】

上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量の好ましい上限は3000 g/molである。上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量が3000 g/molを超えると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物が接着性や硬化物のバリア性に劣るものとなることがある。上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量のより好ましい上限は2000 g/molである。

また、上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量の好ましい下限は200 g/molである。上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量が200 g/mol未満であると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化物が、加熱や変形によってクラックを発生させることがある。上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量のより好ましい下限は300 g/molである。

30

なお、上記カチオン重合性ポリマーのカチオン重合性基当量は、カチオン重合性ポリマーの重量(g)をカチオン重合性ポリマー中に含まれるカチオン重合性基のモル数(mol)で除して求められる値である。

【0031】

上記カチオン重合性ポリマーの分子量は10万を超える。上記カチオン重合性ポリマーの分子量が10万以下であると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化物が、加熱や変形によってクラックを発生させる。

また、上記カチオン重合性ポリマーの分子量の好ましい上限は50万である。上記カチオン重合性ポリマーの分子量が50万を超えると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物が塗布性に劣るものとなることがある。上記カチオン重合性ポリマーの分子量のより好ましい上限は30万である。

40

なお、上記カチオン重合性ポリマーの分子量は、重量平均分子量を用いて表される。

【0032】

上記カチオン重合性ポリマーとしては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、その他のフェノキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂や、アルキル(メタ)アクリレート-グリシジル(メタ)アクリレート共重合体、スチレン-グリシジル(メタ)アクリレート共重合体等が挙げられる。なかでも、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる樹脂シートが膜強度に優

50

れるものとなることから、側鎖にエポキシ基を有するものが好ましく、アルキル（メタ）アクリレート - グリシジル（メタ）アクリレート共重合体、スチレン - グリシジル（メタ）アクリレート共重合体がより好ましい。

上記カチオン重合性ポリマーのうち市販されているものとしては、例えば、マーブルーフ G - 1010S、マーブルーフ G - 2050M（いずれも日油社製）等が挙げられる。

【0033】

上記カチオン重合性ポリマーの含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマー 100 重量部に対して、好ましい下限が 20 重量部、好ましい上限が 200 重量部である。上記カチオン重合性ポリマーの含有量が 20 重量部未満であると、得られる有機 EL 表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いて樹脂シートを形成する際、硬化前の表面タックが大きく、作業性が低下することがある。上記カチオン重合性ポリマーの含有量が 200 重量部を超えると、十分な接着性を得るため、有機 EL 表示素子を作製する際に高温での加熱が必要となり、有機発光材料層等を劣化させることがある。上記カチオン重合性ポリマーの含有量のより好ましい下限は 50 重量部、より好ましい上限は 150 重量部、更に好ましい下限は 70 重量部、更に好ましい上限は 120 重量部である。

10

【0034】

本発明の有機 EL 表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、硬化剤を含有する。

上記硬化剤としては、カチオン重合開始剤及び / 又は熱硬化剤を用いることができる。

【0035】

上記カチオン重合開始剤としては、熱によって硬化反応を開始する熱カチオン重合開始剤や光によって硬化反応を開始する光カチオン重合開始剤を用いることができる。なかでも、上記硬化剤として熱カチオン重合開始剤を含有することが好ましい。

20

【0036】

上記熱カチオン重合開始剤としては、例えば、スルホニウム塩、ホスホニウム塩、第四級アンモニウム塩、ジアゾニウム塩、ヨードニウム塩等が挙げられる。なかでも、スルホニウム塩が好ましい。

上記熱カチオン重合開始剤における対アニオンとしては、例えば、 AsF_6^- 、 SbF_6^- 、 PF_6^- 、 $(BX_4)^-$ （ただし、X は、少なくとも 2 つ以上のフッ素又はトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基を表す）等が挙げられる。

上記スルホニウム塩としては、例えば、トリフェニルスルホニウム六フッ化ホウ素、トリフェニルスルホニウム六フッ化アンチモン、トリフェニルスルホニウム六フッ化ヒ素、トリ（4 - メトキシフェニル）スルホニウム六フッ化ヒ素、ジフェニル（4 - フェニルチオフェニル）スルホニウム六フッ化ヒ素等が挙げられる。

30

上記ホスホニウム塩としては、エチルトリフェニルホスホニウム六フッ化アンチモン、テトラブチルホスホニウム六フッ化アンチモン等が挙げられる。

上記第四級アンモニウム塩としては、例えば、ジメチルフェニル（4 - メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロホスフェート、ジメチルフェニル（4 - メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジメチルフェニル（4 - メトキシベンジル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジメチルフェニル（4 - メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロヘキサフルオロホスフェート、ジメチルフェニル（4 - メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジメチルフェニル（4 - メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、メチルフェニルジベンジルアンモニウム、メチルフェニルジベンジルアンモニウムヘキサフルオロアンチモネートヘキサフルオロホスフェート、メチルフェニルジベンジルアンモニウムトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、フェニルトリベンジルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジメチルフェニル（3, 4 - ジメチルベンジル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N, N - ジメチル - N - ベンジルアニリニウム六フッ化アンチモン、N, N - ジエチル - N - ベンジルアニリニウム四フッ化ホウ素、N, N - ジメチル - N - ベンジルピリジニウム六フッ化アンチモン、N, N - ジエチル - N - ベンジルピリジニウムト

40

50

リフルオロメタンスルホン酸、N, N - ジメチル - N - (4 - メトキシベンジル) ピリジニウム六フッ化アンチモン、N, N - ジエチル - N - (4 - メトキシベンジル) ピリジニウム六フッ化アンチモン、N, N - ジエチル - N - (4 - メトキシベンジル) トルイジニウム六フッ化アンチモン、N, N - ジメチル - N - (4 - メトキシベンジル) トルイジニウム六フッ化アンチモン等が挙げられる。

【 0 0 3 7 】

上記熱カチオン重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、アデカオプトン CP - 6 6、アデカオプトン CP - 7 7 (いずれも A D E K A 社製) や、熱活性だけでなく光活性も有している熱カチオン重合開始剤である、サンエイド SI - 6 0、サンエイド SI - 8 0、サンエイド SI - 1 0 0、サンエイド SI - 1 1 0、サンエイド SI - 1 8 0、サンエイド SI - B 3 A、サンエイド SI - B 4 (いずれも三新化学工業社製)、K - P U R E C X C - 1 6 1 2、K - P U R E C X C - 1 7 3 8、K - P U R E C X C - 1 8 2 1 (いずれも King I n d u s t r i e s 社製) 等が挙げられる。

10

【 0 0 3 8 】

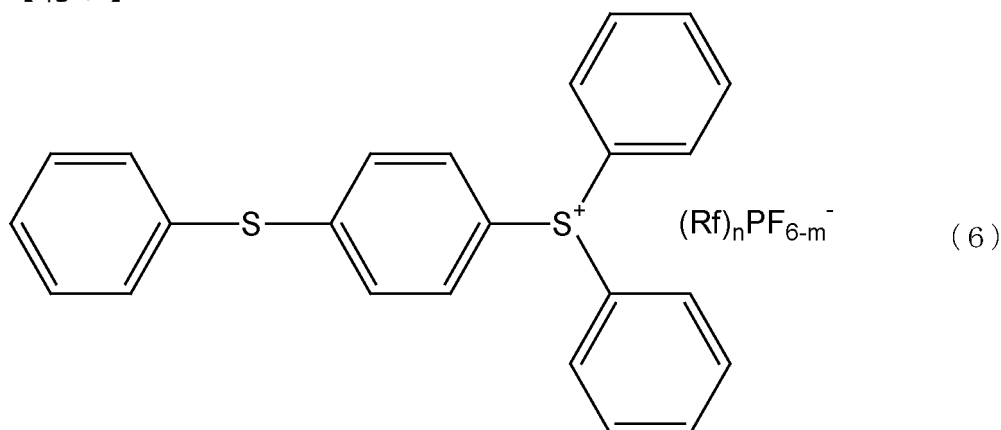
上記光カチオン重合開始剤としては、光照射によりプロトン酸又はルイス酸を発生するのであれば特に限定されず、イオン性光酸発生型であってもよいし、非イオン性光酸発生型であってもよい。

なかでも、得られる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤が、NiメッキCuガラスや無アルカリガラスに対する接着性に特に優れたものとなることから、アンチモン錯体、6フッ化リンイオンを有する塩、又は、下記式(6)で表される塩が好ましい。

20

【 0 0 3 9 】

【 化 6 】



30

【 0 0 4 0 】

式(6)中、nは1～12の整数を表し、mは1～5の整数を表し、Rfは、アルキル基の全部又は一部の水素がフッ素に置換されてなるフルオロアルキル基を表す。

【 0 0 4 1 】

上記アンチモン錯体は特に限定されないが、スルホニウム塩であることが好ましい。

上記アンチモン錯体であるスルホニウム塩としては、具体的には例えば、テトラフェニル(ジフェニルスルフィド-4, 4'-ジイル)ビススルホニウム・ジ(六フッ化アンチモン)、テトラ(4-メトキトフェニル)[ジフェニルスルフィド-4, 4'-ジイル]ビススルホニウム・ジ(六フッ化アンチモン)、ジフェニル(4-フェニルチオフェニル)スルホニウム・六フッ化アンチモン、ジ(4-メトキシフェニル)[4-フェニルチオフェニル]スルホニウム・六フッ化アンチモン等が挙げられる。

40

上記アンチモン錯体のうち市販されているものとしては、例えば、アデカオプトマー SP 1 7 0 (A D E K A 社製) 等が挙げられる。

【 0 0 4 2 】

上記6フッ化リンイオンを有する塩としては、例えば、ジフェニルヨードニウムヘキサフクロホスフェート、トリフェニルスルホニウムヘキサフクロホスフェート等が挙げられる。上記6フッ化リンイオンを有する塩のうち市販されているものとしては、例えば、WP

50

I - 113 (和光純薬工業社製)、CPI - 100P (サンアプロ社製) 等が挙げられる。

【0043】

上記式(6)で表される塩のうち市販されているものとしては、例えば、CPI - 200K、CPI - 210S (いずれもサンアプロ社製) 等が挙げられる。

【0044】

上記カチオン重合開始剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計100重量部に対して、好ましい下限が0.1重量部、好ましい上限が10重量部である。上記カチオン重合開始剤の含有量が0.1重量部未満であると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化反応を十分に進行させることができなくなることがある。上記カチオン重合開始剤の含有量が10重量部を超えると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物が着色したり、保存安定性に劣るものとなったりすることがある。上記カチオン重合開始剤の含有量のより好ましい下限は0.5重量部、より好ましい上限は5重量部である。

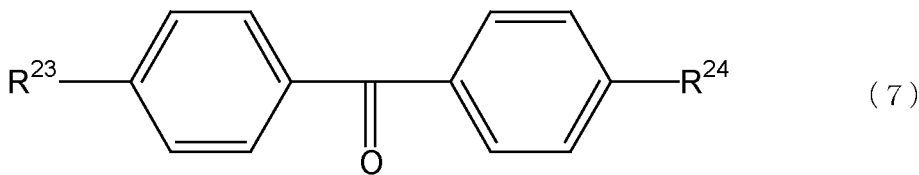
10

【0045】

また、上記硬化剤として上記光カチオン重合開始剤を用いる場合、下記式(7)で表されるベンゾフェノン誘導体からなる増感剤を含有することが好ましい。上記増感剤は、上記光カチオン重合開始剤の重合開始効率をより向上させて、本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化反応を適度に促進させる役割を有する。

【0046】

【化7】



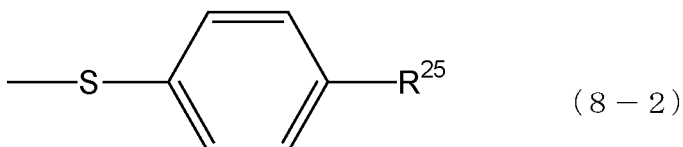
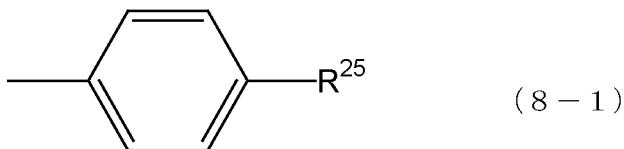
【0047】

式(7)中、 R^{23} 及び R^{24} は、水素、下記式(8-1)で表される置換基、又は、下記式(8-2)で表される置換基を表す。上記 R^{23} 及び R^{24} は互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

30

【0048】

【化8】



40

【0049】

式(8-1)、(8-2)中、 R^{25} は、水素、炭素数1~20の直鎖状又は分枝状のアルキル基、炭素数1~20のアルコキシ基、ハロゲン原子、水酸基、カルボキシ基、又は、炭素数1~20のカルボン酸アルキルエステル基を表す。

【0050】

上記式(7)で表されるベンゾフェノン誘導体としては、具体的には例えば、ベンゾフェ

50

ノン、2,4-ジクロロベンゾフェノン、o-ベンゾイル安息香酸メチル、4,4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン、4-ベンゾイル-4'-メチルジフェニルサルファイド等が挙げられる。

【0051】

上記増感剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計100重量部に対して、好ましい下限が0.05重量部、好ましい上限が3重量部である。上記増感剤の含有量が0.05重量部未満であると、増感効果が十分に得られないことがある。上記増感剤の含有量が3重量部を超えると、吸収が大きくなりすぎて深部まで光が伝わらないことがある。上記増感剤の含有量のより好ましい下限は0.1重量部、より好ましい上限は1重量部である。

10

【0052】

上記熱硬化剤は、加熱により上記多官能カチオン重合性オリゴマー及び上記カチオン重合性ポリマーの硬化を開始させるとともに、硬化を促進させる機能を有する。

【0053】

上記熱硬化剤としては、例えば、ヒドラジド化合物、イミダゾール誘導体、第二級アミン化合物、第三級アミン化合物、酸無水物、ジシアンジアミド、グアニジン誘導体、変性脂肪族ポリアミン、各種アミンとエポキシ樹脂との付加生成物等が挙げられる。

これらの熱硬化剤は、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。

【0054】

上記ヒドラジド化合物としては、例えば、1,3-ビス(ヒドラジノカルボノエチル-5-イソプロピルヒダントイン)等が挙げられる。

20

上記イミダゾール誘導体としては、例えば、2-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、1,2-ジメチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール、2,3-ジヒドロ-1H-ピロロ[1,2-a]ベンズイミダゾール等のイミダゾール化合物や、2-メチルイミダゾリン、2-フェニルイミダゾリン等のイミダゾリン類や、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、エポキシ-イミダゾールアダクト等のイミダゾール誘導体が挙げられる。

30

上記第二級アミン化合物としては、例えば、ピペリジン等が挙げられる。

上記第三級アミン化合物としては、例えば、N,N-ジメチルピペラジン、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、2-(ジメチルアミノメチル)フェノール、2,4,6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール等が挙げられる。

上記酸無水物としては、例えば、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルナジック酸無水物、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、水素化メチルナジック酸無水物、エチレングリコール-ビス(アンヒドロトリメリテート)等が挙げられる。なかでも、二重結合を含まない脂環式の酸無水物が好ましい。

【0055】

上記熱硬化剤の分子量の好ましい下限は80、好ましい上限は800である。上記熱硬化剤の分子量が80未満であると、揮発性が高くなってアウトガスが発生することがある。上記熱硬化剤の分子量が800を超えると、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物を素子に熱圧着する際の流動性が低下したり、組成物中での拡散性が低下し、十分な硬化性が得られなかったりすることがある。上記熱硬化剤の分子量のより好ましい下限は100、より好ましい上限は500、更に好ましい下限は120、更に好ましい上限は250である。

40

【0056】

上記硬化剤として熱硬化剤を用いる場合、上記熱硬化剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計100重量部に対して、好ましい下限が0.1重量部、好ましい上限が10重量部である。上記熱硬化剤の含有量が0.

50

1 重量部未満であると、得られる有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物を十分に熱硬化させることができないことがある。上記熱硬化剤の含有量が 10 重量部を超えると、得られる有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物が保存安定性に劣るものとなることがある。上記熱硬化剤の含有量のより好ましい下限は 0.5 重量部、より好ましい上限は 5 重量部である。

なお、上記熱硬化剤として上記酸無水物を用いる場合、上記酸無水物の配合量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計 100 重量部に対して、好ましい下限が 50 重量部、好ましい上限が 150 重量部である。

【0057】

また、上記熱硬化剤として上記酸無水物を用いる場合、本発明の有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、硬化促進剤を含有してもよい。

上記硬化促進剤としては、例えば、第四級アンモニウム塩、第四級スルホニウム塩、DBU 脂肪酸塩、各種金属塩、イミダゾール、第三級アミン等が挙げられる。

上記第四級アンモニウム塩としては、例えば、テトラメチルアンモニウムブロマイド、テトラブチルアンモニウムブロマイド等が挙げられる。

上記第四級スルホニウム塩としては、例えば、テトラフェニルホスホニウムブロマイド、テトラブチルホスホニウムブロマイド等が挙げられる。

上記 DBU 脂肪酸塩としては、例えば、DBU の 2 - エチルヘキサン酸塩等が挙げられる。

上記金属塩としては、例えば、オクチル酸亜鉛、オクチル酸スズ等が挙げられる。

上記イミダゾールとしては、例えば、1 - ベンジル - 2 - メチルイミダゾール、1 - ベンジル - 2 - フェニルイミダゾール、2 - エチル - 4 - メチルイミダゾール等が挙げられる。

上記第三級アミンとしては、例えば、トリス (ジメチルアミノメチルフェノール、ベンジルジメチルアミン等が挙げられる。

【0058】

上記硬化促進剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計 100 重量部に対して、好ましい上限は 10 重量部である。硬化促進剤を 10 重量部以下の含有量となるように添加することにより、上記熱硬化剤として上記酸無水物を用いる場合の硬化温度を適切に調整することができる。

【0059】

本発明の有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、シランカップリング剤を含有することが好ましい。上記シランカップリング剤は、本発明の有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物と被着体との接着性を向上させる役割を有する。

【0060】

上記シランカップリング剤は、カチオン重合性基を有することが好ましい。

上記シランカップリング剤が有することが好ましいカチオン重合性基としては、例えば、エポキシ基、オキセタニル基等が挙げられる。

上記カチオン重合性基を有するシランカップリング剤としては、例えば、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、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、3 - エチル - (トリエトキシシリルプロポキシ) メチル) オキセタン等が挙げられる。なかでも、上記多官能カチオン重合性オリゴマーや上記カチオン重合性ポリマーとの相溶性や安定性の観点から、3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシランが好ましい。これらのシランカップリング剤は、単独で用いられてもよいし、2 種以上が併用されてもよい。

【0061】

上記シランカップリング剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計 100 重量部に対して、好ましい下限が 0.1 重量部、好ましい上限が 5 重量部である。上記シランカップリング剤の含有量が 0.1 重量部未満であると、得られる有機 E L 表示素子封止用硬化性樹脂組成物の接着性を向上させる効果が充

10

20

30

40

50

分に発揮されないことがある。上記シランカップリング剤の含有量が5重量部を超えると、得られる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の硬化物が、架橋密度の低下によりバリア性に劣るものとなったり、余剰のシランカップリング剤がブリードアウトしたりすることがある。上記シランカップリング剤の含有量のより好ましい下限は0.3重量部、より好ましい上限は2重量部である。

【0062】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、界面活性剤を含有してもよい。上記界面活性剤を含有することにより、後述する本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物をシート状に成形する際の塗布後の平坦性を更に向上させることができる。

上記界面活性剤としては、例えば、消泡剤やレベリング剤等が挙げられる。

10

【0063】

上記界面活性剤としては、例えば、フッ素系、シリコン系、アクリル系等のものが挙げられる。なかでも、フッ素系界面活性剤、シリコン系界面活性剤が好ましく、フッ素系界面活性剤がより好ましい。

【0064】

上記フッ素系界面活性剤としては、末端、主鎖及び側鎖の少なくともいずれかの部位にフルオロアルキル基又はフルオロアルキレン基を有する化合物を好適に用いることができ、具体的には例えば、1,1,2,2-テトラフロロオクチル(1,1,2,2-テトラフロロプロピル)エーテル、1,1,2,2-テトラフロロオクチルヘキシルエーテル、オクタエチレングリコールジ(1,1,2,2-テトラフロロブチル)エーテル、ヘキサエチレングリコール(1,1,2,2,3,3-ヘキサフロロペンチル)エーテル、オクタプロピレングリコールジ(1,1,2,2-テトラフロロブチル)エーテル、ヘキサプロピレングリコールジ(1,1,2,2,3,3-ヘキサフロロペンチル)エーテル、パーフロロドデシルスルホン酸ナトリウム、1,1,2,2,8,8,9,9,10,10-デカフロロドデカン、1,1,2,2,3,3-ヘキサフロロデカン、フルオロアルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム、フルオロアルキルホスホン酸ナトリウム、フルオロアルキルカルボン酸ナトリウム、フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル、ジグリセリントトラキス(フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル)、フルオロアルキルアンモニウムヨージド、フルオロアルキルベタイン、フルオロアルキルポリオキシエチレンエーテル、パーフルオロアルキルポリオキシエタノール、パーフルオロアルキルアルコキシレート、フッ素系アルキルエステル等が挙げられる。

20

30

【0065】

また、上記フッ素系界面活性剤のうち市販されているものとしては、例えば、BM-1000、BM-1100(以上、BM HEMIE社製)、メガファックF142D、メガファックF172、メガファックF173、メガファックF183、メガファックF178、メガファックF191、メガファックF471、メガファックF476(以上、DIC社製)、フロラードFC170C、FC-171、FC-430、FC-431(以上、住友スリーエム社製)、サーフロンS-112、サーフロンS-113、サーフロンS-131、サーフロンS-141、サーフロンS-145、サーフロンS-382、サーフロンSC-101、サーフロンSC-102、サーフロンSC-103、サーフロンSC-104、サーフロンSC-105、サーフロンSC-106(以上、旭硝子社製)、エフトップEF301、エフトップEF303、エフトップEF352(以上、三菱マテリアル電子化成社製)、フタージェントFT-100、フタージェントFT-110、フタージェントFT-140A、フタージェントFT-150、フタージェントFT-250、フタージェントFT-251、フタージェントFTX-251、フタージェントFTX-218、フタージェントFT-300、フタージェントFT-310、フタージェントFT-400S(以上、ネオス社製)等が挙げられる。

40

【0066】

また、上記シリコン系界面活性剤としては、ポリエーテル変性ポリジメチルシロキサン、ポリエステル変性ポリジメチルシロキサンがより好ましく、ポリエーテル変性ポリジメ

50

チルシロキサンが更に好ましい。

【0067】

上記シリコン系界面活性剤のうち市販されているものとしては、例えば、BYK-354、BYK-300、BYK-302、BYK-306、BYK-307、BYK-310、BYK-313、BYK-315、BYK-320、BYK-322、BYK-323、BYK-325、BYK-330、BYK-331、BYK-333、BYK-342、BYK-345、BYK-346、BYK-347、BYK-348、BYK-349、BYK-370、BYK-378、BYK-3455（以上、ビッケミー・ジャパン社製）、サーフロンS-611（AGCセイメケミカル社製）、トーレシリコンDC3PA、トーレシリコンDC7PA、トーレシリコンSH11PA、トーレシリコンSH21PA、トーレシリコンSH28PA、トーレシリコンSH29PA、トーレシリコンSH30PA、トーレシリコンSH-190、トーレシリコンSH-193、トーレシリコンSZ-6032、トーレシリコンSF-8428、トーレシリコンDC-57、トーレシリコンDC-190（以上、東レ・ダウコーニング・シリコン社製）、TSF-4440、TSF-4300、TSF-4445、TSF-4446、TSF-4460、TSF-4452（以上、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）等が挙げられる。

10

【0068】

また、上記界面活性剤としては、例えば、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルエーテル、ポリオキシエチレンオレイルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルエーテル類や、ポリオキシエチレンn-オクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンn-ノニルフェニルエーテル等のポリオキシエチレンアリールエーテル類や、ポリオキシエチレンジラウレート、ポリオキシエチレンジステアレート等のポリオキシエチレンジアルキルエステル類等を用いることもできる。

20

【0069】

上記界面活性剤は、単独で用いられてもよいし、2種以上が組み合わせて用いられてもよい。

上記界面活性剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計100重量部に対して、好ましい下限が0.01重量部、好ましい上限が5重量部である。上記界面活性剤の含有量が0.01重量部未満であると、塗布後の平坦性を向上させる効果が十分に発揮されないことがある。上記界面活性剤の含有量が5重量部を超えると、塗布後の平坦性が逆に損なわれたり、本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物と被着体との接着性が低下したりすることがある。上記界面活性剤の含有量は、フッ素系界面活性剤では、より好ましい下限は0.02重量部、より好ましい上限は1重量部である。また、シリコン系界面活性剤では、より好ましい下限は0.1重量部、より好ましい上限は2重量部である。

30

【0070】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、本発明の目的を阻害しない範囲で充填剤を含有してもよい。

上記充填剤としては、例えば、タルク、石綿、シリカ、珪藻土、スメクタイト、ベントナイト、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、アルミナ、モンモリロナイト、酸化マグネシウム、酸化チタン、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、ガラスビーズ、硫酸バリウム、石膏、珪酸カルシウム、セリサイト、活性白土等の無機充填剤や、ポリエステル微粒子、ポリウレタン微粒子、ビニル重合体微粒子、アクリル重合体微粒子等の有機充填剤等が挙げられる。

40

【0071】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、本発明の目的を阻害しない範囲で、素子電極の耐久性を向上させるために、有機EL表示素子用硬化性樹脂組成物中に発生した酸と反応する化合物又はイオン交換樹脂を含有してもよい。

【0072】

50

上記発生した酸と反応する化合物としては、酸と中和する物質、例えば、アルカリ金属の炭酸塩若しくは炭酸水素塩、又は、アルカリ土類金属の炭酸塩若しくは炭酸水素塩等が挙げられる。具体的には例えば、炭酸カルシウム、炭酸水素カルシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等が用いられる。

【0073】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、硬化遅延剤を含有することが好ましい。上記硬化遅延剤は、保存安定性を向上させる役割や、使用可能時間及び硬化時間を制御する役割を有する。

上記硬化遅延剤としては、アミン化合物、エーテル結合を有する化合物等が用いられる。

【0074】

上記アミン化合物としては、例えば、ベンジルアミン、メチルアミン、エチルアミン、n-ブチルアミン、イソブチルアミン等の第一級アミン化合物、ジエチルアミン、ジフェニルアミン等の第二級アミン化合物、トリエチルアミン、トリイソプロパノールアミン等の第三級アミン化合物等が挙げられる。

上記エーテル結合を有する化合物としては、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール等の鎖状ポリエーテルや、12-クラウン4-エーテル、15-クラウン5-エーテル、18-クラウン6-エーテル、24-クラウン8-エーテル、ジシクロヘキサノ-18-クラウン6-エーテル、ジベンゾ-18-クラウン6-エーテル、2-(ヒドロキシメチル)-18-クラウン6-エーテル、2-(アシルオキシメチル)-18-クラウン6-エーテル、ベンゾ-18-クラウン6-エーテル、4'-アセチルベンゾ-18-クラウン6-エーテル、N,N'-ジベンジル-4,13-ジアザ-18-クラウン6-エーテル等の環状ポリエーテルが挙げられる。

なかでも、ベンジルアミンが好ましい。

【0075】

上記硬化遅延剤の含有量は、上記多官能カチオン重合性オリゴマーと上記カチオン重合性ポリマーとの合計100重量部に対して、好ましい下限が0.1重量部、好ましい上限が5重量部である。上記硬化遅延剤の含有量が0.1重量部未満であると、得られる有機EL表示素子用封止用硬化性樹脂組成物に遅延効果を十分に付与できないことがある。上記硬化遅延剤の含有量が5重量部を超えると、得られる有機EL表示素子用封止用硬化性樹脂組成物を硬化させる際にアウトガスが多量に発生することがある。上記硬化遅延剤の含有量のより好ましい下限は0.5重量部、より好ましい上限は3重量部である。

【0076】

上記イオン交換樹脂としては、陽イオン交換型、陰イオン交換型、両イオン交換型のいずれも使用することができるが、特に塩化物イオンを吸着することのできる陽イオン交換型又は両イオン交換型が好適である。

【0077】

また、本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、本発明の目的を阻害しない範囲で、必要に応じて、保存安定剤、可塑剤、粘弾性調整剤等の公知の各種添加剤を含有してもよい。

【0078】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物を製造する方法としては、例えば、ホモディスパー、ホモミキサー、万能ミキサー、プラネタリーミキサー、ニーダー、3本ロール等の混合機を用いて、多官能カチオン重合性オリゴマーと、カチオン重合性ポリマーと、硬化剤と、必要に応じて添加する添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

【0079】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物の100における溶融粘度の好ましい下限は1000Pa・s、好ましい上限は5万Pa・sである。100における溶融粘度が1000Pa・s未満であると、ロール貼り合わせ時等に流動性が大きくなり、貼り合せの端部より硬化性樹脂がはみ出してロールや有機EL表示素子を汚損したり、塗布

10

20

30

40

50

した際の厚みが不均一になったりすることがある。100における溶融粘度が5万Pa・sを超えると、ロール貼り合わせ時等に有機発光材料層を有する積層体の凹凸への追従性が低下し、気泡の巻き込みが生じやすくなったり、接着力が低下したりすることがある。また、有機発光材料層を有する積層体の凹凸への追従性を補助するためにロール貼り合わせの圧力を高める等を行う必要が生じ、得られる有機EL表示素子を損傷することがある。上記100における溶融粘度のより好ましい下限は1500Pa・s、より好ましい上限は21100Pa・sである。

なお、上記100における溶融粘度は、レオメータを用いて、周波数1Hz、昇温速度5 / 分の条件にて加熱しながら粘度測定した際の100における粘度として求められる。

10

【0080】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、厚さ20μmの硬化物を120で15分放置した時のμg/cm²単位のアウトガス量が200ppm以下であることが好ましい。上記アウトガス量が200ppmを超えると、得られる有機EL表示素子がアウトガスによる悪影響を受けることがある。上記アウトガス量のより好ましい上限は100ppmである。

なお、上記μg/cm²単位のアウトガス量は、ダブルショットパイロライザー及びガラスクロマト/質量分析計(GC-MS)を用いたダイナミックスペース法により、トルエンを標準物質として定量して測定できる。また、上記アウトガス量を測定する硬化物は、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物をオープン中で80にて15分間乾燥させることにより得ることができる。

20

【0081】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物は、厚さ20μmの硬化物とした時、波長400~800nmの可視光透過率が95%以上であることが好ましい。上記可視光透過率が95%未満であると、透明性に劣り、トップエミッション型の有機EL表示素子に適用できなくなることがある。上記可視光透過率のより好ましい下限は97%である。なお、上記可視光透過率は、分光光度計を用いて測定できる。また、上記可視光透過率を測定する硬化物は、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物をオープン中で80にて15分間乾燥させて得られたシートを、無アルカリガラス基板にロールラミネートして転写した後、オープンにて100で1時間加熱硬化を行うことにより得ることができる。

30

【0082】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物をシート状に成形してなる有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートもまた、本発明の1つである。

【0083】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物をシート状に成形する方法としては、比較的低温で均一な膜厚のシートを形成することができることから、溶液塗布法が好ましい。具体的には例えば、本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物と溶剤とを含有する溶液を、離型処理を施したPET(ポリエチレンテレフタレート)等のフィルム(以下、「離型フィルム」ともいう)上に所定の厚みに塗布し、溶剤を乾燥することによりフィルムを得る方法が好適に用いられる。

40

【0084】

本発明の有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物と溶剤とを含有する溶液を離型フィルム上に塗布する方法としては、例えば、ロールコート、スリットコート、コンマコート、グラビアコート、キスコート、ダイコート、リップコート、ブレードコート、バーコート等の公知の方法を用いることができる。

【0085】

上記溶剤としては、例えば、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、トルエン、酢酸エチル等の公知の溶剤が挙げられる。なかでも、メチルエチルケトン、トルエンが好ましい。

【0086】

50

本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂組成物及び／又は本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートを用いて製造される有機ＥＬ表示素子もまた、本発明の１つである。

本発明の有機ＥＬ表示素子を製造する方法としては、例えば、離型フィルム上に形成した本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートを、ロール貼り合わせにより有機発光材料層を有する積層体を形成した基板上に熱ラミネートし、離型フィルムを剥離した後に、極薄ガラスやガスバリア性を有するプラスチックシートを、本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートを介して有機発光材料層を有する積層体上に積層して有機ＥＬ表示素子の封止を行う方法や、離型フィルム上に形成した本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートを、ロール貼り合わせによりガラスやガスバリア性を有するプラスチックシート上に熱ラミネートし、離型フィルムを剥離した後に、更に本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートを介して有機発光材料層を有する積層体を形成した基板に積層して有機ＥＬ表示素子の封止を行う方法等が挙げられる。

10

【００８７】

有機ＥＬ表示素子の損傷や劣化を防ぐ観点から、本発明の有機ＥＬ表示素子の製造は、５０～１００程度の温度範囲で行うことが好ましい。そのため、本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートは、この温度領域で流動性を発現することが必要であり、本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂組成物の溶融粘度が上述した範囲であることが好ましい。

20

【００８８】

本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂組成物及び本発明の有機ＥＬ表示素子用硬化性樹脂シートは、反応性をもたないシート状粘着剤やシート状の熱可塑性樹脂等の従来の封止材料と比較して、耐熱性やバリア性に優れるものとなる。

また、本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂シートは、着色がなく透明性に優れるため、発光の取り出し効率に優れるトップエミッション型の有機ＥＬ表示素子に適用できることに加え、耐屈曲性に優れることから、フレキシブルディスプレイに使用した場合、曲げによる封止層のクラックが生じにくく、屈曲による劣化が小さい信頼性に優れた有機ＥＬ表示素子を得ることができる。

更に、本発明の有機ＥＬ表示素子は、本発明の有機ＥＬ表示素子封止用硬化性樹脂組成物及び／又は有機ＥＬ表示素子用硬化性樹脂シートを用いて、有機発光材料層を有する積層体が形成されたガラス又はフィルムと、対向するガラス又はフィルムとの間隙を封止することにより、水分の浸入を抑制してダークスポットの発生や該ダークスポットの成長による表示の劣化を抑制することができ、寿命や信頼性に優れるものとなる。

30

【発明の効果】

【００８９】

本発明によれば、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れる樹脂シートを得ることができる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を提供することができる。また、本発明によれば、該有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート及び有機エレクトロルミネッセンス表示素子を提供することができる。

40

【発明を実施するための形態】

【００９０】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されない。

【００９１】

（実施例１）

カチオン重合性ポリマーとしてメチルメタクリレート－グリシジルメタクリレート共重合体（日油社製、「マーブルーフＧ－２０５０Ｍ」、重量平均分子量２２万、カチオン重合性基当量３４０ｇ／ｍｏｌ）をメチルエチルケトンに溶解し、カチオン重合性ポリマー３

50

5重量%含有メチルエチルケトン溶液を調製した。多官能カチオン重合性オリゴマーとしてビスフェノールA型エポキシオリゴマー（DIC社製、「EPICLON 840-S」、分子量340、カチオン重合性基当量175 g/mol）100重量部、熱カチオン重合開始剤として芳香族スルホニウム塩（三新化学工業社製、「サンエイドSI-60」）6重量部、及び、シランカップリング剤として3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業社製、「KBM-403」）2重量部に、調製したカチオン重合性ポリマー35重量%含有メチルエチルケトン溶液を、カチオン重合性ポリマーが100重量部となるように加えた。全体のメチルエチルケトンの配合量が300重量部となるように、更にメチルエチルケトンを加え、自転公転型攪拌混合機（シンキー社製、「あわとり練太郎 ARE-310型」）により、攪拌速度2000 rpmで2分間の攪拌混合を行って均一な有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物溶液を得た。

10

次いで、得られた有機EL表示素子封止用硬化性樹脂組成物溶液を、離型処理を施したPETフィルム上に、乾燥後の厚みが所定の厚さとなるようにアプリケーションャーを用いて塗布し、オープン中で80℃にて15分間乾燥してPETフィルム上に積層された有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ20 µm及び100 µm）を得た。

【0092】

（実施例2～11、比較例1～5）

用いた材料及び配合量を表1～3に示したものとしたこと以外は、実施例1と同様にして有機EL表示素子用硬化性樹脂組成物を作製した。

【0093】

20

< 評価 >

実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子用硬化性樹脂組成物及び各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートについて、以下の評価を行った。結果を表1～3に示した。

【0094】

（1）溶融粘度

実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ20 µm）を16層積層し、厚み約300 µmの試験片を作製した。積層は、離型フィルム上の熱硬化性樹脂シート2枚を、熱硬化性樹脂シート面同士を重ね合わせて気泡を生じないようにロールラミネートして、両側を離型フィルムでサンドイッチされた熱硬化性シートの2層積層体を作製し、更にこれを2分の1の大きさに切断した後に片面の離型フィルムを剥ぎとって、再度熱硬化性樹脂シート面同士を重ね合わせてロールラミネートするという手順を4回繰り返すことにより行った。

30

この試験片から、直径8 mmの円形のサンプルを打ち抜き、レオメータ（ReoLogica社製 DAR-100粘弾性測定装置）を用いて周波数1 Hz、昇温速度5℃/分の条件にて25℃から150℃まで加熱しながら粘度測定を行い、100℃における溶融粘度を求めた。

【0095】

（2）アウトガス量

実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ20 µm）約50 mgを、試験容器に秤量し、ダブルショットパイロライザー及びガラスクロマト/質量分析計（GC-MS）を用いたダイナミックスペース法にて、120℃で15分加熱した際に発生するアウトガス量を測定した。発生したアウトガス量は、トルエンを標準物質として定量した。

40

【0096】

（3）接着性

実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ20 µm）を、厚さ1 mmのガラス基板上にロールラミネーターを使用して積層した。次いで、縦3 mm×横3 mm×厚さ0.7 mmのガラスチップを、ガラス基板上に積層した有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートの上に載せ、簡易熱圧着機（大崎エンジニアリング社製、「CT-300」）を使用して圧力0.2 MPa、温度90℃で10秒間圧着した後、

50

オープンにて100℃で1時間加熱硬化を行い、試験片を得た。得られた試験片について、万能型ボンドテスター（ノードソン・アドバンスト・テクノロジー社製、「シリーズ4000」）を使用してダイシエア接着力の測定を行った。

ダイシエア接着力が150N以上であった場合を「○」、接着力が150N未満100N以上であった場合を「△」、接着力が100N未満であった場合を「×」として接着性を評価した。

【0097】

（4）バリア性

実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ100μm）を、オープンにて100℃で1時間加熱硬化させ、試験片を得た。得られた試験片について、JIS Z 0208に準拠した透湿度測定を行った。

具体的には、60mmφカップに試験片をセットし、恒温恒湿槽（タバイエスペック社製、「PL-2KP」）を用いて、試験温度60℃、試験湿度90%RHの条件とし、24時間毎の重量変化量を3点測定し平均値を求めた。

透湿度が50g/m²未満であった場合を「○」、50g/m²以上80g/m²未満であった場合を「△」、80g/m²以上であった場合を「×」として硬化物のバリア性（透湿防止性）を評価した。

なお、上記透湿度は、JIS Z 0208のように、透湿カップで測定する方法が一般的であるが、アメリカモコン社製のPERMATRAN W3/33等の水蒸気透過率測定装置を用いて測定することも可能である。

【0098】

（5）可視光透過率及びヘイズ

幅25mm、長さ50mm、厚さ0.7mmの無アルカリガラス基板に、実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シート（厚さ20μm）をロールラミネートして転写した後、オープンにて100℃で1時間加熱硬化を行い、試験片を得た。この試験片に対して、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを転写する前のガラス基板をリファレンスとして分光光度計にて400～800nmの波長における可視光透過率を測定した。また、可視光透過率を測定した上記試験片について、ヘイズメーターを用いてヘイズ（曇り）の測定を行った。

【0099】

（6）有機EL表示素子の発光状態

スパッタリングにより厚さ1000ÅのITO透明電極を成膜した無アルカリガラス基板を透明支持基板とし、真空蒸着により、N,N'-ジ（1-ナフチル）-N,N'-ジフェニルベンジジン（α-NPD）を蒸着速度15Å/sで基板に堆積させ、膜厚600Åの正孔輸送層を成膜した。次に、トリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（Alq₃）を15Å/sの蒸着速度で膜厚600Åに堆積し、発光層を形成した。その後、この基板を別の真空蒸着装置に移し、フッ化リチウムを0.2Å/sの蒸着速度で5Å成膜した後、アルミニウムを20Å/sの速度で1000Å成膜し、有機発光材料層を有する積層体を得た。

この積層体を形成した基板の上に実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを80℃にてロールラミネートして転写した。更に、転写した有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートの上にガラス基板を重ね、真空ラミネータを用いて80℃にて加熱圧着させた。その後、各オープン中で100℃×1時間加熱して、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを硬化させ、有機EL表示素子を得た。

得られた有機EL表示素子を温度60℃、湿度90%の条件下にて100時間暴露した後、10Vの電圧を印加し素子の発光状態（発光及びダークスポットの有無）を目視で観察した。ダークスポットがなく、均一に発光した場合を「○」、発光はしたものの、ダークスポットがあった場合を「△」、全く発光しなかった場合を「×」として評価した。

【0100】

（7）有機EL表示素子の耐屈曲性

厚さ100 μ mのPETフィルムに、スパッタリングにより厚さ1000 のZnSnO_xを成膜したガスバリアフィルムを透明支持基板とし、更にスパッタリングにより厚さ1000 のITO透明電極を成膜し、上記「(6)有機EL素子の発光状態」と同様の手順により、N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン(α -NPD)の正孔輸送層、トリス(8-ヒドロキシキノリル)アルミニウム(Alq₃)の発光層、フッ化リチウムの電子輸送層、アルミニウム電極を成膜し、有機発光材料層を有する積層体を得た。

他方、厚さ100 μ mのPETフィルムにスパッタリングにより厚さ1000 のZnSnO_xを成膜したガスバリアフィルムに、実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを80 にてロールラミネートして転写し、有機発光材料層を有する積層体を形成したフィルム基板上に有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを介して80 にてロールラミネートして積層した。その後、各オープン中にて100 で1時間加熱して、有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートを硬化させ、有機EL表示素子を得た。

得られた有機EL表示素子をJIS C5016に準拠した屈曲試験にて曲げ半径5mm、トラバース距離20mm、トラバース速度10mm/秒で20回の屈曲を行った後、温度60、湿度90%の条件下に100時間暴露し、10Vの電圧を印加し素子の発光状態を目視で観察した。ガスバリアフィルムの間隙を埋める有機EL表示素子封止用硬化性樹脂シートのクラッキングによる水分の浸入で有機EL素子の屈曲箇所において発光領域の縮小が見られなかった場合を「○」、発光領域の縮小が見られた場合を「△」、発光領域がほぼ消失又は大幅に縮小した場合を「×」として耐屈曲性を評価した。

【0101】

10

20

【表 1】

		実施例					
		1	2	3	4	5	6
組成 (重量部)	ビスフェノールA型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON 840-SI」、分子量340、カチオン重合性基当量175g/mol)	100	—	—	—	—	—
	ビスフェノールF型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON EXA-830LVP」、分子量312、カチオン重合性基当量160g/mol)	—	100	—	—	—	—
	水添ビスフェノールA型エポキシオリゴマー (三菱化学社製、「JER YX8034」、分子量526、カチオン重合性基当量270g/mol)	—	—	100	—	—	—
	水添ビスフェノールF型エポキシオリゴマー (三菱化学社製、「JER YL6753」、分子量348、カチオン重合性基当量180g/mol)	—	—	—	100	—	—
	ジシクロペンタジエン型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON HP7200L」、分子量433、カチオン重合性基当量250g/mol)	—	—	—	—	100	—
	式(4)で表される化合物	—	—	—	—	—	50
	式(5)で表される化合物 (日産化学社製、「セロキサイド8000」、分子量194、カチオン重合性基当量100g/mol)	—	—	—	—	—	50
	式(5)で表される化合物 (日産化学社製、「TEPIC-VL」、分子量381、カチオン重合性基当量128g/mol)	—	—	—	—	—	—
	メチルメタクリレート-グリジメチルメタクリレート共重合体 (日油社製、「マーブルーフG-2050M」、分子量22万、カチオン重合性基当量340g/mol)	100	100	—	100	100	100
	スチレン-グリジメチルメタクリレート共重合体 (日油社製、「マーブルーフG-1010S」、分子量10万5千、カチオン重合性基当量1700g/mol)	—	—	100	—	—	—
	熱カチオン 重合開始剤 (芳香族スルホニウム塩 (三新化学工業社製、「サンエイドSI-60」))	6	6	6	6	6	9
	硬化遅延剤 ベンジルアミン	—	—	—	—	—	2
評価	シラン カップリング剤	2	2	2	2	2	2
	溶剤 メチルエチルケトン	300	300	300	300	250	370
	溶解粘度 (Pa・s)	21100	11200	2300	12500	19100	16700
	アウトガス量 (ppm)	50	50	70	70	50	3
	接着性	○	○	○	○	○	○
	バリア性	○	○	○	○	○	○
	可視光透過率 (%)	97	98	98	99	96	99
	ヘイズ	1.2	1.1	0.8	0.8	1.4	0.6
	有機EL表示素子の発光状態	○	○	○	○	○	○
	有機EL表示素子の耐屈曲性	○	○	○	○	○	○

【 0 1 0 2 】

10

20

30

40

【表 2】

		実施例				
		7	8	9	10	11
	多官能 カチオン重合性 オリゴマー	(ダイセル社製、「セロキサイド8000」、分子量194、カチオン重合性基当量100g/mol) (日産化学社製、「TEPIC-VL」、分子量381、カチオン重合性基当量128g/mol)				
	カチオン重合性 ポリマー	メチルメタクリレート-グリンジルメタクリレート共重合体 (日油社製、「マーブルーフG-2050M」、分子量22万、カチオン重合性基当量340g/mol)				
	線状カチオン 重合開始剤	芳香族スルホニウム塩 (三新化学工業社製、「サンエイトSI-60」)				
		第四級アンモニウム塩 (King Industries社製、「K-PURE OXC-1821」)				
		芳香族スルホニウム塩 (三新化学工業社製、「サンエイトSI-B3A」)				
	硬化遅延剤	ベンジルアミン				
	シラン カップリング剤	3-グリジドキシプロピルトリメトキシシラン (信越化学工業社製、「KBM-403」)				
	溶剤	メチルエチルケトン				
	評価	溶解粘度 (Pa・s)				
		アウトガス量 (ppm)				
		接着性				
		バリア性				
		可視光透過率 (%)				
		ヘイズ				
		有機EL表示素子の発光状態				
		有機EL表示素子の耐屈曲性				

【 0 1 0 3 】

10

20

30

40

【表 3】

		比較例				
		1	2	3	4	5
組成 (重量部)	多官能 カチオン重合性 オリゴマー	ビスフェノールA型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON 840-SI、分子量340、カチオン重合性基当量175g/mol」)				
		100	—	—	—	—
		ビスフェノールF型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON EXA-830LVP」、分子量312、カチオン重合性基当量160g/mol」)				
		—	100	—	—	—
		水添ビスフェノールA型エポキシオリゴマー (三菱化学社製、「JER YX8034」、分子量526、カチオン重合性基当量270g/mol」)				
	カチオン重合性 ポリマー	—	—	100	—	—
		水添ビスフェノールF型エポキシオリゴマー (DIC社製、「EPICLON HP7200L」、分子量433、カチオン重合性基当量250g/mol」)				
		—	—	—	100	100
		メチルメタクリレート-グリンジルメタクリレート共重合体 (日油社製、「マーブルーフG-0150M」、分子量8万3千、カチオン重合性基当量3300g/mol」)				
		100	—	100	—	100
評価	熱カチオン 重合開始剤 シラン カップリング剤 溶剤	—	100	—	100	—
		スチレン-グリンジルメタクリレート共重合体 (日油社製、「マーブルーフG-0250S」、分子量2万2千、カチオン重合性基当量310g/mol」)				
		6	6	6	6	6
		芳香族スルホニウム塩 (三新化学工業社製、「サンエイドSI-60」)				
		2	2	2	2	2
	メチルエチルケトン	250	250	250	250	250
		溶融粘度(Pa・s)				
		1060	12	1100	13	1000
		アウトガス量(ppm)				
		50	50	70	70	50
	評価	接着性				
		○	△	○	△	○
		バリア性				
		○	△	○	△	○
		可視光透過率(%)				
	評価	97	98	98	99	96
		ヘイズ				
		1.1	1.2	0.8	0.8	1.5
		有機EL表示素子の発光状態				
		○	○	○	○	○
	評価	有機EL表示素子の耐屈曲性				
		×	×	△	×	×

10

20

30

40

【産業上の利用可能性】

【0104】

本発明によれば、加熱や屈曲等によるクラックの発生を防止することができ、接着性、透明性、バリア性に優れた樹脂シートを得ることができる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を提供することができる。また、本発明によれば、該有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂組成物を用いてなる有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート及び有機エレクトロルミネッセンス表示

50

素子を提供することができる。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/082280

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/04(2006.01)i, C08G59/00(2006.01)i, H01L51/50(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, C08G59/00, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2010-248387 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 04 November 2010 (04.11.2010), paragraphs [0071] to [0072], [0076], [0082]; examples (Family: none)	1,3-6 2,7-9
Y	JP 2008-13721 A (KYOCERA Chemical Corp.), 24 January 2008 (24.01.2008), paragraph [0025] (Family: none)	2
Y	WO 2012/020688 A1 (Daicel Chemical Industries, Ltd.), 16 February 2012 (16.02.2012), paragraphs [0001], [0028] & TW 201211094 A	7

☒ 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
19 January 2015 (19.01.15)Date of mailing of the international search report
27 January 2015 (27.01.15)Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/082280

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2004-339246 A (Nitto Denko Corp.), 02 December 2004 (02.12.2004), paragraph [0010] & JP 2009-263677 A	7
Y	JP 2012-82266 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 26 April 2012 (26.04.2012), paragraph [0030] (Family: none)	8-9
A	WO 2007/049385 A1 (Three Bond Co., Ltd.), 03 May 2007 (03.05.2007), entire text & JP 2007-112956 A & CN 101243117 A & KR 10-2008-0065582 A & TW I387071 B & KR 10-1234895 B	1-9
A	WO 2013/027389 A1 (Mitsui Chemicals, Inc.), 28 February 2013 (28.02.2013), entire text & CN 103732658 A & KR 10-2014-0048252 A & TW 201311755 A	1-9
A	WO 2013/137397 A1 (Lintec Corp.), 19 September 2013 (19.09.2013), entire text & TW 201343828 A	1-9

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 2 2 8 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, C08G59/00(2006.01)i, H01L51/50(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, C08G59/00, H01L51/50			
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 1971-2015年 日本国実用新案登録公報 1996-2015年 日本国登録実用新案公報 1994-2015年			
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	
X Y	JP 2010-248387 A（積水化学工業株式会社）2010.11.04, 段落【0071】－【0072】、【0076】、【0082】、実施例（ファミリーなし）	1、3－6 2、7－9	
Y	JP 2008-13721 A（京セラケミカル株式会社）2008.01.24, 段落【0025】（ファミリーなし）	2	
Y	W0 2012/020688 A1（ダイセル化学工業株式会社）2012.02.16, 段落【0001】、【0028】 & TW 201211094 A	7	
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献			
国際調査を完了した日 19.01.2015		国際調査報告の発送日 27.01.2015	
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） 井 亀 諭 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 8 2 2 8 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	JP 2004-339246 A (日東電工株式会社) 2004. 12. 02, 段落【0010】 & JP 2009-263677 A	7
Y	JP 2012-82266 A (三井化学株式会社) 2012. 04. 26, 段落【0030】 (ファミリーなし)	8-9
A	WO 2007/049385 A1 (株式会社スリーポンド) 2007. 05. 03, 全文 & JP 2007-112956 A & CN 101243117 A & KR 10-2008-0065582 A & TW I387071 B & KR 10-1234895 B	1-9
A	WO 2013/027389 A1 (三井化学株式会社) 2013. 02. 28, 全文 & CN 103732658 A & KR 10-2014-0048252 A & TW 201311755 A	1-9
A	WO 2013/137397 A1 (リンテック株式会社) 2013. 09. 19, 全文 & TW 201343828 A	1-9

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, 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, KM, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

F ターム(参考) 4J002 CD02X CD05X CD06X CD13X CD14X CD19W EE036 EG046 EL056 EL136
EN016 EQ016 EQ026 ER026 EU116 EV006 EV046 EW176 FD019 FD146
FD206 FD207 FD318 GQ00
4M109 AA01 BA07 CA22 CA26 EA02 EB02 EB06 EC03 EC09 EC11

(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)	用于封装有机电致发光显示元件的可固化树脂组合物，用于封装有机电致发光显示元件的可固化树脂片和有机电致发光显示元件		
公开(公告)号	JPWO2015087807A1	公开(公告)日	2017-03-16
申请号	JP2015501599	申请日	2014-12-05
[标]申请(专利权)人(译)	积水化学工业株式会社		
申请(专利权)人(译)	积水化学工业株式会社		
[标]发明人	末崎 穰 新城 隆		
发明人	末▲崎▼ 穰 新城 隆		
IPC分类号	H05B33/04 H01L51/50 C08L63/00 H01L23/29 H01L23/31		
CPC分类号	C08G59/00 H01L51/5253		
FI分类号	H05B33/04 H05B33/14.A C08L63/00.A H01L23/30.R		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/CC25 3K107/CC45 3K107/EE55 3K107/FF00 3K107/FF03 3K107/FF18 4J002/CD02X 4J002/CD05X 4J002/CD06X 4J002/CD13X 4J002/CD14X 4J002/CD19W 4J002/EE036 4J002/EG046 4J002/EL056 4J002/EL136 4J002/EN016 4J002/EQ016 4J002/EQ026 4J002/ER026 4J002/EU116 4J002/EV006 4J002/EV046 4J002/EW176 4J002/FD019 4J002/FD146 4J002/FD206 4J002/FD207 4J002/FD318 4J002/GQ00 4M109/AA01 4M109/BA07 4M109/CA22 4M109/CA26 4M109/EA02 4M109/EB02 4M109/EB06 4M109/EC03 4M109/EC09 4M109/EC11		
优先权	2013256377 2013-12-11 JP 2014028593 2014-02-18 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

用于密封有机电致发光显示元件的可固化树脂组合物技术领域本发明涉及一种用于密封有机电致发光显示元件的可固化树脂组合物，其能够防止由于加热，弯曲等引起的裂缝的发生，并且能够获得粘合性，透明性和阻隔性优异它旨在提供。本发明的另一个目的是提供一种用于封装有机电致发光显示元件的可固化树脂片和使用该有机电致发光显示元件密封用可固化树脂组合物的有机电致发光显示元件。 本发明是一种用于密封有机电致发光显示元件的可固化树脂组合物，其含有多官能阳离子可聚合低聚物，分子量大于100,000的阳离子可聚合聚合物和固化剂。

(19) 日本国特許庁 (JP)		再 公 表 特 許 (A1)		(11) 国際公開番号 WO2015/087807	
発行日 平成29年3月16日 (2017.3.16)		(43) 国際公開日 平成27年6月18日 (2015.6.18)			
(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)	
H 0 5 B 33/04 (2006.01)		H O 5 B 33/04		3 K 1 0 7	
H O 1 L 51/50 (2006.01)		H O 5 B 33/14		A 4 J 0 0 2	
C O 8 L 63/00 (2006.01)		C O 8 L 63/00		A 4 M 1 0 9	
H O 1 L 23/29 (2006.01)		H O 1 L 23/30		R	
H O 1 L 23/31 (2006.01)					
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 29 頁)					
出願番号 特願2015-501599 (P2015-501599)		(71) 出願人 000002174			
(21) 国際出願番号 PCT/JP2014/082280		積水化学工業株式会社			
(22) 国際出願日 平成26年12月5日 (2014.12.5)		大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号			
(31) 優先権主張番号 特願2013-256377 (P2013-256377)		(74) 代理人 110000914			
(32) 優先日 平成25年12月11日 (2013.12.11)		特許業務法人 安富国際特許事務所			
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)		(72) 発明者 末▲崎▼ 穰			
(31) 優先権主張番号 特願2014-28593 (P2014-28593)		日本国大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内			
(32) 優先日 平成26年2月18日 (2014.2.18)		(72) 発明者 新城 隆			
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)		日本国大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内			
		Fターム (参考) 3K107 AA01 BB01 CC23 CC25 CC45 EE55 FF00 FF03 FF18			
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表示素子封止用硬化性樹脂組成物、有機エレクトロルミネッセンス表示素子封止用硬化性樹脂シート、及び、有機エレクトロルミネッセンス表示素子					