

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-214367

(P2013-214367A)

(43) 公開日 平成25年10月17日(2013.10.17)

(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	

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2012-83113 (P2012-83113)	(71) 出願人	000005290
(22) 出願日	平成24年3月30日 (2012.3.30)		古河電気工業株式会社
			東京都千代田区丸の内二丁目2番3号
		(74) 代理人	100076439
			弁理士 飯田 敏三
		(74) 代理人	100131288
			弁理士 宮前 尚祐
		(72) 発明者	浅沼 匠
			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	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

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 樹脂組成物、接着剤フィルム、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および有機エレクトロルミネッセンス発光装置

(57) 【要約】

【課題】有機EL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樹脂組成物、接着剤フィルム、有機EL素子、有機ELパネル及び有機EL発光装置を提供する。

【解決手段】エポキシ基を有する化合物もしくは樹脂と金属酸化物の吸水フィラーを含む樹脂組成物であって、該樹脂組成物に含まれる金属酸化物の吸水フィラーの含有量Xが該樹脂組成物の全固形分質量の5質量%以上50質量%未満であり、かつ該Xが、赤外線吸収スペクトルの下記式(I)で表されるピーク面積A、樹脂組成物を塗工して得られたフィルムの厚みD(μm)との関係において、下記式(II)を満たす樹脂組成物、接着剤フィルム、有機EL素子、有機ELパネル及び有機EL発光装置。

$$\text{式(I)} \quad \alpha = 3A/D$$

$$\text{式(II)} \quad 2.5X - \alpha \leq 0.05$$

式中、Aは3600~3800 cm⁻¹で最も高いピークを中心に±10 cm⁻¹の範囲の面積を表す。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

エポキシ基を有する化合物もしくは樹脂と金属酸化物の吸水フィラーを含む樹脂組成物であって、該樹脂組成物に含まれる金属酸化物の吸水フィラーの含有量 X が該樹脂組成物の全固形分質量の 5 質量%以上 50 質量%未満であり、かつ該 X が、該樹脂組成物の赤外線吸収スペクトルによる下記式 (I) で表されるピーク面積 A 、樹脂組成物を塗工して得られたフィルムの厚み D (μm) との関係において、下記式 (II) を満たすことを特徴とする樹脂組成物。

$$\text{式 (I)} \quad \alpha = 3A / D$$

$$\text{式 (II)} \quad 2.5X / 100 - \alpha \quad 0.05$$

10

式中、 A は $3600 \sim 3800 \text{ cm}^{-1}$ で最も高いピークを中心に $\pm 10 \text{ cm}^{-1}$ の範囲の面積を表す。

【請求項 2】

前記吸水フィラーの少なくとも 1 つの金属酸化物が、 MgO 、 CaO または Al_2O_3 であることを特徴とする請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 3】

前記樹脂組成物が、接着性樹脂組成物であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の樹脂組成物。

20

【請求項 4】

前記樹脂組成物が、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着性樹脂組成物であることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 5】

請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる接着フィルム。

【請求項 6】

封止材に請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の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素子。

【請求項 7】

請求項 6 に記載の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。

30

【請求項 8】

請求項 6 に記載の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装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、樹脂組成物、接着剤フィルム、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および有機エレクトロルミネッセンス発光装置に関する。

【背景技術】

40

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス (以下有機 EL と称す) は水分等に弱く製品化のためには外部と遮断する手法が不可欠である。このような方法として、透水性の低位フィルムのガスバリアフィルムで有機 EL を覆い、熱で圧着する方法が知られている (例えば特許文献 1 参照)。しかしながら、ガスバリアフィルムを熱で圧着する方法は分解ガスが発生し、またフィルムと有機 EL 間に何ら力が働かないため、空気や水分が入り込みやすい。このため、有機 EL を吸水剤の金属酸化物を含む封止材で封止することが行なわれている (特許文献 1 ~ 4 参照)。

しかしながら、封止材に吸水剤を添加させた場合でも、十分に封止材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

50

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。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】特許第4765090号公報

【特許文献2】特開2007-367771号公報

【特許文献3】特開2004-330507号公報

【特許文献4】特許第2501066号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0004】

本発明は上記問題を解決し、有機EL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ダークスポットの発生等がなく安定な発光特性を維持することができる樹脂組成物、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および有機エレクトロルミネッセンス発光装置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】

【0005】

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吸水フィラーの含有量と樹脂組成物の赤外吸収スペクトルさらに樹脂組成物を塗工して得られたフィルムの厚みの間に特定な関係の重要性を見出し、本発明を完成させるに至ったものである。

20

【0006】

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) エポキシ基を有する化合物もしくは樹脂と金属酸化物の吸水フィラーを含む樹脂組成物であって、該樹脂組成物に含まれる金属酸化物の吸水フィラーの含有量Xが該樹脂組成物の全固形分質量の5質量%以上50質量%未満であり、かつ該Xが、該樹脂組成物の赤外線吸収スペクトルによる下記式(I)で表されるピーク面積A、樹脂組成物を塗工して得られたフィルムの厚みD(μm)との関係において、下記式(II)を満たすことを特徴とする樹脂組成物。

30

【0007】

式(I) $\alpha = 3A/D$

式(II) $2.5X/100 - \alpha \geq 0.05$

【0008】

式中、Aは3600~3800cm⁻¹で最も高いピークを中心に±10cm⁻¹の範囲の面積を表す。

(2) 前記吸水フィラーの少なくとも1つの金属酸化物が、MgO、CaOまたはAl₂O₃であることを特徴とする(1)に記載の樹脂組成物。

(3) 前記樹脂組成物が、接着性樹脂組成物であることを特徴とする(1)または(2)に記載の樹脂組成物。

(4) 前記樹脂組成物が、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着性樹脂組成物であることを特徴とする(1)~(3)のいずれか1項に記載の樹脂組成物。

40

(5) 前記(1)~(4)のいずれか1項に記載の樹脂組成物からなる接着フィルム。

(6) 封止材に(1)~(4)のいずれか1項に記載の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素子。

(7) 前記(6)に記載の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。

(8) 前記(6)に記載の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装置。

【発明の効果】

【0009】

50

本発明により、有機ＥＬ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ダークスポットの発生等がなく安定な発光特性を維持することができる樹脂組成物、接着剤フィルム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および有機エレクトロルミネッセンス発光装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【００１０】

【図１】本発明の樹脂組成物の封止材の好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【図２】本発明の有機ＥＬ素子の好ましい形態の断面を模式的に示す図である。

【発明を実施するための形態】

【００１１】

10

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）封止用に好適な樹脂組成物である。

有機ＥＬ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 $0.1 \mu\text{m}$ の厚みで成膜する。透明電極の成膜に際しては、真空蒸着及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ＥＬ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ＥＬ層を $0.05 \mu\text{m}$ 厚み

20

【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ＥＬ素子にダメージを与えないように 120°C 以下で行うことが望ましい。なお、上記において、貼り合わせが逆であってもかまわない。

30

【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、エポキシ基を有する化合物もしくは樹脂と金属酸化物の吸水フィラーを含む樹脂組成物である。

本発明においては、該樹脂組成物に含まれる金属酸化物の吸水フィラーの含有量 X 質量％が該樹脂組成物の全固形分質量の 5 質量％以上 50 質量％未満であり、かつ該 X が、該樹脂組成物の赤外線吸収スペクトルと樹脂組成物を塗工して得られたフィルムの厚み D (μm) による下記式 (I) で表される α との関係において、下記式 (II) を満たす。

40

【００１４】

式 (I) $\alpha = 3A / D$

式 (II) $2.5X / 100 - \alpha \leq 0.05$

【００１５】

式中、 A は $3600 \sim 3800 \text{ cm}^{-1}$ で最も高いピークを中心に $\pm 10 \text{ cm}^{-1}$ の範囲の面積を表す。

【００１６】

ここで、 D はフィルム厚みを表すが、式 (I)、(II) の関係は、塗工前の樹脂組成物に対しては、この樹脂組成物を $20 \mu\text{m}$ のフィルム厚みに塗工した場合の樹脂組成物の特性であって、 D は $20 \mu\text{m}$ となり、塗工後の樹脂組成物に対しては、塗工後の該樹脂組

50

成物のフィルム厚み（接着剤層厚み）をDとするものである。

【0017】

上記（II）式における $2.5X/100 - \alpha$ 値は、0.05以上2.0以下が好ましく、0.10以上1.3以下がより好ましい。

また、金属酸化物の吸水フィラーの含有量Xは、該樹脂組成物の全固形分質量の5質量%以上50質量%未満が好ましく、5質量%以上40質量%以下がより好ましい。

【0018】

〔FT-IRスペクトルのピーク面積Aの測定〕

FT-IRスペクトルのピーク面積Aは以下のようにして測定して求められる。

フーリエ変換赤外分光光度計（例えば、製品名Nicolet 6700、サーモフィッシャーサイエンティフィック製）を使用し、上記部分を乳鉢で粉碎し、KBrペレットにして測定試料を調合し、透過光にて赤外線吸収スペクトルを測定する。

得られた透過スペクトル（吸光度・波数での波長）上で、 $3600\text{ cm}^{-1} \sim 3800\text{ cm}^{-1}$ における最大の吸収波長 λ_{max} を中心に $\pm 10\text{ cm}^{-1}$ の範囲の吸収面積をAとしてそれぞれの面積を求める。

この値とフィルム厚み（樹脂層厚み）Dから、 $\alpha = 3A \div D$ により、 α を算出する。

【0019】

上記式（I） $3600\text{ cm}^{-1} \sim 3800\text{ cm}^{-1}$ はO-H伸縮振動が $3650 \sim 3590\text{ cm}^{-1}$ であり、水酸化マグネシウムのO-H伸縮振動が 3698 cm^{-1} 、水酸化カルシウムのO-H伸縮振動が 3643 cm^{-1} である。従って、このAのピーク面積は水の量と金属酸化物が吸水して不可逆的に金属水酸化物に変化した化合物の水酸基量の合計であり、結果的に吸水量を見積もることができる。

FT-IRスペクトルのピーク面積はフィルム厚みに依存するため厚みで規格化することで式（I）により、測定時点での樹脂組成物中の吸水量を見積もることができる。

【0020】

上記式（II）は、系中に含まれる吸水活性のある金属酸化物の量を意味している。具体的には $2.5X/100$ が系中に導入された金属酸化物の吸水活性を示しており、 α の値が失活量を表す指標となる。吸水活性から失活量を減算した値、即ち、 $2.5X/100 - \alpha$ 値が0.05以上であることが十分に吸水可能であることを意味している。

$2.5X/100 - \alpha$ 値が0.05以下であると、高温多湿下では、発光素子の必要特性を満たさないことがわかった。

このことから、吸水フィラーが測定時点以降、どれだけ吸水能力があるのかが判定できる。

【0021】

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。

【0022】

このため、以下、樹脂組成物を接着剤層と称して説明する。

接着剤層としては、硬化性成分を含むものからなる。

これらの硬化性成分を硬化させる目的で各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、 $3 \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ が好ましく、 $10 \sim 50\text{ }\mu\text{m}$ がより好ましい。

【0023】

（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。このようなバインダー樹脂は質量平均分子量が5,000以上であることが好ましく、特に1～3万であることがより好ましい。質量平均分子量が5,000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。ま

10

20

30

40

50

た、フロー性が適度なため配線の回路充填性が確保できる。なお、本発明において、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、バインダー樹脂のガラス転移温度 (T_g) は、 $-20 \sim 80$ が好ましく、 $0 \sim 60$ がより好ましい。

【0024】

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、ポリエステル樹脂、フェノキシ樹脂が好ましい。

ポリエステル系ポリマーは、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ポリマーである。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。

【0025】

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、ピフェニル骨格、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。

【0026】

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)42,600、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。

【0027】

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)で全樹脂組成物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。

【0028】

(硬化成分)

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、シリコーン樹脂、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。

10

20

30

40

50

【0029】

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、ピフェノールのジグリシジリエーテル化物、ピフェニルアラリキル型のエポキシ樹脂、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。

【0030】

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）、ピフェニルアラリキル型のエポキシ樹脂がより好ましく、ビスフェノール型エポキシ樹脂が特に好ましい。なお、ビスフェノール型エポキシ樹脂には、上記のビスフェノールA型エポキシ樹脂以外に、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、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂が知られており、これらが好ましいが、なかでもビスフェノールA型エポキシ樹脂が好ましい。

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

【0031】

硬化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。

【0032】

（硬化剤）

エポキシ樹脂の硬化剤としては、例えば、フェノール系硬化剤（樹脂）が好ましい。

フェノール系硬化剤（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、ピ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50～300g/eqが好ましく、95～240g/eqがより好ましい。

【0033】

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、フェノールピフェニレン樹脂、あるいはこれらの変性物等が好ましく用いられる。

【0034】

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

10

20

30

40

50

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。

【0035】

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。

硬化剤の含有量は、エポキシ樹脂に対する水酸基当量が0.5～2が好ましく、0.8～1.2がより好ましい。

【0036】

（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。

【0037】

（吸水フィラー）

接着剤層中の水分低減、低透湿とするために吸水フィラーを含有する。

本発明では吸水フィラーとして金属酸化物を使用する。金属酸化物は特に限定されず、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（MgO）、酸化カルシウム（CaO）、酸化アルミニウム（Al₂O₃）、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、酸化カルシウム、酸化アルミニウムが好ましく、酸化マグネシウム、酸化カルシウムがより好ましい。吸水フィラーの平均粒径は0.1～10μmの範囲の粒子であることが好ましく、より好ましくは0.5～5μmであることが好ましい。平均粒径が0.1μm以下だと、表面積が非常に大きいことから吸水活性が高すぎ、フィルム作製中に失活してしまう可能性が高くなる。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、吸水フィラーの吸水能が得られない等の問題が生じることがある。

吸水フィラーの含有量は、樹脂組成物の全固形分（不揮発成分）の5質量%以上50質量%未満であり、10質量%以上40質量%以下が好ましい。

【0038】

（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-グリシドキシブ

10

20

30

40

50

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、バインダー樹脂１００質量部に対して０．０５～１００質量部が好ましく、０．１～１０質量部がより好ましい。

【００３９】

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。

【００４０】

< 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。

【００４１】

剥離シートの表面張力は、４０ｍＮ／ｍ以下であることが好ましく、３５ｍＮ／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ー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、０．３Ｎ／２０ｍｍ以下であることが好ましく、より好ましくは０．２Ｎ／２０ｍｍである。剥離力の下限に特に制限はないが、０．００５Ｎ／２０ｍｍ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。

【００４２】

剥離シートの膜厚は、通常は５～３００μｍ、好ましくは１０～２００μｍ、特に好ましくは２０～１００μｍ程度である。

【００４３】

< 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。

なお、吸水フィラーを含有する場合、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ＥＬ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ＥＬ素子の発光機能を低下させる問題が生じる。

【００４４】

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

10

20

30

40

50

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。

【0045】

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。

【0046】

<有機EL素子、有機ELパネル、有機発光装置>

本発明の有機EL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EL素子の好ましい態様を図2に示す。図2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EL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2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、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EL素子に密着して配設されている。なお、本発明の有機EL素子の構成は上記態様に限定されるものではなく、有機EL素子として機能しう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EL素子に包含される。

本発明の有機EL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。

【0047】

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】

【0048】

実施例1

1) 発光素子の作製

下記ポリエステル樹脂100質量部に対し、下記ビスフェノールA型エポキシ樹脂43質量部、下記ビスフェニル型フェノール57質量部を配合した。この樹脂混合物に、下記促進剤を1質量部、吸水フィラーとして酸化マグネシウムを50質量部の割合で配合して、樹脂組成物Aを作製した。

【0049】

ポリエステル樹脂

ガラス転移温度(T_g): 50、質量平均分子量: 20,000

ビスフェノールA型エポキシ樹脂

エポキシ当量: 170~190 g/eq

粘度: 20000 mPa·s

ビスフェニル型フェノール

ビスフェニルザイロック型フェノール樹脂、

水酸基当量: 201~216 g/eq、軟化点80

促進剤

イミダゾール系硬化促進剤

酸化マグネシウム

平均粒子径0.5 μm

【0050】

この樹脂組成物Aを膜厚25 μmのポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムからなるセパレータにバーコート法により塗工し、厚みが20 μmのフィルムを作製した。

小型加圧式真空ラミナーター（ニチゴーモートン製モデルV - 130）を用い、80、0.1 MPa、30秒の条件で、有機EL層に加熱圧着した。さらに、100で3時間、空气中で加熱キュアして、発光素子（1A）を作製した。

得られた発光素子（1A）に対し、以下のようにして、有機EL素子が直接貼合されていない部分のFT - IRを透過法で測定し、ピーク面積Aを求め、フィルム厚みDより α を導いた。

また、加熱キュア後の発光素子（1A）を分解し、上記の貼合したフィルム部分を削り取って、下記のようにして、加熱処理後のフィルム部分の残渣量を測定した。

【0051】

〔FT - IRスペクトルのピーク面積Aの測定〕

フーリエ変換赤外分光光度計（製品名Nicolet 6700、サーモフィッシャーサイエンティフィック製）を使用し、上記部分を乳鉢で粉碎し、KBrペレットにして測定試料を調合し、透過光にて赤外線吸収スペクトルを測定した。

得られた透過スペクトル（吸光度 - 波数での波長）上で、 $3600\text{ cm}^{-1} \sim 3800\text{ cm}^{-1}$ における最大の吸収波長 λ_{max} を中心に $\pm 10\text{ cm}^{-1}$ の範囲の吸収面積をAとして面積を求めた。

この値とフィルム厚みDから、 $\alpha = 3A \div D$ により、 α を算出した。

【0052】

〔残渣量の測定〕

削り取った封止の樹脂組成物から、これを約1gサンプリングして、正確な質量（g1）を測定した後、これを、正確な質量がわかっている白金坩堝と蓋を用意し、この白金坩堝に加えて蓋をし、加熱炉にて800で2時間加熱し、有機成分を燃焼分解した。

加熱後、これを加熱炉から取り出し、室温まで冷却した後、蓋が付いた状態で白金坩堝の質量を正確に測定し、この全体の質量から白金坩堝と蓋の質量を差し引くことで封止の樹脂組成物に基づく残渣量（g2）を求め、 $(g2 \div g1) \times 100$ で封止の樹脂組成物残渣率（d%）を求め、この値を残存量とした。なお、この残存量は金属酸化物の量である。

【0053】

また、接着信頼性試験として、上記防湿膜用封止フィルムの剪断接着力、発光素子（1A）の発光特性を以下のようにして評価した。

【0054】

〔防湿膜用封止フィルムの剪断接着力〕

基板に挟まれた上記発光素子のうち、有機EL層が存在しない部分（ベゼルと呼ぶ）を使用して、このベゼル部を縦5mm×横5mmに切断した。

このベゼル部を用いてボンドテスター（DAGE社、#4000）にて、ステージ温度100、ヘッド高さ（接着層厚み+5） μm 、速度50 $\mu\text{m}/\text{sec}$ における剪断接着力を測定した。

【0055】

〔発光素子の発光特性〕

発光素子に電気印加し、ダークスポットの発生の程度を観察した。

【0056】

実施例2

実施例1で作製した発光素子（1A）を85 / 85%RHの条件で200時間放置し、実施例1と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例1と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0057】

実施例3

実施例1で作製した発光素子（1A）を85 / 85%RHの条件で600時間放置し、実施例1と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 5 8 】

実施例 4

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、用いた樹脂組成物 A を用い、フィルム厚みを $30\ \mu\text{m}$ にした以外は実施例 1 と同様に発光素子 (4 A) を作製した。

この発光素子 (4 A) を実施例 1 と同様にして、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 5 9 】

実施例 5

実施例 4 で作製した発光素子 (4 A) を $85 / 85\% \text{RH}$ の条件で 200 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 0 】

実施例 6

実施例 4 で作製した発光素子 (4 A) を $85 / 85\% \text{RH}$ の条件で 600 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 1 】

実施例 7

1) 発光素子の作製

実施例 1 で使用したポリエステル樹脂 100 質量部に対し、下記ビフェニル型エポキシ樹脂 50 質量部、実施例 1 で使用したビフェニル型フェノール 50 質量部を配合した。この樹脂混合物に、実施例 1 で使用した促進剤を 1 質量部、吸水フィラーとして酸化マグネシウムを 50 質量部の比率で配合して、樹脂組成物 B を作製した。

【 0 0 6 2 】

ビフェニル型エポキシ樹脂

ビフェニルアラリキル型エポキシ樹脂

水酸基当量 : $270 \sim 300\ \text{g / eq}$ 、軟化点 60

【 0 0 6 3 】

この樹脂組成物 B を用い、実施例 1 と同様に発光素子 (7 A) を作製した。

この発光素子 (7 A) を実施例 1 と同様にして、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 4 】

実施例 8

実施例 4 で作製した発光素子 (7 A) を $85 / 85\% \text{RH}$ の条件で 200 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 5 】

実施例 9

実施例 7 で作製した発光素子 (7 A) を $85 / 85\% \text{RH}$ の条件で 600 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 6 】

実施例 1 0

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、酸化マグネシウムを 1 0 . 5 質量部使用した以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 C を作製した。

この樹脂組成物 C を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (1 0 A) を作製し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

10

【 0 0 6 7 】

実施例 1 1

実施例 7 で作製した発光素子 (1 0 A) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 2 0 0 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 8 】

実施例 1 2

実施例 7 で作製した発光素子 (1 0 A) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 6 0 0 時間放置し、実施例 1 と同様の手段で α と残渣量を求めた。

20

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 6 9 】

実施例 1 3

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、酸化マグネシウムを 8 5 . 7 質量部使用した以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 D を作製した。

この樹脂組成物 D を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (1 3 A) を作製し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

30

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 7 0 】

実施例 1 4

実施例 1 3 で作製した発光素子 (1 3 A) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 2 0 0 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 7 1 】

実施例 1 5

40

実施例 1 3 で作製した発光素子 (1 3 A) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 6 0 0 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 7 2 】

実施例 1 6

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、吸水フィラーを酸化カルシウム 8 5 . 7 質量部に変更した以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 E を作製した。

この樹脂組成物 E を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (1 6 A) を作製し、実施例

50

1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0073】

実施例 17

実施例 16 で作製した発光素子 (16A) を 85 / 85 % RH の条件で 200 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0074】

実施例 18

実施例 13 で作製した発光素子 (16A) を 85 / 85 % RH の条件で 600 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0075】

比較例 1

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、吸水フィラーを使用しなかった以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 F を作製した。

この樹脂組成物 F を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (1C) を作製し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0076】

比較例 2

比較例 1 で作製した発光素子 (1C) を 85 / 85 % RH の条件で 200 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0077】

比較例 3

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、酸化マグネシウムを 5.1 質量部使用した以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 G を作製した。

この樹脂組成物 G を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (3C) を作製し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0078】

比較例 4

比較例 3 で作製した発光素子 (3C) を 85 / 85 % RH の条件で 200 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【0079】

比較例 5

1) 発光素子の作製

実施例 1 において、酸化マグネシウムを 245 質量部使用した以外は実施例 1 と同様にして、樹脂組成物 H を作製した。

この樹脂組成物 H を用い実施例 1 と同様にして、発光素子 (5 C) を作製し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 8 0 】

比較例 6

比較例 5 で作製した発光素子 (5 C) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 2 0 0 時間放置し、実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 8 1 】

比較例 7

実施例 5 で作製した発光素子 (5 C) を 8 5 / 8 5 % R H の条件で 1 0 0 0 時間放置後に実施例 1 と同様の方法で α と残渣量を求めた。

また、実施例 1 と同様にして、防湿膜用封止フィルムの剪断接着力と素子の発光特性を評価した。

【 0 0 8 2 】

下記表 1、2 に樹脂組成物の組成と含有量および樹脂組成物を塗工して形成されたフィルム厚みを示す。

また、上記の評価の結果をまとめて下記表 3 および 4 に示す。

【 0 0 8 3 】

【 表 1 】

	吸水フィラー		ベース樹脂		エポキシ樹脂		硬化剤		促進剤		フィルム厚み μm
	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	
実施例 1	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 2	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 3	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 4	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	30
実施例 5	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	30
実施例 6	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	30
実施例 7	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BPh	20%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 8	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BPh	20%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 9	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BPh	20%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 10	MgO	5%	ポリエステル系	47%	BisPhOHA	20%	ビフェニル型フェノール	27%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 11	MgO	5%	ポリエステル系	47%	BisPhOHA	20%	ビフェニル型フェノール	27%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 12	MgO	5%	ポリエステル系	47%	BisPhOHA	20%	ビフェニル型フェノール	27%	イミダゾール	0.40%	20
実施例 13	MgO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20
実施例 14	MgO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20
実施例 15	MgO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20
実施例 16	CaO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20
実施例 17	CaO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20
実施例 18	CaO	30%	ポリエステル系	35%	BisPhOHA	15%	ビフェニル型フェノール	20%	イミダゾール	0.35%	20

【 0 0 8 4 】

【 表 2 】

	吸水フィラー		ベース樹脂		エポキシ樹脂		硬化剤		促進剤		フィルム厚み μm
	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	
比較例 1	MgO	0%	ポリエステル系	50%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例 2	MgO	0%	ポリエステル系	50%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例 3	MgO	2.5%	ポリエステル系	49%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例 4	MgO	2.5%	ポリエステル系	49%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例 5	MgO	55%	ポリエステル系	22%	BisPhOHA	10%	ビフェニル型フェノール	12%	イミダゾール	0.20%	20
比較例 6	MgO	55%	ポリエステル系	22%	BisPhOHA	10%	ビフェニル型フェノール	12%	イミダゾール	0.20%	20
比較例 7	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20

【 0 0 8 5 】

なお、表 1、2 において、B i s P h O H A はビスフェノール A 型エポキシ樹脂を表し、B P h はビフェニル型エポキシ樹脂を表す。

【表 3】

	吸水フィルター		残渣量 d%	接着力 Mpa	FT-IR α	$\alpha=3A/D$	$2.5X/100-\alpha$	ダークスポット
	種類	量%						
実施例1	MgO	20%	20.1%	14.7	1.50	0.2250	0.277500	ダークスポットを生じなかった
実施例2	MgO	20%	19.9%	13.8	1.90	0.2850	0.212500	ダークスポットを生じなかった
実施例3	MgO	20%	19.5%	12.7	2.50	0.3750	0.112500	ダークスポットを生じなかった
実施例4	MgO	20%	20.3%	15	2.10	0.2100	0.297500	ダークスポットを生じなかった
実施例5	MgO	20%	19.7%	13.2	3.10	0.3100	0.182500	ダークスポットを生じなかった
実施例6	MgO	20%	19.5%	13.1	3.80	0.3800	0.107500	ダークスポットを生じなかった
実施例7	MgO	20%	20.3%	10.5	1.40	0.2100	0.297500	ダークスポットを生じなかった
実施例8	MgO	20%	19.9%	8.7	1.90	0.2850	0.212500	ダークスポットを生じなかった
実施例9	MgO	20%	19.8%	7.5	2.30	0.3450	0.150000	ダークスポットを生じなかった
実施例10	MgO	5%	4.99%	>20	0.30	0.3450	0.007975	ダークスポットを生じなかった
実施例11	MgO	5%	4.95%	>20	0.35	0.0525	0.071250	ダークスポットを生じなかった
実施例12	MgO	5%	4.94%	>20	0.38	0.0570	0.066500	ダークスポットを生じなかった
実施例13	MgO	30%	30.1%	8.7	2.30	0.3450	0.407500	ダークスポットを生じなかった
実施例14	MgO	30%	29.9%	6.5	2.80	0.4200	0.327500	ダークスポットを生じなかった
実施例15	MgO	30%	29.5%	4.9	3.50	0.5250	0.212500	ダークスポットを生じなかった
実施例16	CaO	30%	29.8%	8.9	2.50	0.3750	0.370000	ダークスポットを生じなかった
実施例17	CaO	30%	29.6%	7.1	2.90	0.4350	0.305000	ダークスポットを生じなかった
実施例18	CaO	30%	29.4%	6.4	3.40	0.5100	0.225000	ダークスポットを生じなかった

【0086】

【表 4】

	吸水フィルター		残渣量 d%	接着力 Mpa	FT-IR α	$\alpha=3A/D$	$2.5X/100-\alpha$	ダークスポット
	種類	量%						
比較例1	-	0%	0.0%	>20	0.10	0.0150	0.0	全面にダークスポットを生じた
比較例2	-	0%	0.0%	>20	0.15	0.0225	0.0	全面にダークスポットを生じた
比較例3	MgO	2.5%	2.4%	>20	0.20	0.0300	0.03000	周囲にダークスポットを生じた
比較例4	MgO	2.5%	2.3%	>20	0.30	0.0450	0.01275	全面にダークスポットを生じた
比較例5	MgO	55%	54.8%	0.9	4.50	0.6750	0.69500	周囲にダークスポットを生じた
比較例6	MgO	55%	54.8%	0.7	4.80	0.7200	0.64500	接着不良のため試験中止
比較例7	MgO	20%	20.1%	14.7	3.10	0.4650	0.03750	周囲にダークスポットを生じた

【0087】

上記表 3、4 から、本発明の実施例 1 ~ 18 はいずれもダークスポットを生じておらず、本発明における式 (I)、(II) の関係を満たすことにより、発光特性を大幅に改善できることがわかる。しかも、例えば実施例 2、3 は実施例 1 の発光素子は高温高湿で 200 時間、600 時間に保存したものであるが、発光特性の劣化は認められなかった。これに対し、比較例 3 は比較例 2 を、比較例 5、6 は比較例 5 を高温高湿下に保存したものであるが、発光特性がさらに悪化していることがわかる。

【符号の説明】

【0088】

- 1 接着フィルム（接着剤層）
- 11 第 1 の接着剤層
- 12 第 2 の接着剤層
- 30 封止された有機 EL 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

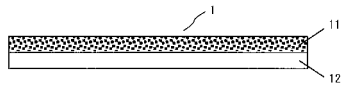
10

20

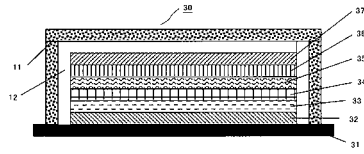
30

40

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

- (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
- (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 齋藤 恵司
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 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
- F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC23 CC27 EE55 FF14

专利名称(译)	树脂组合物，粘合剂膜，有机电致发光元件，有机电致发光面板和有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2013214367A	公开(公告)日	2013-10-17
申请号	JP2012083113	申请日	2012-03-30
申请(专利权)人(译)	古河电气有限公司		
[标]发明人	浅沼匠 三枝哲也 山川貴紀 中村俊光 鈴木俊宏 齋藤恵司 福田秀人 服部聡		
发明人	浅沼 匠 三枝 哲也 山川 貴紀 中村 俊光 鈴木 俊宏 齋藤 恵司 福田 秀人 服部 聡		
IPC分类号	H05B33/04 H01L51/50		
FI分类号	H05B33/04 H05B33/14.A		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/CC27 3K107/EE55 3K107/FF14		
代理人(译)	Toshizo饭 宫前NaoYu		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

树脂组合物，粘合膜，有机EL元件，有机EL面板和有机EL发光能够通过密封而在长时间内保持稳定的发光特性而不会对有机EL元件造成不利影响。提供设备。包含具有环氧基的化合物或树脂和金属氧化物的吸水填料的树脂组合物，其中，树脂组合物中所含的金属氧化物的吸水填料的含量X为总固体成分为5质量%以上且小于50质量%，X为由红外线吸收光谱的下述式（I）表示的峰面积A，其为通过涂布树脂组合物而得到的膜。相对于D的厚度D（ μm ），满足下式（II）的树脂组合物，粘合膜，有机EL元件，有机EL面板和有机EL发光元件。公式（I） $\alpha = 3A / D$ 式（II） $2.5X - \alpha \geq 0.05$ 在公式中，A表示以3600至3800 cm^{-1} 的最高峰为中心的 $\pm 10 \text{ cm}^{-1}$ 范围内的面积。[选择图]无

	吸水フイラー		ベース樹脂		エポキシ樹脂		硬化剤		促進剤		フィルム厚み μm
	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	
比較例1	MgO	0%	ポリエステル系	50%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例2	MgO	0%	ポリエステル系	50%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例3	MgO	2.5%	ポリエステル系	48%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例4	MgO	2.5%	ポリエステル系	48%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20
比較例5	MgO	55%	ポリエステル系	22%	BisPhOHA	10%	ビフェニル型フェノール	12%	イミダゾール	0.20%	20
比較例6	MgO	55%	ポリエステル系	22%	BisPhOHA	10%	ビフェニル型フェノール	12%	イミダゾール	0.20%	20
比較例7	MgO	20%	ポリエステル系	40%	BisPhOHA	17%	ビフェニル型フェノール	22%	イミダゾール	0.40%	20