

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02018/052006

発行日 令和1年6月27日(2019.6.27)

(43) 国際公開日 平成30年3月22日(2018.3.22)

(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 4J036
H01L 27/32 (2006.01)	H01L 27/32	5C094
C08G 59/68 (2006.01)	C08G 59/68	
G09F 9/30 (2006.01)	G09F 9/30	365
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 23 頁)		

出願番号	特願2017-550263 (P2017-550263)	(71) 出願人	000002174
(21) 国際出願番号	PCT/JP2017/032993		積水化学工業株式会社
(22) 国際出願日	平成29年9月13日(2017.9.13)		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2016-181692 (P2016-181692)	(74) 代理人	110000914
(32) 優先日	平成28年9月16日(2016.9.16)		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	渡邊 康雄
			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 EE48
			EE49 EE53 FF02 FF14 FF15
			4J036 AA01 AD08 AF06 AJ09 FA03
			FA05 FA13 GA02 GA03 HA02
			JA07 KA03
			5C094 AA38 BA27 FB01 FB02 FB20
			JA01 JA08
			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用封止剤

(57) 【要約】

本発明は、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤を提供することを目的とする。

本発明は、硬化性樹脂と重合開始剤と吸水性フィラーとを含有し、前記吸水性フィラーは、平均一次粒子径が $5\mu\text{m}$ 以下であり、比重が $3.3\text{g}/\text{cm}^3$ 以下である有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤である。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

硬化性樹脂と重合開始剤と吸水性フィラーとを含有し、
前記吸水性フィラーは、平均一次粒子径が $5\ \mu\text{m}$ 以下であり、比重が $3.3\ \text{g}/\text{cm}^3$ 以下である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤。

【請求項 2】

吸水性フィラーは、アルカリ土類金属の酸化物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用封止剤。

【請求項 3】

吸水性フィラーは、酸化カルシウムであることを特徴とする請求項 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤。

【請求項 4】

吸水性フィラーは、平均比表面積が $5\ \text{m}^2/\text{g}$ 以上 $20\ \text{m}^2/\text{g}$ 以下であ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用封止剤。

【請求項 5】

吸水性フィラーの含有量は、硬化性樹脂 100 重量部に対して、5 重量部以上 60 重量部以下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用封止剤。

【請求項 6】

重合開始剤は、光重合開始剤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用封止剤。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤に関する。

【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。

【0003】

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。

【0004】

近年、有機発光材料層から発せられた光を、発光素子を形成した基板面側から取り出すボトムエミッション方式の有機 EL 表示素子に代わって、有機発光層の上面側から光を取り出すトップエミッション方式の有機 EL 表示素子が注目されている。この方式は、開口率が高く、低電圧駆動となることから、長寿命化に有利であるという利点がある。このようなトップエミッション方式の有機 EL 表示素子では、発光層の上面側が透明であることが必要であることから、発光素子の上面側に透明な封止樹脂を介してガラス等の透明防湿性

10

20

30

40

50

基材を積層することにより封止している（例えば、特許文献 2 参照）。

しかしながら、このようなトップエミッション方式の有機 EL 表示素子では、光の取り出し方向を遮蔽してしまわないようにするために乾燥剤を配置するスペースがなく、十分な防湿効果が得られにくく寿命が短くなるという問題があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】特開 2007 - 115692 号公報

【特許文献 2】特開 2009 - 051980 号公報

【発明の概要】

10

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤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】

【0007】

本発明は、硬化性樹脂と重合開始剤と吸水性フィラーとを含有し、上記吸水性フィラーは、平均一次粒子径が $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、比重が 3.3 g/cm^3 以下である有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤である。

以下に本発明を詳述する。

20

【0008】

本発明者は、有機 EL 表示素子用封止剤のバリア性（透湿防止性）を向上させるため、酸化カルシウム等の吸水性フィラーを添加することを試みた。しかしながら、市販の吸水性フィラーを有機 EL 表示素子用封止剤に多く添加した場合、バリア性を向上させることはできるものの、膨張率が高いため水分を吸収することでパネル剥がれ等の不良を引き起こすという問題があった。

そこで、本発明者は更に鋭意検討した結果、平均一次粒子径及び比重がそれぞれ特定の範囲である吸水性フィラーを用いることで、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機 EL 表示素子用封止剤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。

30

【0009】

本発明の有機 EL 表示素子用封止剤は、平均一次粒子径が $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、比重が 3.3 g/cm^3 以下である吸水性フィラー（以下、「本発明にかかる吸水性フィラー」ともいう）を含有する。本発明にかかる吸水性フィラーを含有することにより、本発明の有機 EL 表示素子用封止剤は、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できるものとなる。

【0010】

本発明にかかる吸水性フィラーを含有することにより、パネル剥がれを抑制できる理由としては以下のことが考えられる。

即ち、本発明にかかる吸水性フィラーは、平均一次粒子径及び比重が上述した範囲であり、同程度の平均一次粒子径を有する一般的な吸水性フィラーに比べて比重が小さく、高い空隙率を有するものと考えられる。従って、吸水した際、内部の空隙が埋められることで外側への膨張が抑えられ、その結果、高い吸水性能による優れたバリア性を発揮しつつ、パネル剥がれを抑制できるものと考えられる。

40

【0011】

本発明にかかる吸水性フィラーの平均一次粒子径の上限は $5\text{ }\mu\text{m}$ である。本発明にかかる吸水性フィラーの平均一次粒子径が $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることにより、得られる有機 EL 表示素子用封止剤が優れたバリア性とパネル剥がれの抑制とを両立する効果に優れるものとなる。本発明にかかる吸水性フィラーの平均一次粒子径の好ましい上限は $3.5\text{ }\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $3\text{ }\mu\text{m}$ である。

50

また、本発明にかかる吸水性フィラーの平均一次粒子径の下限に特に制限はないが、実質的な下限は $0.05 \mu\text{m}$ であり、 $0.5 \mu\text{m}$ 以上のものが入手がより容易である。

なお、上記「平均一次粒子径」は、動的光散乱式粒子径測定装置（大塚電子社製、「ELS Z-1000S」）等により測定することができる。

【0012】

本発明にかかる吸水性フィラーの比重の上限は 3.3 g/cm^3 である。本発明にかかる吸水性フィラーの比重が 3.3 g/cm^3 以下であることにより、得られる有機EL表示素子用封止剤が優れたバリア性とパネル剥がれの抑制とを両立する効果に優れるものとなる。本発明にかかる吸水性フィラーの比重の好ましい上限は 3.0 g/cm^3 である。

また、本発明にかかる吸水性フィラーの比重の下限に特に制限はないが、実質的な下限は 1.5 g/cm^3 である。

なお、上記「比重」は、JIS Z 8807 に準じた方法により測定される値を意味する。

【0013】

本発明にかかる吸水性フィラーの平均比表面積の好ましい下限は $5 \text{ m}^2/\text{g}$ 、好ましい上限は $20 \text{ m}^2/\text{g}$ である。本発明にかかる吸水性フィラーの平均比表面積がこの範囲であることにより、得られる有機EL表示素子用封止剤が優れたバリア性とパネル剥がれの抑制とを両立する効果により優れるものとなる。本発明にかかる吸水性フィラーの総表面積の平均比表面積のより好ましい下限は $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 、より好ましい上限は $18 \text{ m}^2/\text{g}$ である。

なお、上記「平均比表面積」は、比表面積測定装置（例えば、島津製作所社製、「ASAP-2000」等）で窒素ガスを用いたBET法により測定することができる。

【0014】

本発明にかかる吸水性フィラーの吸水率の好ましい下限は10重量%である。本発明にかかる吸水性フィラーの吸水率が10重量%以上であることにより、得られる有機EL表示素子用封止剤がバリア性により優れるものとなる。本発明にかかる吸水性フィラーの吸水率のより好ましい下限は20重量%である。

また、本発明にかかる吸水性フィラーの吸水率の好ましい上限は特にないが、実質的な上限は50重量%である。

なお、上記「吸水率」は、温度85℃、湿度85%の雰囲気下で24時間放置する高温高湿試験を行った場合における重量の変化率を意味する。具体的には、高温高湿試験（85℃ - 85%、24時間）前の重量を W_1 、高温高湿試験後の重量を W_2 とした場合、下記式（I）により算出される。

$$\text{吸水率（重量％）} = ((W_2 - W_1) / W_1) \times 100 \quad (\text{I})$$

【0015】

本発明にかかる吸水性フィラーを構成する材料としては、例えば、酸化カルシウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム等のアルカリ土類金属の酸化物、酸化マグネシウム、モレキュラーシーブ等が挙げられる。なかでも、吸水性の観点から、アルカリ土類金属の酸化物が好ましく、酸化カルシウムがより好ましい。

【0016】

本発明にかかる吸水性フィラーの含有量は、上記硬化性樹脂100重量部に対して、好ましい下限が5重量部、好ましい上限が60重量部である。本発明にかかる吸水性フィラーの含有量がこの範囲であることにより、得られる有機EL表示素子用封止剤がバリア性の向上とパネル剥がれの抑制とを両立する効果により優れるものとなる。本発明にかかる吸水性フィラーの含有量のより好ましい下限は10重量部、より好ましい上限は40重量部である。

【0017】

本発明の有機EL表示素子用封止剤は、接着性を向上させること等を目的として、本発明の目的を阻害しない範囲において、本発明にかかる吸水性フィラーに加えて、その他のフィラーを含有してもよい。

10

20

30

40

50

上記その他のフィラーとしては、例えば、シリカ、タルク、アルミナ等の無機フィラーや、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フィラー等が挙げられる。なかでも、タルクが好ましい。

【 0 0 1 8 】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、硬化性樹脂を含有する。

上記硬化性樹脂としては、エポキシ基、オキセタニル基、ビニルエーテル基等のカチオン重合性基を有するカチオン重合性化合物や、(メタ)アクリロイル基等のラジカル重合性基を有するラジカル重合性化合物が挙げられる。なかでも、カチオン重合性化合物が好ましく、エポキシ基を有するカチオン重合性化合物がより好ましい。

【 0 0 1 9 】

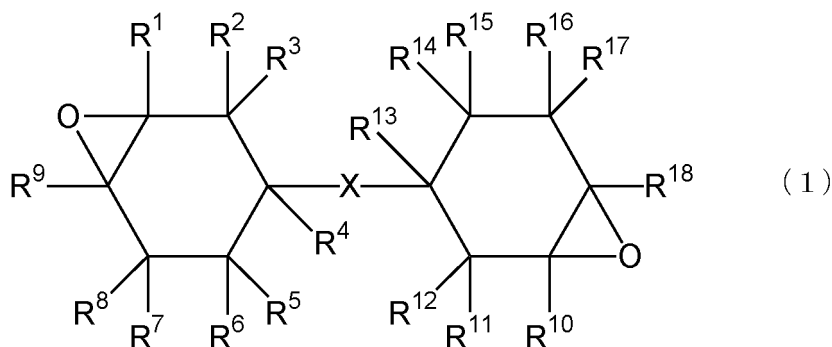
上記カチオン重合性化合物としては、粘度調整が容易である等の観点から、ビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂、ノボラック骨格を有するエポキシ樹脂、ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂、及び、ジシクロペンタジエン骨格を有するエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも 1 種のエポキシ樹脂が好ましく、ビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂がより好ましく、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂が更に好ましい。

【 0 0 2 0 】

また、本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、アウトガスの発生を抑制する観点から、上記カチオン重合性化合物として、下記式 (1) で表される化合物及び / 又は下記式 (2) で表される化合物を含有することが好ましい。

【 0 0 2 1 】

【 化 1 】

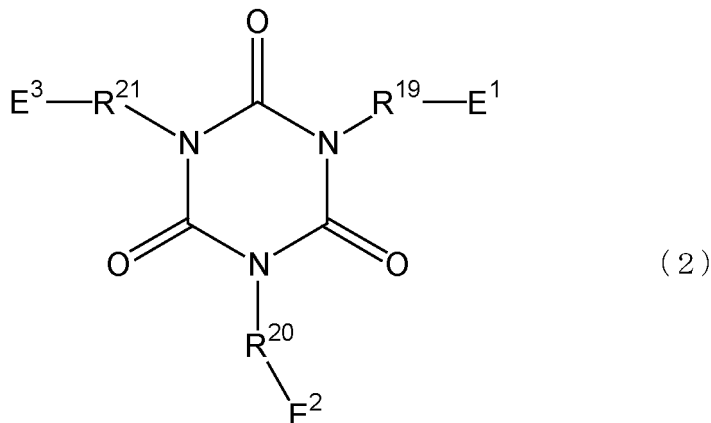


【 0 0 2 2 】

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。X は、結合手、酸素原子、炭素数 1 ~ 5 のアルキレン基、オキシカルボニル基、炭素数 2 ~ 5 のアルキレンオキシカルボニル基、又は、第二級アミノ基である。

【 0 0 2 3 】

【 化 2 】

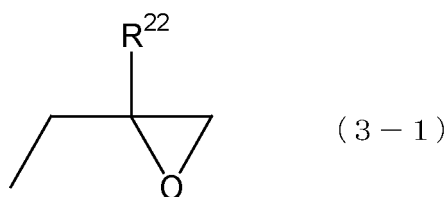


【 0 0 2 4 】

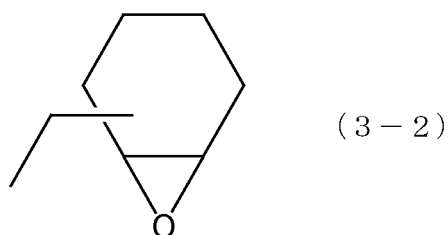
式(2)中、 $R^{19} \sim R^{21}$ は、直鎖状又は分岐鎖状の炭素数2～10のアルキレン基であり、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。 $E^1 \sim E^3$ は、それぞれ独立して下記式(3-1)又は下記式(3-2)で表される有機基を表す。

【0025】

【化3】



10



20

【0026】

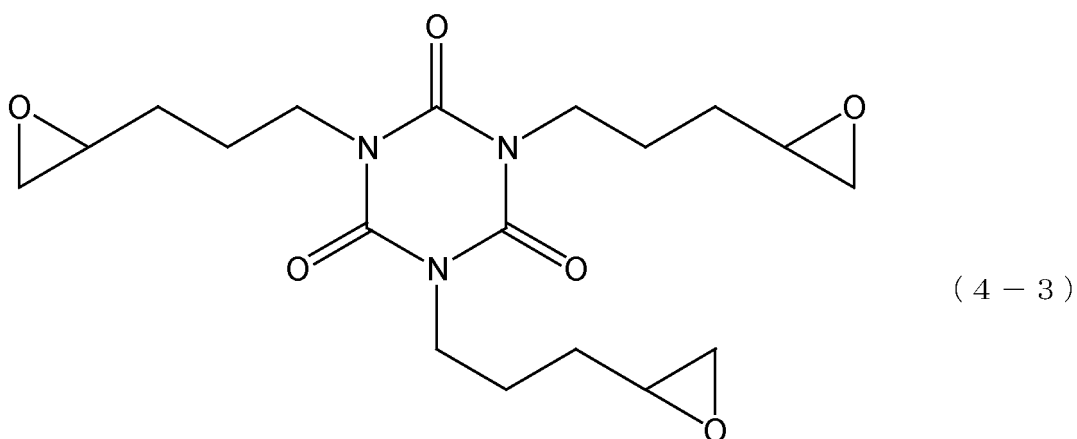
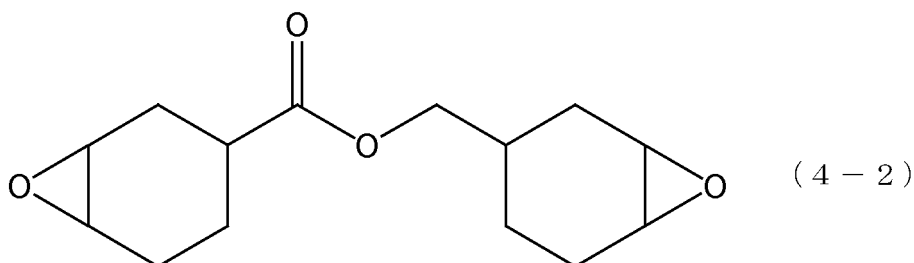
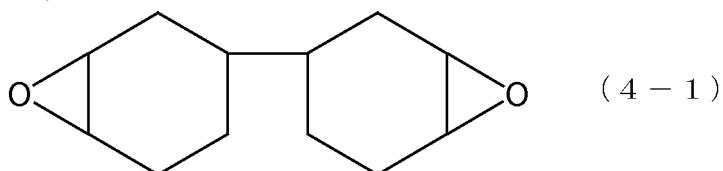
式(3-1)中、 R^{22} は、水素原子又はメチル基である。

【0027】

なかでも、上記カチオン重合性化合物として、下記式(4-1)で表される化合物、下記式(4-2)で表される化合物、及び、下記式(4-3)で表される化合物からなる群より選択される少なくとも1種を含有することが好ましい。

【0028】

【化 4】



10

20

【0029】

上記式(1)で表される化合物のうち市販されているものとしては、例えば、セロキサイド8000、セロキサイド2021P(いずれもダイセル社製)等が挙げられ、上記式(2)で表される化合物のうち市販されているものとしては、例えば、TEPIC-VL(日産化学社製)等が挙げられる。

30

【0030】

上記ラジカル重合性化合物としては、(メタ)アクリル化合物が好適に用いられる。
 上記(メタ)アクリル化合物としては、例えば、(メタ)アクリル酸とエポキシ化合物とを反応させることにより得られるエポキシ(メタ)アクリレート、(メタ)アクリル酸に水酸基を有する化合物を反応させることにより得られる(メタ)アクリル酸エステル化合物、イソシアネート化合物に水酸基を有する(メタ)アクリル酸誘導体を反応させることにより得られるウレタン(メタ)アクリレート等が挙げられる。なかでも、エポキシ(メタ)アクリレートが好ましい。

40

なお、本明細書において、上記「(メタ)アクリル」とは、アクリル又はメタクリルを示し、上記「(メタ)アクリレート」とは、アクリレート又はメタクリレートを示し、上記「エポキシ(メタ)アクリレート」とは、エポキシ樹脂中の全てのエポキシ基を(メタ)アクリル酸と反応させた化合物のことを表す。

【0031】

上記エポキシ(メタ)アクリレートのうち市販されているものとしては、例えば、EBECRYL 860、EBECRYL 3200、EBECRYL 3201、EBECRYL 3412、EBECRYL 3600、EBECRYL 3700、EBECRYL 3701、EBECRYL 3702、EBECRYL 3703、EBECRYL 3800、EBECRYL 6040、EBECRYLRDX 63182(いずれもダイセル・オルネクス社製

50

)、EA-1010、EA-1020、EA-5323、EA-5520、EA-CHD、EMA-1020(いずれも新中村化学工業社製)、エポキシエステルM-600A、エポキシエステル40EM、エポキシエステル70PA、エポキシエステル200PA、エポキシエステル80MFA、エポキシエステル3002M、エポキシエステル3002A、エポキシエステル1600A、エポキシエステル3000M、エポキシエステル3000A、エポキシエステル200EA、エポキシエステル400EA(いずれも共栄化学社製)、デナコールアクリレートDA-141、デナコールアクリレートDA-314、デナコールアクリレートDA-911(いずれもナガセケムテックス社製)等が挙げられる。

【0032】

10

本発明の有機EL表示素子用封止剤は、重合開始剤を含有する。

上記重合開始剤としては、光重合開始剤や熱重合開始剤等が挙げられる。なかでも、光重合開始剤が好ましい。

【0033】

上記光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光カチオン重合開始剤や、光照射によりラジカルを発生する光ラジカル重合開始剤等が挙げられる。なかでも、光カチオン重合開始剤が好ましい。

【0034】

上記光カチオン重合開始剤は、光照射によりプロトン酸又はルイス酸を発生するも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。

20

【0035】

上記光カチオン重合開始剤のうちイオン性光酸発生型のものとしては、例えば、アニオン部分が BF_4^- 、 PF_6^- 、 SbF_6^- 、又は、 $(\text{BX}_4)^-$ (但し、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)で構成される、芳香族スルホニウム塩、芳香族ヨードニウム塩、芳香族ジアゾニウム塩、芳香族アンモニウム塩、又は、(2,4-シクロペンタジエン-1-イル)((1-メチルエチル)ベンゼン)-Fe塩等が挙げられる。

【0036】

上記芳香族スルホニウム塩としては、例えば、ビス(4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビスヘキサフルオロホスフェート、ビス(4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビスヘキサフルオロアンチモネート、ビス(4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビステトラフルオロボレート、ビス(4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、ジフェニル-4-(フェニルチオ)フェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニル-4-(フェニルチオ)フェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニル-4-(フェニルチオ)フェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、ジフェニル-4-(フェニルチオ)フェニルスルホニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、トリフェニルスルホニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、ビス(4-(ジ(4-(2-ヒドロキシエトキシ))フェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビスヘキサフルオロホスフェート、ビス(4-(ジ(4-(2-ヒドロキシエトキシ))フェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビスヘキサフルオロアンチモネート、ビス(4-(ジ(4-(2-ヒドロキシエトキシ))フェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドビステトラフルオロボレート、ビス(4-(ジ(4-(2-ヒドロキシエトキシ))フェニルスルホニオ)フェニル)スルフィドテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート等が挙げられる。

30

40

【0037】

上記芳香族ヨードニウム塩としては、例えば、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホ

50

スフェート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニルヨードニウムテトラフルオロボレート、ジフェニルヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムテトラフルオロボレート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、4 - メチルフェニル - 4 - （1 - メチルエチル）フェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、4 - メチルフェニル - 4 - （1 - メチルエチル）フェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、4 - メチルフェニル - 4 - （1 - メチルエチル）フェニルヨードニウムテトラフルオロボレート、4 - メチルフェニル - 4 - （1 - メチルエチル）フェニルヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

10

【0038】

上記芳香族ジアゾニウム塩としては、例えば、フェニルジアゾニウムヘキサフルオロホスフェート、フェニルジアゾニウムヘキサフルオロアンチモネート、フェニルジアゾニウムテトラフルオロボレート、フェニルジアゾニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

【0039】

上記芳香族アンモニウム塩としては、例えば、1 - ベンジル - 2 - シアノピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、1 - ベンジル - 2 - シアノピリジニウムヘキサフルオロアンチモネート、1 - ベンジル - 2 - シアノピリジニウムテトラフルオロボレート、1 - ベンジル - 2 - シアノピリジニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、1 - （ナフチルメチル） - 2 - シアノピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、1 - （ナフチルメチル） - 2 - シアノピリジニウムヘキサフルオロアンチモネート、1 - （ナフチルメチル） - 2 - シアノピリジニウムテトラフルオロボレート、1 - （ナフチルメチル） - 2 - シアノピリジニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

20

【0040】

上記（2，4 - シクロペンタジエン - 1 - イル）（（1 - メチルエチル）ベンゼン） - Fe 塩としては、例えば、（2，4 - シクロペンタジエン - 1 - イル）（（1 - メチルエチル）ベンゼン） - Fe（II）ヘキサフルオロホスフェート、（2，4 - シクロペンタジエン - 1 - イル）（（1 - メチルエチル）ベンゼン） - Fe（II）ヘキサフルオロアンチモネート、（2，4 - シクロペンタジエン - 1 - イル）（（1 - メチルエチル）ベンゼン） - Fe（II）テトラフルオロボレート、（2，4 - シクロペンタジエン - 1 - イル）（（1 - メチルエチル）ベンゼン） - Fe（II）テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

30

【0041】

上記光カチオン重合開始剤のうち非イオン性光酸発生型のものとしては、例えば、ニトロベンジルエステル、スルホン酸誘導体、リン酸エステル、フェノールスルホン酸エステル、ジアゾナフトキノ、N - ヒドロキシイミドスルホナート等が挙げられる。

【0042】

上記光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、DTS - 200（みどり化学社製）、UVI 6990、UVI 6974（いずれもユニオンカーバイド社製）、SP - 150、SP - 170（いずれもADEKA社製）、FC - 508、FC - 512（いずれも3M社製）、IRGACURE 290（BASF社製）、PI 2074（ローディア社製）等が挙げられる。

40

【0043】

上記光ラジカル重合開始剤としては、例えば、ベンゾフェノン系化合物、アセトフェノン系化合物、アシルフォスフィンオキサイド系化合物、チタノセン系化合物、オキシムエステル系化合物、ベンゾインエーテル系化合物、ベンジル、チオキサントン等が挙げられる。

。

【0044】

50

上記光ラジカル重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、IRGACURE 184、IRGACURE 369、IRGACURE 379、IRGACURE 651、IRGACURE 819、IRGACURE 907、IRGACURE 2959、IRGACURE OXE01、ルシリンTPO（いずれもBASF社製）、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル（いずれも東京化成工業社製）等が挙げられる。

【0045】

上記熱重合開始剤としては、加熱によりプロトン酸又はルイス酸を発生する熱カチオン重合開始剤や、加熱によりラジカルを発生する熱ラジカル重合開始剤等が挙げられる。

【0046】

上記熱カチオン重合開始剤としては、 BF_4^- 、 PF_6^- 、 SbF_6^- 、又は、 $(\text{BX}_4)^-$ （ただし、Xは、少なくとも2つ以上のフッ素若しく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）を対アニオンとする、スルホニウム塩、ホスホニウム塩、第4級アンモニウム塩、ジアゾニウム塩、又は、ヨードニウム塩が好ましく、スルホニウム塩がより好ましい。

【0047】

上記スルホニウム塩としては、トリフェニルスルホニウム四フッ化ホウ素、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。

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4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テトラキス（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リフルオロメタンスルホン酸等が挙げられる。

【0048】

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、サンエイドSI-60、サンエイドSI-80、サンエイドSI-B3、サンエイドSI-B3A、サンエイドSI-B4（いずれも三新化学工業社製）、CXC-1612、CXC-1738、CXC-1821（いずれもKing Industries社製）等が挙げられる。

【0049】

上記熱ラジカル重合開始剤としては、過酸化物やアゾ化合物が挙げられ、市販されているものとしては、例えば、パーブチルO、パーヘキシルO、パーブチルPV（いずれも日油社製）、V-30、V-65、V-501、V-601、VPE-0201（いずれも和光純薬工業社製）等が挙げられる。

【0050】

上記重合開始剤の含有量は、上記硬化性樹脂100重量部に対して、好ましい下限が0.

10

20

30

40

50

1 重量部、好ましい上限が 10 重量部である。上記重合開始剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる有機 E L 表示素子用封止剤が硬化性、保存安定性、及び、バリア性により優れるものとなる。上記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。

【0051】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、熱硬化剤を含有してもよい。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、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。

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、セバシン酸ジヒドラジド、イソフタル酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、マロン酸ジヒドラジド等が挙げられる。

上記イミダゾール誘導体としては、例えば、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、N-(2-(2-メチル-1-イミダゾリル)エチル)尿素、2,4-ジアミノ-6-(2'-メチルイミダゾリル-(1'))-エチル-s-トリアジン、N,N'-ビス(2-メチル-1-イミダゾリルエチル)尿素、N,N'-(2-メチル-1-イミダゾリルエチル)-アジポアミド、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾ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、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。

【0052】

上記熱硬化剤のうち市販されているものとしては、例えば、SDH(日本ファインケム社製)、ADH(大塚化学社製)、アミキュアVDH、アミキュアVDH-J、アミキュアUDH(いずれも味の素ファインテクノ社製)等が挙げられる。

【0053】

上記熱硬化剤の含有量は、上記硬化性樹脂 100 重量部に対して、好ましい下限が 0.5 重量部、好ましい上限が 30 重量部である。上記熱硬化剤の含有量が 0.5 重量部以上であることにより、得られる有機 E L 表示素子用封止剤が熱硬化性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量が 30 重量部以下であることにより、得られる有機 E L 表示素子用封止剤が保存安定性及びバリア性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量のより好ましい下限は 1 重量部、より好ましい上限は 15 重量部である。

【0054】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、増感剤を含有してもよい。上記増感剤は、上記光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 E L 表示素子用封止剤の硬化反応をより促進させる役割を有する。

【0055】

上記増感剤としては、例えば、9,10-ジブトキシアントラセン等のアントラセン系化合物や、2,4-ジエチルチオキサントン等のチオキサントン系化合物や、2,2-ジメトキシ-1,2-ジフェニルエタン-1-オン、ベンゾフェノン、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。

【0056】

上記増感剤の含有量は、上記硬化性樹脂 100 重量部に対して、好ましい下限は 0.05 重量部、好ましい上限は 3 重量部である。上記増感剤の含有量が 0.05 重量部以上であることにより、増感効果がより発揮される。上記増感剤の含有量が 3 重量部以下であることにより、吸収が大きくなり過ぎずに深部まで光を伝えることができる。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。

【0057】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、安定剤を含有することが好ましい。上記安定剤を含有することにより、本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、より保存安定性に優れるも

10

20

30

40

50

のとなる。

【 0 0 5 8 】

上記安定剤としては、例えば、ベンジルアミン等のアミン系化合物やアミノフェノール型エポキシ樹脂等が挙げられる。

【 0 0 5 9 】

上記安定剤の含有量は、上記硬化性樹脂 1 0 0 重量部に対して、好ましい下限が 0 . 0 0 1 重量部、好ましい上限が 2 重量部である。上記安定剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる有機 E L 表示素子用封止剤が優れた硬化性を維持したまま保存安定性により優れるものとなる。上記安定剤の含有量のより好ましい下限は 0 . 0 0 5 重量部、より好ましい上限は 1 重量部である。

10

【 0 0 6 0 】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、シランカップリング剤を含有してもよい。上記シランカップリング剤は、本発明の有機 E L 表示素子用封止剤と基板等との接着性を向上させる役割を有する。

【 0 0 6 1 】

上記シランカップリング剤としては、例えば、3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、3 - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3 - イソシアネートプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。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。

【 0 0 6 2 】

上記シランカップリング剤の含有量は、上記硬化性樹脂 1 0 0 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 1 0 重量部である。上記シランカップリング剤の含有量がこの範囲であることにより、余剰のシランカップリング剤のブリードアウトを防止しつつ、得られる有機 E L 表示素子用封止剤の接着性を向上させる効果により優れるものとなる。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 . 5 重量部、より好ましい上限は 5 重量部である。

20

【 0 0 6 3 】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲において、表面改質剤を含有してもよい。上記表面改質剤を含有することにより、本発明の有機 E L 表示素子用封止剤に塗膜の平坦性を付与することができる。

30

上記表面改質剤としては、例えば、界面活性剤やレベリング剤等が挙げられる。

【 0 0 6 4 】

上記表面改質剤としては、例えば、シリコーン系、アクリル系、フッ素系等のものが挙げられる。

上記表面改質剤のうち市販されているものとしては、例えば、B Y K - 3 0 0、B Y K - 3 0 2、B Y K - 3 3 1（いずれも、ビックケミー・ジャパン社製）、U V X - 2 7 2（楠本化成社製）、サーフロン S - 6 1 1（A G C セイメケミカル社製）等が挙げられる。

【 0 0 6 5 】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、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、イオン交換樹脂を含有してもよい。

40

【 0 0 6 6 】

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。

【 0 0 6 7 】

本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、アウトガスの発生をより抑制する観点から、溶剤を含有しないことが好ましい。本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、該溶剤を含有しなくても、塗布性に優れるものとすることができる。

【 0 0 6 8 】

また、本発明の有機 E L 表示素子用封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲で、必要に

50

応じて、硬化遅延剤、補強剤、軟化剤、可塑剤、粘度調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤等の公知の各種添加剤を含有してもよい。

【0069】

本発明の有機EL表示素子用封止剤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、硬化性樹脂と、重合開始剤と、本発明にかかる吸水性フィラーと、必要に応じて添加するシランカップリング剤等の添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

【0070】

本発明の有機EL表示素子用封止剤は、E型粘度計を用いて、25における粘度が100～500Pa・sのペーストであることが好ましい。上記粘度がこの範囲であるペーストであることにより、本発明の有機EL表示素子用封止剤が塗布性と吸水性フィラーの分散性との両方により優れるものとなる。上記粘度のより好ましい下限は150Pa・s、より好ましい上限は450Pa・sである。なお、上記粘度を調整するために溶剤を用いた場合、アウトガスの発生を抑制することが困難となる。

なお、上記粘度は、例えば、E型粘度計としてVISCOMETER TV-22（東機産業社製）を用い、CP1のコンプレートにて、各粘度領域における最適なトルク数から適宜1～100rpmの回転数を選択することにより測定することができる。

【0071】

本発明の有機EL表示素子用封止剤により形成される封止部の形状としては、有機発光材料層を有する積層体を外気から保護しうる形状であれば特に限定されず、該積層体を完全に被覆する形状であってもよいし、該積層体の周辺部に閉じたパターンを形成してもよいし、該積層体の周辺部に一部開口部を設けた形状のパターンを形成してもよい。なかでも、本発明の有機EL表示素子用封止剤は、該積層体の周辺部の封止に好適に用いることができる。

【発明の効果】

【0072】

本発明によれば、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0073】

【図1】(a)は、本発明にかかる吸水性フィラーAの表面のSEM像であり、(b)は、本発明にかかる吸水性フィラーAの断面のSEM像である。

【図2】(a)は、市販の吸水性フィラー（吉沢石灰工業社製、「生石灰」1P）の表面のSEM像であり、(b)は、市販の吸水性フィラー（吉沢石灰工業社製、「生石灰」1P）の断面のSEM像である。

【発明を実施するための形態】

【0074】

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。

【0075】

（実施例1～6、比較例1）

表1に記載された配合比に従い、各材料を、ホモディスパー型攪拌混合機（プライミクス社製、「ホモディスパーL型」）を用い、攪拌速度3000rpmで均一に攪拌混合することにより、実施例1～6、比較例1の有機EL表示素子用封止剤を作製した。

なお、表中における「本発明にかかる吸水性フィラーA」は、動的光散乱式粒子径測定装置を用いて測定した平均一次粒子径が3.5μm、JIS Z 8807に準じた方法により測定した比重が3.0g/cm³、比表面積測定装置で窒素ガスを用いてBET法により測定した平均比表面積が11m²/g、吸水率が25重量%の酸化カルシウムである。上記動的光散乱式粒子径測定装置としてはELS Z-1000S（大塚電子社製）を用い、上記比表面積測定装置としてはASAP-2000（島津製作所社製）を用いた。

また、表中における「本発明にかかる吸水性フィラー B」は、吸水性フィラー A と同様に測定した、平均一次粒子径が $1.0 \mu\text{m}$ 、比重が 2.8 g/cm^3 、平均比表面積が $18 \text{ m}^2/\text{g}$ 、吸水率が 30 重量%の酸化カルシウムである。

更に、表中における「生石灰 J 1 P (吉沢石灰工業社製)」は、吸水性フィラー A と同様に測定した、平均一次粒子径が $3.0 \mu\text{m}$ 、比重が 3.4 g/cm^3 、平均比表面積が $2.5 \text{ m}^2/\text{g}$ 、吸水率が 30 重量%の酸化カルシウムである。

本発明にかかる吸水性フィラー A の表面及び断面の SEM 像を図 1 に示した。図 1 に示したように、本発明にかかる吸水性フィラー A は、表面に凹凸形状を有し、内部に多数の空隙を有することが確認された。また、比較例で用いた市販の吸水性フィラー (吉沢石灰工業社製、「生石灰 J 1 P」) の表面及び断面の SEM 像を図 2 に示した。図 2 に示したように、比較例で用いた市販の吸水性フィラーは、表面も断面も平坦なものであることが確認された。

【0076】

< 評価 >

実施例及び比較例で得られた各有機 EL 表示素子用封止剤について、以下の評価を行った。結果を表 1 に示した。

【0077】

(1) 粘度

実施例及び比較例で得られた各有機 EL 表示素子用封止剤について、E 型粘度計 (東機産業社製、「VISCOMETER TV-22」) を用いて、25 における粘度を測定した。

【0078】

(2) バリア性

実施例及び比較例で得られた各有機 EL 表示素子用封止剤について、以下の Ca-TEST を行った。

まず、 $30 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ のガラス基板に $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ の開口部を複数有するマスクを被せ、Ca を真空蒸着機により蒸着させた。蒸着の条件は、真空蒸着装置の蒸着器内を $2 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ まで減圧して Ca を $5.0 / \text{s}$ の蒸着速度で 2000 成膜するものとした。Ca を蒸着したガラス基板を露点 (-60 以上) に管理されたグローボックス内に移動させ、表面に実施例及び比較例で得られた各有機 EL 表示素子用封止剤を塗布したガラス基板を貼り合わせた。この時、ガラス基板端面から 2 mm、4 mm、6 mm の位置に蒸着した Ca が存在するように貼り合わせた。次いで、 365 nm の紫外線を 3000 mJ/cm^2 照射し、更に、80 で 30 分加熱することで封止剤を硬化させ、Ca-TEST 基板を作製した。なお、実施例 5 で得られた有機 EL 表示素子用封止剤については、100 にて 30 分加熱することにより硬化させ、Ca-TEST 基板を作製した。

得られた Ca-TEST 基板を、85、85% RH の高温高湿条件に暴露し、時間毎の水分の浸入距離を Ca の消失から観測した結果、水分の浸入距離が 6 mm に達するまでの時間が 1000 時間以上であった場合を「○」、500 時間以上 1000 時間未満であった場合を「△」、500 時間未満であった場合を「×」としてバリア性を評価した。

【0079】

(3) パネルの接着状態

(有機発光材料層を有する積層体が配置された基板の作製)

ガラス基板 (長さ 45 mm 、幅 45 mm 、厚さ 0.7 mm) に ITO 電極を 1000 の厚さで成膜したものを基板とした。上記基板をアセトン、アルカリ水溶液、イオン交換水、イソプロピルアルコールにてそれぞれ 15 分間超音波洗浄した後、煮沸させたイソプロピルアルコールにて 10 分間洗浄し、更に、UV-オゾンクリーナ (日本レーザー電子社製、「NL-UV253」) にて直前処理を行った。

次に、この基板を真空蒸着装置の基板フォルダに固定し、素焼きの坩堝に N, N'-ジ (1-ナフチル) - N, N'-ジフェニルベンジジン (α -NPD) を 200 mg、他の異なる素焼き坩堝にトリス (8-キノリノラト) アルミニウム (Alq_3) を 200 mg 入

10

20

30

40

50

れ、真空チャンバー内を、 1×10^{-4} Paまで減圧した。その後、 α -NPDの入った坩堝を加熱し、 α -NPDを蒸着速度 15 / s で基板に堆積させ、膜厚 600 の正孔輸送層を成膜した。次いで、 Alq_3 の入った坩堝を加熱し、 15 / s の蒸着速度で膜厚 600 の有機発光材料層を成膜した。その後、正孔輸送層及び有機発光材料層が形成された基板を別の真空蒸着装置に移し、この真空蒸着装置内のタングステン製抵抗加熱ボートにフッ化リチウム 200 mg を、別のタングステン製ボートにアルミニウム線 1.0 g を入れた。その後、真空蒸着装置の蒸着器内を 2×10^{-4} Paまで減圧してフッ化リチウムを 0.2 / s の蒸着速度で 5 成膜した後、アルミニウムを 20 / s の速度で 1000 成膜した。窒素により蒸着器内を常圧に戻し、 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ の有機発光材料層を有する積層体が配置された基板を取り出した。

10

【0080】

(無機材料膜Aによる被覆)

得られた積層体が配置された基板の、該積層体全体を覆うように、 $13 \text{ mm} \times 13 \text{ mm}$ の開口部を有するマスクを設置し、プラズマCVD法にて無機材料膜Aを形成した。

プラズマCVD法は、原料ガスとして SiH_4 ガス及び窒素ガスを用い、各々の流量を 10 sccm 及び 200 sccm とし、RFパワーを 10 W (周波数 2.45 GHz)、チャンバー内温度を 100 、チャンバー内圧力を 0.9 Torr とする条件で行った。

形成された無機材料膜Aの厚さは、約 $1 \mu\text{m}$ であった。

【0081】

(樹脂保護膜の形成)

無機材料膜Aで被覆された基板に、実施例及び比較例で得られた各有機EL表示素子用封止剤を外周に線幅が 6 mm となるよう塗布し、その内部に充填剤を入れた。その後高圧水銀灯を用いて波長 365 nm の紫外線を照射量が 3000 mJ/cm^2 となるように照射し、更に 80 で 30 分加熱することで有機EL表示素子用封止剤を硬化させて樹脂保護膜を形成した。なお、実施例5で得られた有機EL表示素子用封止剤については、紫外線の照射に代えて 100 にて 30 分加熱することにより硬化させて樹脂保護膜を形成した。

20

【0082】

(無機材料膜Bによる被覆)

樹脂保護膜を形成した後、該樹脂保護膜の全体を覆うように、 $12 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ の開口部を有するマスクを設置し、プラズマCVD法にて無機材料膜Bを形成して有機EL表示素子を得た。

プラズマCVD法は、原料ガスとして SiH_4 ガス及び窒素ガスを用い、各々の流量を SiH_4 ガス 10 sccm 、窒素ガス 200 sccm とし、RFパワーを 10 W (周波数 2.45 GHz)、チャンバー内温度を 100 、チャンバー内圧力を 0.9 Torr とする条件で行った。

形成された無機材料膜Bの厚さは、約 $1 \mu\text{m}$ であった。

30

【0083】

(パネルの接着状態の観察)

得られた有機EL表示素子を、 85 、 $85\% \text{ RH}$ の環境下に 2000 時間暴露した後のパネルの接着状態を目視にて観察した。パネル剥がれがなかった場合を「○」、パネル剥がれが一部確認された場合を「△」、パネル剥がれが大部分から確認された場合を「×」としてパネルの接着状態を評価した。

40

【0084】

(4)有機EL表示素子の信頼性

上記「(3)パネルの接着状態」と同様にして得られた有機EL表示素子を、 85 、 $85\% \text{ RH}$ の環境下に 2000 時間暴露した後、 3 V の電圧を印加し、有機EL表示素子の発光状態(ダークスポット及び画素周辺消光の有無)を目視で観察した。ダークスポットや周辺消光が無く均一に発光した場合を「○」、僅かにダークスポットや周辺消光が認められた場合を「△」、非発光部が著しく拡大した場合を「×」として有機EL表示素子の

50

信頼性を評価した。
【 0 0 8 5 】

【表 1】

		実施例							比較例					
		1	2	3	4	5	6							
組成 (重量部)	硬化性化合物	エポキシノボラック樹脂 (ダウ・ケミカル社製、「D. E. N. 431」)							1					
		ビスフェノールF型エポキシ樹脂 (DIC社製、「EPICLON EXA-830LVP」)							65					
		ジクロロペンタジエン型エポキシ樹脂 (DIC社製、「EPICLON HP-7200」)							20					
		芳香族スルホニウム塩 (みどり化学社製、「DTS-200」)							15					
	光カチオン 重合開始剤	芳香族スルホニウム塩 (みどり化学社製、「DTS-200」)							1					
	熱カチオン 重合開始剤	芳香族第4級アンモニウム塩 (King Industries社製、「CXC-1821」)							—					
	シリコン 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」)							1.5					
	吸水性ファイラー	本発明にかかる吸水性ファイラー-A (酸化カルシウム、平均一次粒子径3.5 μ m、比重3.0g/cm ³)							20					
		本発明にかかる吸水性ファイラー-B (酸化カルシウム、平均一次粒子径1.0 μ m、比重2.8g/cm ³)							—					
		生石灰J1P(吉沢石灰工業社製) (酸化カルシウム、平均一次粒子径3.0 μ m、比重3.4g/cm ³)							—					
評価	その他の ファイラー	タルク (日本タルク社製、「NANO ACE D-600」)							—					
	粘度(Pa・s)							250	180	450	300	250	300	250
	バリア性							○	△	○	○	○	○	○
	パネルの接着状態							○	○	△	○	○	○	×
有機EL表示素子の信頼性							○	△	△	○	○	○	×	

【産業上の利用可能性】

10

20

30

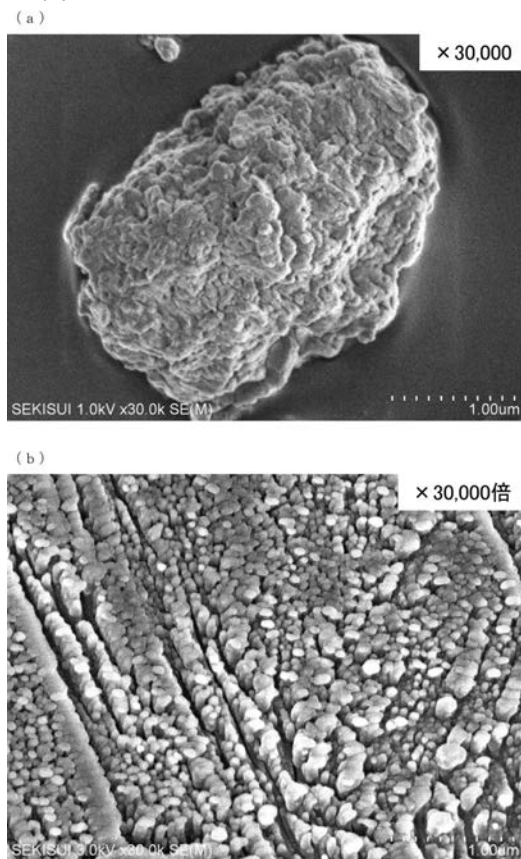
40

50

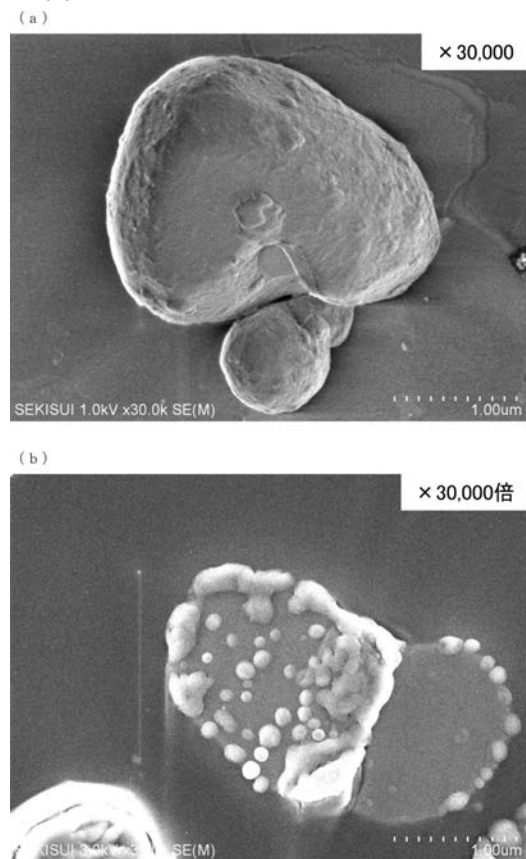
【 0 0 8 6 】

本発明によれば、バリア性に優れ、かつ、パネル剥がれを抑制できる有機エレクトロルミネッセンス表示素子用封止剤を提供することができる。

【 図 1 】



【 図 2 】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/032993

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
Int.Cl. H05B33/04 (2006.01)i, G09F9/30 (2006.01)i, H01L23/29 (2006.01)i, H01L23/31 (2006.01)i, H01L27/32 (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) Int.Cl. H05B33/04, G09F9/30, H01L23/29, H01L23/31, H01L27/32, H01L51/50		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Japanese Published Examined Utility Model Applications		1922-1996
Japanese Published Unexamined Utility Model Applications		1971-2017
Japanese Examined Utility Model Registrations		1996-2017
Japanese Registered Utility Model Specifications		1994-2017
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.
Y	WO 2016/136715 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 01 September 2016, paragraphs [0001], [0007], [0044]-[0045], [0075], [0087] & CN 106797685 A	1-6
Y	JP 2015-181135 A (SEMICONDUCTOR ENERGY LABORATORY CO., LTD.) 15 October 2015, paragraph [0096] & US 2002/0149320 A1 (paragraph [0108])	1-6
Y	WO 2015/152053 A1 (THE FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) 08 October 2015, paragraphs [0036]-[0038] & CN 106165534 A & KR 10-2016-0141783 A & US 2017/0047548 A1 (paragraphs [0060]-[0062])	1-6
☒ 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 27 November 2017 (27.11.2017)		Date of mailing of the international search report 12 December 2017 (12.12.2017)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/032993

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2015-129288 A (KANEKA CORP.) 16 July 2015, entire text, all drawings & EP 2151443 A1 & US 2010/0099790 A1 & WO 2008/133138 A1	1-6
A	WO 2015/147600 A1 (LG CHEM, LTD.) 01 October 2015, entire text, all drawings & JP 2017-513205 A & US 2017/0222183 A1 & EP 3125328 A1 & CN 106415875 A	1-6

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 7 / 0 3 2 9 9 3									
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, G09F9/30(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i, H01L27/32(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, G09F9/30, H01L23/29, H01L23/31, H01L27/32, 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 <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>1971-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2017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	1971-2017年	日本国実用新案登録公報	1996-2017年	日本国登録実用新案公報	1994-2017年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2017年										
日本国実用新案登録公報	1996-2017年										
日本国登録実用新案公報	1994-2017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									
Y	WO 2016/136715 A1 (積水化学工業株式会社) 2016.09.01, [0001], [0007], [0044]-[0045], [0075], [0087] & CN 106797685 A	1-6									
Y	JP 2015-181135 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2015.10.15, [0096] & US 2002/0149320 A1([0108])	1-6									
Y	WO 2015/152053 A1 (古河電気工業株式会社) 2015.10.08, [0036]-[0038] & CN 106165534 A & KR 10-2016-0141783 A & US 2017/0047548 A1([0060]-[0062])	1-6									
☒ 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 27.11.2017		国際調査報告の発送日 12.12.2017									
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) 野尻 悠平 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 7 / 0 3 2 9 9 3
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
A	JP 2015-129288 A (株式会社カネカ) 2015.07.16, 全文全図 & EP 2151443 A1 & US 2010/0099790 A1 & WO 2008/133138 A1	1-6
A	WO 2015/147600 A1 (LG CHEM, LTD.) 2015.10.01, 全文全図 & JP 2017-513205 A & US 2017/0222183 A1 & EP 3125328 A1 & CN 106415875 A	1-6

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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, 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

(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)	用于有机电致发光显示装置的密封剂		
公开(公告)号	JPWO2018052006A1	公开(公告)日	2019-06-27
申请号	JP2017550263	申请日	2017-09-13
[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	渡邊康雄		
发明人	渡邊 康雄		
IPC分类号	H05B33/04 H01L51/50 H01L27/32 C08G59/68 G09F9/30		
CPC分类号	G09F9/30 H01L23/29 H01L23/31 H01L27/32 H01L51/50 H05B33/04		
FI分类号	H05B33/04 H05B33/14.A H01L27/32 C08G59/68 G09F9/30.365		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/CC25 3K107/EE48 3K107/EE49 3K107/EE53 3K107/FF02 3K107/FF14 3K107/FF15 4J036/AA01 4J036/AD08 4J036/AF06 4J036/AJ09 4J036/FA03 4J036/FA05 4J036/FA13 4J036/GA02 4J036/GA03 4J036/HA02 4J036/JA07 4J036/KA03 5C094/AA38 5C094/BA27 5C094/FB01 5C094/FB02 5C094/FB20 5C094/JA01 5C094/JA08		
优先权	2016181692 2016-09-16 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明的目的是提供一种有机电致发光显示元件用密封剂，其具有优异的阻隔性并且可以抑制面板剥离。本发明包含可固化树脂，聚合引发剂和吸水填料，并且该吸水填料的平均一次粒径为5μm或更小，比重为3.3 g / cm³。它是有机电致发光显示元件的密封剂，如下所述。

(19) 日本国特許庁 (JP)		再 公 表 特 許 (A1)		(11) 国際公開番号 WO2018/052006	
発行日 令和1年6月27日 (2019. 6. 27)		(43) 国際公開日 平成30年3月22日 (2018. 3. 22)			
(51) Int. Cl.		F I		3 K 1 0 7 (参考)	
H 0 5 B 33/04 (2006.01)		H 0 5 B 33/04		C 7 1 0 7	
H 0 1 L 51/50 (2006.01)		H 0 5 B 33/14		A 4 J 0 3 6	
H 0 1 L 27/32 (2006.01)		H 0 1 L 27/32		5 C 0 9 4	
C 0 8 G 59/68 (2006.01)		C 0 8 G 59/68			
G 0 9 F 9/30 (2006.01)		G 0 9 F 9/30		3 6 5	
		審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 23 頁)			
出願番号 特願2017-550263 (P2017-550263)		(71) 出 願 人 000002174			
(21) 国際出願番号 PCT/JP2017/032993		積水化学工業株式会社			
(22) 国際出願日 平成29年9月13日 (2017. 9. 13)		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2016-181692 (P2016-181692)		(74) 代理人 110000914			
(32) 優先日 平成28年9月16日 (2016. 9. 16)		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 渡邊 康雄			
		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 EE48 EE49 EE53 FF02 FF14 FF15 4J036 AA01 AD08 AF06 AJ09 FA03 FA05 FA13 GA02 GA03 HA02 JA07 KA03 5C094 AA38 BA27 FB01 FB02 FB20 JA01 JA08			
		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用封止剤					