

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017 年 6 月 8 日(08.06.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/094809 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/04 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C08G 65/18 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/085653
- (22) 国際出願日: 2016 年 11 月 24 日(24.11.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-233349 2015 年 11 月 30 日(30.11.2015) JP
- (71) 出願人: 株式会社ダイセル(DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300011 大阪府大阪市北区大深町 3 番 1 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 江川 智哉(EGAWA, Tomoya); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家 1 2 3 9 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人後藤特許事務所(GOTO & CO.); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町 2 番 1 8 号 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): 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, JP, KE, KG, 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, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: SEALING COMPOSITION

(54) 発明の名称: 封止用組成物

(57) Abstract: Provided is an organic EL element sealing composition with which it is possible to efficiently seal an organic EL element using a low-outgassing, moisture-proof cured product without directly exposing the organic EL element to UV rays. An organic EL element sealing composition of the present invention contains a component (A), a component (B), and a component (C). Component (A): a cation-curable compound having, in one molecule, at least two groups of at least one type selected from alicyclic epoxy groups, oxetane ring-containing groups, episulfide groups, and vinyl ether groups. Component (B): a photo-cationic polymerization initiator. Component (C): a glycoluril compound.

(57) 要約: 有機 EL 素子を UV に直に曝すことなく、且つ効率よく、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で封止することができる有機 EL 素子封止用組成物を提供する。本発明の有機 EL 素子封止用組成物は、下記成分 (A)、成分 (B)、及び成分 (C) を含有する。成分 (A): 脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される 1 種又は 2 種以上の基を 1 分子中に 2 個以上有するカチオン硬化性化合物 成分 (B): 光カチオン重合開始剤 成分 (C): グリコールウリル化合物

WO 2017/094809 A1

明 細 書

発明の名称：封止用組成物

技術分野

[0001] 本発明は、有機ＥＬ素子を損傷すること無く封止することができ、有機ＥＬ素子を水分による劣化から保護することができる封止用組成物に関する。本願は、２０１５年１１月３０日に日本に出願した、特願２０１５－２３３３４９号の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス（以後、「有機ＥＬ」と称する場合がある）素子は、発光層を一对の対向電極で挟んだ構成を有し、一方の電極からは電子が注入され、他方の電極からは正孔が注入される。この注入された電子と正孔とが発光層内で再結合するときに発光が生ずる。前記有機ＥＬ素子を含む有機ＥＬデバイスは、耐衝撃性や視認性の高さと、発光色の多様性からフルカラーのフラットパネルディスプレイとして、又はＬＥＤに代わるものとして期待されている。有機ＥＬデバイスの光取り出し方式には、トップ・エミッション型とボトム・エミッション型の２種類があり、トップ・エミッション型は開口率が大きいため、光取り出し効率が優れている点で好ましい。

[0003] しかし、有機ＥＬ素子は他の電子部品に比べて水分の影響を受けやすく、有機ＥＬ素子内に浸入した水分によって電極の酸化や有機物の変性等が引き起こされ、発光特性が著しく低下することが問題であった。この問題を解決する方法としては、有機ＥＬ素子の周りを封止用組成物の硬化物で封止（若しくは、被覆）する方法が知られている。

[0004] 前記封止方法としては、基板上に形成した有機ＥＬ素子の周りをＵＶ照射で硬化する封止用組成物で充填し、その後、前記封止用組成物を硬化させることにより封止する方法（１）や、リッド（蓋）に封止用組成物を塗布し、ＵＶを照射した後に有機ＥＬ素子を形成した基板に貼り合わせて封止する方

法（２）が知られている。

[0005] 上記方法（１）は、有機ＥＬ素子がＵＶに直に曝されることにより発光特性が低下することが問題であった。その他、高コントラストを有する有機ＥＬデバイスを形成するためにカラーフィルターを有機ＥＬ素子の上部に配置する場合には、カラーフィルターによってＵＶが遮られるため封止用組成物の硬化が不十分となることが問題であった。

[0006] 一方、上記方法（２）では、有機ＥＬ素子がＵＶに直に曝されることにより発光特性が低下することは防止できるが、ＵＶ照射により封止用組成物の硬化が速やかに進行するため、貼り合わせ作業が遅滞すると貼り合わせが困難となり、歩留まりが低下することが問題であった。

[0007] 特許文献１には、エポキシ化合物と重合開始剤と硬化遅延剤としてクラウンエーテルやポリエーテル類を含有する封止用組成物は、ＵＶ照射後、ＵＶを遮断しても反応が進行して硬化が完了する特性を有するため、上記方法（２）において前記組成物を使用すれば、ＵＶによる有機ＥＬ素子の劣化を抑制しつつ、封止することができると記載されている。しかし、クラウンエーテルやポリエーテル類はカチオンにより分解されてアウトガスを発生し、そのアウトガスにより有機ＥＬ素子が劣化することが問題であった。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献１：特許第４３８４５０９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 従って、本発明の目的は、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝することなく、且つ効率よく、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で封止することができる有機ＥＬ素子封止用組成物を提供することにある。

本発明の他の目的は、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝することなく、且つ効率よく、低アウトガス性、防湿性、及び導電性を有する硬化物で封止すること

ができる有機EL素子封止用組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者は上記課題を解決するため鋭意検討した結果、光カチオン重合開始剤から発生するカチオンに対して弱塩基性にあたるグリコールウリル化合物は、UV照射することにより光カチオン重合開始剤から発生するカチオンをトラップしてカチオン重合の進行を抑制し、加熱処理を施すとカチオンを放出してカチオン重合を進行させる作用を有すること、前記グリコールウリル化合物はアウトガスの発生原因とはならないこと、グリコールウリル化合物を添加することにより封止用組成物の可使用時間を自由にコントロールすることができ、該封止用組成物の塗膜にUVを照射し、その後有機EL素子に貼り合わせてから加熱処理を施すことにより、有機EL素子をUVに直に曝すことなく、且つ貼り合わせが困難となることなく封止することができ、歩留まりよく低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で有機EL素子を封止することができることを見いだした。

また、特定の導電性繊維被覆粒子を封止用組成物に添加すると、上記特徴に加え、導電性を有する硬化物で有機EL素子を封止することができることを見いだした。

本発明はこれらの知見に基づいて完成させたものである。

[0011] すなわち、本発明は、下記成分(A)、成分(B)、及び成分(C)を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

成分(A)：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物

成分(B)：光カチオン重合開始剤

成分(C)：グリコールウリル化合物

[0012] 本発明は、また、成分(C)がグリシジル基もしくはアリル基を含有するグリコールウリル化合物である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0013] 本発明は、また、成分（Ｂ）１重量部に対して、成分（Ｃ）を０．０５～３重量部含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0014] 本発明は、また、さらに、下記成分（Ｄ）を含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

成分（Ｄ）：グリシジルエーテル基を１分子中に１個以上有する化合物（成分（Ａ）に含まれる化合物を除く）

[0015] 本発明は、また、さらに、平均粒子径が０．００１～３０μｍの無機充填材を含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0016] 本発明は、また、さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子

[0017] 本発明は、また、トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0018] 本発明は、また、下記工程１及び２を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法を提供する。

工程１：前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程２：素子を設置した基板の素子設置面に、工程１を経て得られた光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[0019] 本発明は、また、前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物の硬化物を備えた有機エレクトロルミネッセンスデバイスを提供する。

[0020] すなわち、本発明は、以下に関する。

[１] 下記成分（Ａ）、成分（Ｂ）、及び成分（Ｃ）を含有する、有機エ

レクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される１種又は２種以上の基を１分子中に２個以上有するカチオン硬化性化合物

成分（B）：光カチオン重合開始剤

成分（C）：グリコールウリル化合物

〔２〕 成分（A）が、シクロヘキセンオキシド基を１分子中に２個以上有する化合物を含有する、〔１〕に記載の有機レクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔３〕 成分（A）が、式（a）で表される化合物を含有する、〔１〕に記載の有機レクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔４〕 成分（A）が、（３，４，３′，４′－ジエポキシ）ビスシクロヘキシル、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル）エーテル、１，２－エポキシ－１，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）エタン、２，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）プロパン、及び１，２－ビス（３，４－エポキシシクロヘキサン－１－イル）エタンからなる群より選択される少なくとも１種の化合物を含有する、〔１〕に記載の有機レクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔５〕 成分（A）が、４，４′－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシメチル〕ビフェニル、１，４－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニルメトキシ）メチル〕ベンゼン、ビス〔〔１－エチル（３－オキセタニル）〕メチル〕エーテル、４，４′－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシメチル〕ビスシクロヘキシル、１，４－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシメチル〕シクロヘキサン、３－エチル－３‐〔（３－エチルオキセタン－３－イル）メトキシ〕メチル オキセタン、及びフェノールノボラック型オキセタンからなる群より選択される少なくとも１種の化合物を含有する、〔１〕～〔４〕の何れか１つに記載の有機レクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔6〕 成分（A）が、フルオレン骨格を有するエピスルフィド化合物を含有する、〔1〕～〔5〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔7〕 成分（A）が、環状エーテル型ビニルエーテル化合物を含有する、〔1〕～〔6〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔8〕 封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量％）に占める成分（A）の割合が30～80重量％である、〔1〕～〔7〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔9〕 成分（B）の含有量が、封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物100重量部に対して0.05～4重量部である、〔1〕～〔8〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔10〕 成分（C）が、式（c）で表される化合物である、〔1〕～〔9〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔11〕 成分（C）がグリシジル基もしくはアリル基を含有するグリコールウリル化合物である、〔1〕～〔9〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔12〕 成分（B）1重量部に対して、成分（C）を0.05～3重量部含有する、〔1〕～〔11〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔13〕 さらに、下記成分（D）を含有する、〔1〕～〔12〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

成分（D）：グリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（成分（A）に含まれる化合物を除く）

〔14〕 封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量％）に占める成分（D）の割合が20～70重量％である、〔1〕～〔13〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔15〕 封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量

%)に占める成分(A)と成分(D)の合計量の占める割合が70重量%以上である、[1]～[14]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[16] さらに、平均粒子径が $0.001\sim 30\mu\text{m}$ の無機充填材を含有する、[1]～[15]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[17] さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する、[1]～[16]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子

[18] トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である、[1]～[17]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[19] 粘度(25℃、せん断速度： $20(1/\text{s})$)が $10\sim 10000\text{mPa}\cdot\text{s}$ である、[1]～[18]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[20] 紫外線を照射(照射量： $2000\text{mJ}/\text{cm}^2$)直後から照射後30分までの粘度上昇度が1.5倍以下である、[1]～[19]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[21] 下記工程1及び2を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

工程1：[1]～[20]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程2：有機エレクトロルミネッセンス素子を設置した基板の素子設置面に、工程1を経て得られた光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[22] [1]～[20]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物の硬化物を備えた有機エレクトロルミネッセンスデ

バイス。

[23] 前記硬化物（厚さ：100 μm ）の透湿量が150 $\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}$ 以下である、[22]に記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

発明の効果

[0021] 本発明の有機EL素子封止用組成物は上記構成を有するため、塗膜にUVを照射しても加熱処理を施すまでは硬化の進行を抑制することができ、たとえば貼り合わせ作業の進行が滞っても接着性が失われて貼り合わせが困難となることが無い。そして、貼り合わせ後に加熱処理を施すことにより硬化を進行させることができ、有機EL素子をUVに直に曝すことなく封止することができる。また、本発明の有機EL素子封止用組成物は、防湿性を有すると共に低アウトガス性の硬化物を形成することができ、水分やアウトガスによる有機EL素子の劣化を防止することができる。更に、本発明の有機EL素子封止用組成物が導電性繊維被覆粒子を含有する場合は、導電性をも兼ね備えた硬化物を形成することができる。

そのため、本発明の有機EL素子封止用組成物や本発明の有機EL素子封止用組成物から成るシート又はフィルムは、トップ・エミッション型有機EL素子の封止用途に好適に使用することができる。

また、本発明の有機EL素子封止用組成物や本発明の有機EL素子封止用組成物から成るシート又はフィルムで封止された有機ELデバイスは、優れた発光特性を有し、長寿命で信頼性が高い。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]本発明における導電性繊維被覆粒子の走査型電子顕微鏡像（SEM像）の一例である。

[図2]本発明の有機EL素子封止用組成物を使用した有機ELデバイスの製造方法の一例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0023] [有機EL素子封止用組成物]

本発明の有機EL素子封止用組成物（以後、「封止用組成物」と称する場合がある）は、下記成分（A）、成分（B）、及び成分（C）を含有する。

成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物

成分（B）：光カチオン重合開始剤

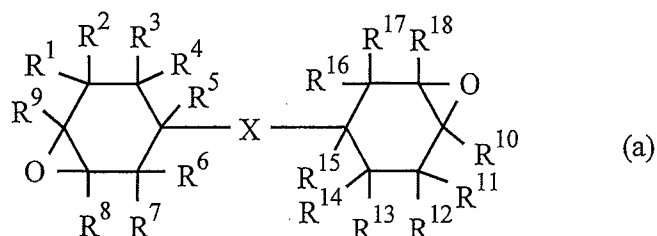
成分（C）：グリコールウリル化合物

[0024] （成分（A））

本発明の成分（A）は、脂環エポキシ基（脂環を構成する隣接する2つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基、例えばシクロヘキセンオキシド基等）、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物である。成分（C）に含まれる化合物は除く。

[0025] 前記脂環エポキシ基を1分子中に2個以上有する化合物（以後、「脂環式エポキシ化合物」と称する場合がある）としては、下記式（a）で表される化合物を挙げることができる。

[0026] [化1]



[0027] 上記式（a）中、 $R^1 \sim R^{18}$ は同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、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、又は置換基を有していてもよいアルコキシ基を示す。

[0028] $R^1 \sim R^{18}$ におけるハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等を挙げることができる。

[0029] $R^1 \sim R^{18}$ における炭化水素基としては、例えば、脂肪族炭化水素基、脂環式

炭化水素基、芳香族炭化水素基、及びこれらが2以上結合した基を挙げることができる。

[0030] 上記脂肪族炭化水素基としては、例えば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ヘキシル、オクチル、イソオクチル、デシル、ドデシル基等の C_{1-20} アルキル基（好ましくは C_{1-10} アルキル基、特に好ましくは C_{1-4} アルキル基）；ビニル、アリル、メタリル、1-プロペニル、イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、1-ペンテニル、2-ペンテニル、3-ペンテニル、4-ペンテニル、5-ヘキセニル基等の C_{2-20} アルケニル基（好ましくは C_{2-10} アルケニル基、特に好ましくは C_{2-4} アルケニル基）；エチニル、プロピニル基等の C_{2-20} アルキニル基（好ましくは C_{2-10} アルキニル基、特に好ましくは C_{2-4} アルキニル基）等を挙げることができる。

[0031] 上記脂環式炭化水素基としては、例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロドデシル基等の C_{3-12} シクロアルキル基；シクロヘキセニル基等の C_{3-12} シクロアルケニル基；ビスシクロヘプタニル、ビスシクロヘプテニル基等の C_{4-15} 架橋環式炭化水素基等を挙げることができる。

[0032] 上記芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル、ナフチル基等の C_{6-14} アリール基（好ましくは C_{6-10} アリール基）等を挙げることができる。

[0033] また、上述の脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、及び芳香族炭化水素基から選択される基が2以上結合した基としては、例えば、シクロヘキシルメチル基等の C_{3-12} シクロアルキル置換 C_{1-20} アルキル基；メチルシクロヘキシル基等の C_{1-20} アルキル置換 C_{3-12} シクロアルキル基；ベンジル基、フェネチル基等の C_{7-18} アラルキル基（特に、 C_{7-10} アラルキル基）；シンナミル基等の C_{6-14} アリール置換 C_{2-20} アルケニル基；トリル基等の C_{1-20} アルキル置換 C_{6-14} アリール基；スチリル基等の C_{2-20} アルケニル置換 C_{6-14} アリール基等を挙げることができる。

[0034] $R^1 \sim R^{18}$ における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としては、上述の炭化水素基における少なくとも1つの水素原子が、酸

素原子を有する基又はハロゲン原子で置換された基等を挙げることができる。上記酸素原子を有する基としては、例えば、ヒドロキシル基；ヒドロパーオキシ基；メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロピルオキシ、ブトキシ、イソブチルオキシ基等の C_{1-10} アルコキシ基；アリルオキシ基等の C_{2-10} アルケニルオキシ基； C_{1-10} アルキル基、 C_{2-10} アルケニル基、ハロゲン原子、及び C_{1-10} アルコキシ基から選択される置換基を有していてもよい C_{6-14} アリールオキシ基（例えば、トリルオキシ、ナフチルオキシ基等）；ベンジルオキシ、フェネチルオキシ基等の C_{7-18} アラルキルオキシ基；アセチルオキシ、プロピオニルオキシ、（メタ）アクリロイルオキシ、ベンゾイルオキシ基等の C_{1-10} アシルオキシ基；メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル基等の C_{1-10} アルコキシカルボニル基； C_{1-10} アルキル基、 C_{2-10} アルケニル基、ハロゲン原子、及び C_{1-10} アルコキシ基から選択される置換基を有していてもよい C_{6-14} アリールオキシカルボニル基（例えば、フェノキシカルボニル、トリルオキシカルボニル、ナフチルオキシカルボニル基等）；ベンジルオキシカルボニル基等の C_{7-18} アラルキルオキシカルボニル基；グリシジルオキシ基等のエポキシ基含有基；エチルオキシセタニルオキシ基等のオキシセタニル基含有基；アセチル、プロピオニル、ベンゾイル基等の C_{1-10} アシル基；イソシアナート基；スルホ基；カルバモイル基；オキソ基；これらの2以上が単結合又は C_{1-10} アルキレン基等を介して結合した基等を挙げることができる。

[0035] $R^1 \sim R^{18}$ におけるアルコキシ基としては、例えば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロピルオキシ、ブトキシ、イソブチルオキシ基等の C_{1-10} アルコキシ基を挙げることができる。

[0036] 前記アルコキシ基が有していてもよい置換基としては、例えば、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、 C_{1-10} アルコキシ基、 C_{2-10} アルケニルオキシ基、 C_{6-14} アリールオキシ基、 C_{1-10} アシルオキシ基、メルカプト基、 C_{1-10} アルキルチオ基、 C_{2-10} アルケニルチオ基、 C_{6-14} アリールチオ基、 C_{7-18} アラルキルチオ基、カルボキシル基、 C_{1-10} アルコキシカルボニル基、 C_{6-14} アリールオキシカルボ

ニル基、 C_{7-18} アラルキルオキシカルボニル基、アミノ基、モノ又はジ C_{1-10} アルキルアミノ基、 C_{1-10} アシルアミノ基、エポキシ基含有基、オキセタニル基含有基、 C_{1-10} アシル基、オキソ基、及びこれらの2以上が単結合又は C_{1-10} アルキレン基等を介して結合した基等を挙げることができる。

[0037] 上記式(a)中、Xは単結合又は連接基(1以上の原子を有する二価の基)を示す。上記連接基としては、例えば、二価の炭化水素基、炭素-炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、及びこれらが複数個連接した基等を挙げることができる。

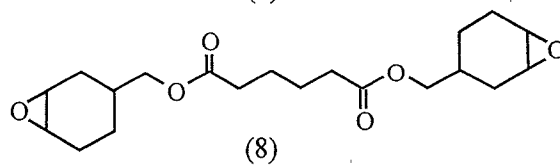
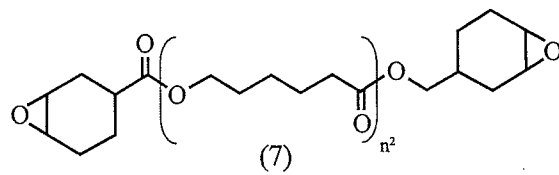
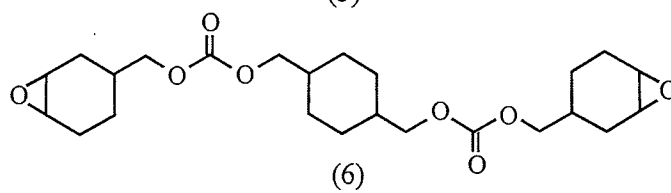
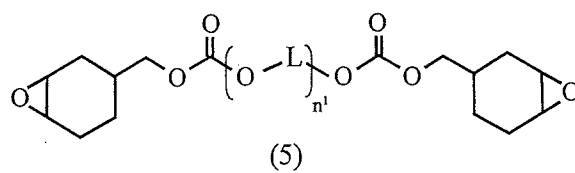
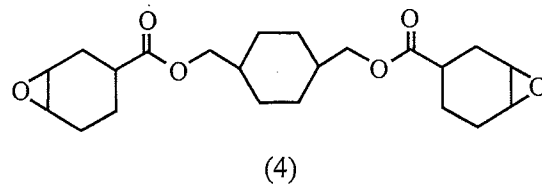
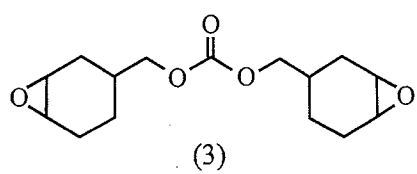
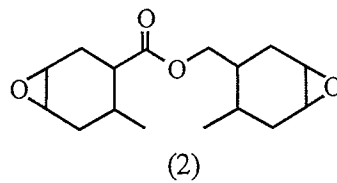
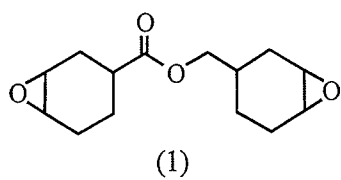
[0038] 上記二価の炭化水素基としては、例えば、炭素数1~18の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基、炭素数3~18の二価の脂環式炭化水素基等を挙げることができる。炭素数1~18の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基等を挙げることができる。炭素数3~18の二価の脂環式炭化水素基としては、例えば、1,2-シクロペンチレン基、1,3-シクロペンチレン基、シクロペンチリデン基、1,2-シクロヘキシレン基、1,3-シクロヘキシレン基、1,4-シクロヘキシレン基、シクロヘキシリデン基等のシクロアルキレン基(シクロアルキリデン基を含む)等を挙げることができる。

[0039] 上記炭素-炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基(「エポキシ化アルケニレン基」と称する場合がある)におけるアルケニレン基としては、例えば、ビニレン基、プロペニレン基、1-ブテニレン基、2-ブテニレン基、ブタジエニレン基、ペンテニレン基、ヘキセニレン基、ヘプテニレン基、オクテニレン基等の炭素数2~8の直鎖又は分岐鎖状のアルケニレン基等が挙げられる。特に、上記エポキシ化アルケニレン基としては、炭素-炭素二重結合の全部がエポキシ化されたアルケニレン基が好ましく、より好ましくは炭素-炭素二重結合の全部がエポキシ化された炭素数2~4のアルケニレン基である。

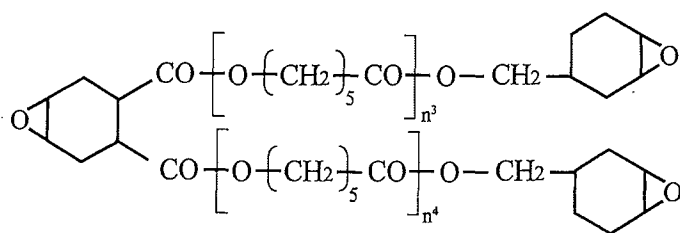
[0040] 上記連接基Xとしては、特に、酸素原子を含有する連接基が好ましく、具体的には、 $-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-COO-$ 、 $-O-$ 、 $-CONH-$ ；これらの基が複数個連接した基；これらの基の1又は2以上と上記二価の炭化水素基の1又は2以上とが連接した基等を挙げることができる。

[0041] 上記式(a)で表される脂環式エポキシ化合物の代表的な例としては、例えば、(3, 4, 3', 4' -ジエポキシ)ビスクロヘキシル、ビス(3, 4 -エポキシクロヘキシルメチル)エーテル、1, 2 -エポキシ-1, 2 -ビス(3, 4 -エポキシクロヘキサノ-1 -イル)エタン、2, 2 -ビス(3, 4 -エポキシクロヘキサノ-1 -イル)プロパン、1, 2 -ビス(3, 4 -エポキシクロヘキサノ-1 -イル)エタンや、下記式(1) ~ (10)で表される化合物等を挙げることができる。尚、下記式(5)中のLは炭素数1~8のアルキレン基であり、なかでも炭素数1~3の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。下記式(5)、(7)、(9)、(10)中の $n^1 \sim n^8$ は、同一又は異なって1~30の整数を表す。

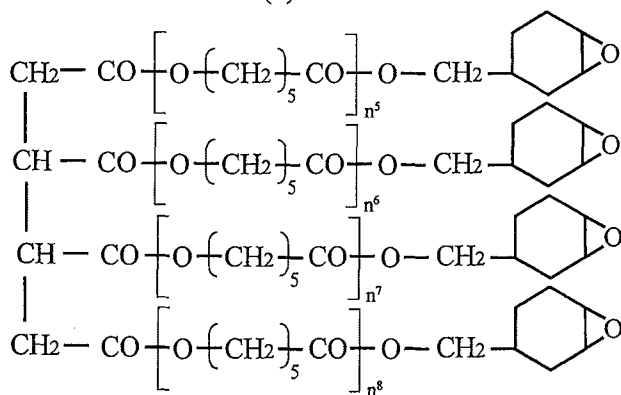
[化2]



[化3]



(9)



(10)

[0042] 脂環式エポキシ化合物としては、なかでも、封止用組成物の硬化性、耐熱性(ガラス転移温度)、低収縮性、低線膨張性の観点から、(3, 4, 3', 4' -ジエポキシ) ビシクロヘキシル及び／又はビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル) エーテルを使用することが好ましい。硬化物の防湿性の観点からは、特に(3, 4, 3', 4' -ジエポキシ) ビシクロヘキシルが好ましい。

[0043] 前記オキセタン環含有基を1分子中に2個以上有する化合物(以後、「オキセタン化合物」と称する場合がある)としては、例えば、4, 4' -ビス[(3-エチル-3-オキセタニル)メトキシメチル]ビフェニル、1, 4-ビス[(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル]ベンゼン、ビス{[1-エチル(3-オキセタニル)]メチル}エーテル、4, 4' -ビス[(3-エチル-3-オキセタニル)メトキシメチル]ビシクロヘキシル、1, 4-ビス[(3-エチル-3-オキセタニル)メトキシメチル]シクロヘキサン、3-エチル-3{[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]

シ]メチル} オキセタン、フェノールノボラック型オキセタン等を挙げることができる。例えば、商品名「ETERNACOLL OXBP」（宇部興産（株）製）等の市販品を使用することができる。

[0044] 前記エピスルフィド基を1分子中に2個以上有する化合物としては、例えば、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキサン、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオメチル）シクロヘキサン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]メタン、2, 2-ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]プロパン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]スルフィド、2, 5-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）-1, 4-ジチアン、2, 5-ビス（ β -エピチオプロピルチオエチルチオメチル）-1, 4-ジチアン等の脂環を有するエピスルフィド化合物；1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）ベンゼン、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオメチル）ベンゼン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]メタン、2, 2-ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]プロパン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]スルフィド、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]スルフィン、4, 4-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）ビフェニル等の芳香環を有するエピスルフィド化合物；2-（2- β -エピチオプロピルチオエチルチオ）-1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）プロパン、1, 2-ビス[（2- β -エピチオプロピルチオエチル）チオ]-3-（ β -エピチオプロピルチオ）プロパン、テトラキス（ β -エピチオプロピルチオメチル）メタン、1, 1, 1-トリス（ β -エピチオプロピルチオメチル）プロパン等のアルキルスルフィド型エピスルフィド化合物；9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]フェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]-3-メチルフェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]-3, 5-ジメチルフェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）

エトキシ] - 3 - フェニルフェニル} フルオレン、9, 9 - ビス {6 - [2 - (2, 3 - エピチオプロポキシ) エトキシ] - 2 - ナフチル} フルオレン、9, 9 - ビス {5 - [2 - (2, 3 - エピチオプロポキシ) エトキシ] - 1 - ナフチル} フルオレン等のフルオレン骨格を有するエピスルフィド化合物等を挙げることができる。

[0045] 前記ビニルエーテル基を1分子中に2個以上有する化合物（以後、「ビニルエーテル化合物」と称する場合がある）としては、例えば、イソソルバイドジビニルエーテル、オキシノルボルネンジビニルエーテル等の環状エーテル型ビニルエーテル化合物（オキシラン環、オキセタン環、オキソラン環等の環状エーテル基を有するビニルエーテル化合物）；ハイドロキノンジビニルエーテル等のアリールジビニルエーテル化合物；1, 4 - ブタンジオールジビニルエーテル等の鎖状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物；トリエチレングリコールジビニルエーテル等の鎖状エーテル型ビニルエーテル化合物；シクロヘキサンジビニルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジビニルエーテル等の環状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物を挙げることができる。

[0046] 成分（A）は、1種を単独で、又は2種以上を組み合わせで使用することができる。本発明の封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量%）に占める成分（A）の割合は、例えば30～80重量%程度、好ましくは40～60重量%である。成分（A）を上記範囲で含有すると、硬化の遅延を所望する間は硬化の進行を抑制することができ、加熱処理を施した後は速やかに硬化することができる点で好ましい。成分（A）の含有量が上記範囲を下回ると、加熱処理を施しても十分な硬化速度が得難くなる傾向がある。一方、成分（A）の含有量が上記範囲を上回ると、十分な硬化遅延効果が得難くなる傾向がある。

[0047] （成分（B））

本発明の成分（B）は光の照射によってカチオン種を発生してカチオン硬化性化合物の硬化反応を開始させる光カチオン重合開始剤である。光カチオ

ン重合開始剤は、光を吸収するカチオン部と酸の発生源となるアニオン部からなる。

[0048] 本発明の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ジアゾニウム塩系化合物、ヨードニウム塩系化合物、スルホニウム塩系化合物、ホスホニウム塩系化合物、セレンニウム塩系化合物、オキソニウム塩系化合物、アンモニウム塩系化合物、臭素塩系化合物等を挙げることができる。なかでも、スルホニウム塩系化合物を使用することが、硬化性に優れた硬化物を形成することができる点で好ましい。

[0049] スルホニウム塩系化合物のカチオン部としては、例えば、トリフェニルスルホニウムイオン、ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウムイオン、トリ-p-トリルスルホニウムイオン等のアリールスルホニウムイオン（特に、トリアリールスルホニウムイオン）を挙げることができる。

[0050] 光カチオン重合開始剤のアニオン部としては、例えば、 BF_4^- 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ 、 PF_6^- 、 $[(\text{Rf})_n\text{PF}_{6-n}]^-$ （ Rf ：水素原子の80%以上がフッ素原子で置換されたアルキル基、 n ：1～5の整数）、 AsF_6^- 、 SbF_6^- 、 SbF_5OH^- 等を挙げることができる。

[0051] 本発明の光カチオン重合開始剤としては、例えば、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニル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、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニル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 トリス(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニルフェニルスルホニウム トリス(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート、商品名「サイラキュアUVI-6970」、「

サイラキュアUVI-6974」、「サイラキュアUVI-6990」、「サイラキュアUVI-950」（以上、米国ユニオンカーバイド社製）、「イルガキュア250」、「イルガキュア261」、「イルガキュア264」（以上、BASF社製）、「オプトマーSP-150」、「オプトマーSP-151」、「オプトマーSP-170」、「オプトマーSP-171」（以上、(株)ADEKA製）、「CG-24-61」（チバ・ジャパン社製）、「DAICAT II」（(株)ダイセル製）、「UVAC1590」、「UVAC1591」（以上、ダイセル・サイテック(株)製）、「CI-2064」、「CI-2639」、「CI-2624」、「CI-2481」、「CI-2734」、「CI-2855」、「CI-2823」、「CI-2758」、「CIT-1682」（以上、日本曹達(株)製）、「PI-2074」（ローディア社製、テトラキス（ペンタフルオロフェニルボレート）トリルクミルヨードニウム塩）、「FFC509」（3M社製）、「BBI-102」、「BBI-101」、「BBI-103」、「MPI-103」、「TPS-103」、「MDS-103」、「DTS-103」、「NAT-103」、「NDS-103」（以上、ミドリ化学(株)製）、「CD-1010」、「CD-1011」、「CD-1012」（米国、Sartomer社製）、「CPI-100P」、「CPI-101A」（以上、サンアプロ(株)製）等を挙げることができる。これらは1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0052] 成分(B)の使用量(配合量)は本発明の封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物(2種以上含有する場合はその総量)100重量部に対して、例えば0.05~4重量部程度、好ましくは0.2~2重量部である。

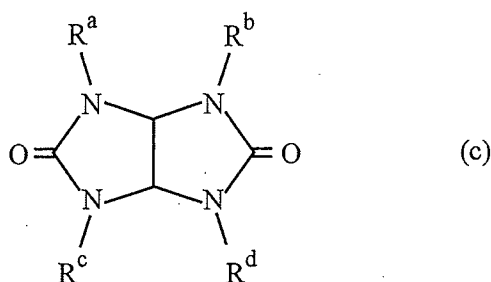
[0053] (成分(C))

本発明の封止用組成物は、成分(C)としてグリコールウリル化合物を含有する。グリコールウリル化合物は光カチオン重合開始剤から発生するカチオンに対して弱塩基性を示すため、光照射を施すことにより光カチオン重合開始剤から発生したカチオンをトラップする作用を有し、光照射後は、加熱

処理を施すまでは硬化の進行を抑制することができる。すなわち、硬化遅延効果を発揮する。また、光照射後に加熱処理を施すことによりトラップしたカチオンを放出し、封止用組成物の硬化を進行させる働きを有する。そのため、加熱処理を施すタイミングを調整することにより硬化の開始をコントロールすることができ、貼り合わせ作業の遅滞により貼り合わせが困難となる事態が発生することを防止することができる。グリコールウリル化合物は、1種を単独で、又は2種以上を組み合わせで使用することができる。

[0054] 本発明におけるグリコールウリル化合物としては、例えば、下記式(c)で表される化合物を挙げることができる。

[化4]



[0055] 上記式(c)中、 R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d は、同一又は異なって、水素原子、炭化水素基、複素環式基、及び炭化水素基と複素環式基から選択される2個以上の基が単結合又は連結基を介して結合した基を示す。

[0056] 前記連結基としては、例えば、二価の炭化水素基、炭素-炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、及びこれらが複数個連結した基等が挙げられる。

[0057] 前記炭化水素基には、脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、及び芳香族炭化水素基、及びこれらが単結合を介して結合した基が含まれる。

[0058] 前記脂肪族炭化水素基としては、 C_{1-20} 脂肪族炭化水素基が好ましく、例えば、 C_{1-20} （好ましくは C_{1-10} 、特に好ましくは C_{1-3} ）程度のアシル基；ビニル基、アリル基等の C_{2-20} （好ましくは C_{2-10} 、特に好ましくは C_{2-3} ）程度のアリル基； C_{2-20} （好ましくは C_{2-10} 、特に好ましくは C_{2-3} ）程度のアリル基； C_{2-20} （好ましくは C_{2-10} 、特に好ましくは C_{2-3} ）程度のアリル基。

ル基等を挙げることができる。

[0059] 前記脂環式炭化水素基としては、 C_{3-20} 脂環式炭化水素基が好ましく、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等の C_{3-20} （好ましくは C_{3-15} 、特に好ましくは C_{5-8} ）程度のシクロアルキル基；シクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等の C_{3-20} （好ましくは C_{3-15} 、特に好ましくは C_{5-8} ）程度のシクロアルケニル基；ノルボルニル基等の橋かけ環式炭化水素基等を挙げることができる。

[0060] 前記芳香族炭化水素基としては、 C_{6-14} （特に、 C_{6-10} ）芳香族炭化水素基が好ましく、例えば、フェニル基等を挙げることができる。

[0061] 前記複素環式基を構成する複素環には、芳香族性複素環及び非芳香族性複素環が含まれる。このような複素環としては、環を構成する原子に炭素原子と少なくとも1種のヘテロ原子（例えば、酸素原子、イオウ原子、窒素原子等）を有する3～10員環（好ましくは3～6員環）、及びこれらの縮合環を挙げることができる。具体的には、ヘテロ原子として酸素原子を含む複素環（例えば、オキシラン環、オキセタン環、フラン環、モルホリン環等）、ヘテロ原子としてイオウ原子を含む複素環（例えば、チオフェン環、チアゾール環等）、ヘテロ原子として窒素原子を含む複素環（例えば、ピロール環、ピロリジン環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、イソシアヌル環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、ピペリジン環、ピペラジン環等、インドール環、インドリン環、キノリン環、アクリジン環、ナフチリジン環、キナゾリン環、プリン環等）等を挙げることができる。複素環式基は前記複素環の構造式から1個の水素原子を除いた基である。

[0062] 前記炭化水素基と複素環式基から選択される2個以上の基が結合した基としては、例えば、グリシジル基等を挙げることができる。

[0063] 上記炭化水素基、複素環式基、及びこれらから選択される2個以上の基が結合した基は、種々の置換基〔ハロゲン原子、オキシ基、ヒドロキシル基、置換オキシ基（例えば、 C_{1-4} アルコキシ基、 C_{6-10} アリアルコキシ基、 C_{7-16} ア

ラルキルオキシ基、 C_{1-4} アシルオキシ基等）、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基（例えば、 C_{1-4} アルコキシカルボニル基、 C_{6-10} アリールオキシカルボニル基、 C_{7-16} アラルキルオキシカルボニル基等）、置換又は無置換カルバモイル基（例えば、カルバモイル、 C_{1-4} アルキル置換カルバモイル、 C_{6-10} アリール置換カルバモイル基）、シアノ基、ニトロ基、スルホ基、メルカプト基等]を有していてもよい。また、脂環式炭化水素基や芳香族炭化水素基の環には芳香族性又は非芳香族性の複素環が縮合していてもよい。

[0064] 前記 R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d としては、なかでも、水素原子、又はカチオン硬化性基との反応性を有する基（以後、「反応性基」と称する場合がある）を含有する基であることが好ましい。前記カチオン硬化性基には、成分（A）における脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、ビニルエーテル基、及び後述の成分（D）における他のエポキシ基、ビニル基、アリル基が含まれる。本発明においては、特に前記 R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d の2個以上（特に、4個）が反応性基を含有する基（特に、グリシジル基又はアリル基）であることが好ましい。

[0065] 本発明におけるグリコールウリル化合物としては、なかでも、グリシジル基又アリル基を有するグリコールウリル化合物が好ましく、特に、式（c）中の R^a 、 R^b 、 R^c 、 R^d の2個以上（特に、4個）がグリシジル基及び／又はアリル基である多官能グリコールウリル化合物が好ましい。

[0066] グリコールウリル化合物として、例えば、グリシジル基を有するグリコールウリル化合物は、グリコールウリルにエピクロルヒドリンを反応させることによって製造することができる。本発明においては、例えば、商品名「T A-G」、「T G-G」（以上、四国化成工業（株）製）等の市販品を使用することもできる。

[0067] 成分（C）の使用量（配合量）は、本発明の封止用組成物に含まれる成分（B）（2種以上含有する場合はその総量）1重量部に対して、例えば0.05～3重量部であり、上限は、好ましくは2.5重量部、特に好ましくは2.0重量部、最も好ましくは1.5重量部である。下限は、好ましくは0

。 1 重量部、特に好ましくは 0.3 重量部、最も好ましくは 0.5 重量部、とりわけ好ましくは 0.8 重量部である。成分 (C) を上記範囲で含有することが、十分な硬化遅延効果を得ることができる点で好ましい。成分 (C) の含有量が上記範囲を下回ると、十分な硬化遅延効果が得難くなる傾向がある。一方、成分 (C) の含有量が上記範囲を上回ると、加熱処理を施しても十分な硬化速度が得られ難くなる傾向があり、硬化不良を生じる場合がある。

[0068] (成分 (D))

本発明の封止用組成物は、成分 (D) として、上記成分 (A) 以外のカチオン硬化性化合物を 1 種又は 2 種以上含んでもよい。

[0069] 上記成分 (A) 以外のカチオン硬化性化合物としては、例えば、成分 (A) 以外のエポキシ基を有する化合物（以後、「他のエポキシ化合物」と称する場合がある）、ビニル基を有する化合物、アリル基を有する化合物等を挙げることができる。

[0070] 前記他のエポキシ化合物には、脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物、グリシジルエーテル系エポキシ化合物、グリシジルエステル系エポキシ化合物、グリシジルアミン系エポキシ化合物等が含まれる。

[0071] 上記脂環にエポキシ基が直接単結合で結合した化合物としては、例えば、2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの 1, 2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキサン付加物（商品名「EHP E 3150」、(株)ダイセル製）等を挙げることができる。

[0072] 上記グリシジルエーテル系エポキシ化合物としては、例えば、1, 6-ヘキサンジオール-ジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル等の脂肪族多価アルコールにエピクロルヒドリンを反応させて得られる脂肪族グリシジルエーテル系エポキシ化合物；ビスフェノール A 型エポキシ化合物、ビスフェノール F 型エポキシ化合物、ビスフェノール E 型エポキシ化合物、*o*-フェニルフェノールグリシジルエーテル、ビスフェノール型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、クレゾ

ールノボラック型エポキシ化合物、ビスフェノールAのクレゾールノボラック型エポキシ化合物、ナフタレン型エポキシ化合物、トリスフェノールメタン型エポキシ化合物等の芳香族グリシジルエーテル系エポキシ化合物；水素化ビスフェノールA型エポキシ化合物（2，2-ビス[4-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]プロパン、2，2-ビス[3，5-ジメチル-4-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]プロパン、及びこれらの多量体等のビスフェノールA型エポキシ化合物を水素化した化合物）、水素化ビスフェノールF型エポキシ化合物（ビス[o，o-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]メタン、ビス[o，p-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]メタン、ビス[p，p-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]メタン、ビス[3，5-ジメチル-4-（2，3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル]メタン、及びこれらの多量体等）、水添ビフェノール型エポキシ化合物、水添フェノールノボラック型エポキシ化合物、水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物、ビスフェノールAの水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物、水添ナフタレン型エポキシ化合物、水添トリスフェノールメタン型エポキシ化合物等の芳香族グリシジルエーテル系エポキシ化合物を水素化して得られる脂環式グリシジルエーテル系エポキシ化合物等を挙げることができる。例えば、商品名「YL-983U」（三菱化学（株）製）、「R1710」（プリンテック（株）製）、「SY-OPG」、「PEG」（以上、阪本薬品工業（株）製）等の市販品を使用することができる。

[0073] 前記ビニル基を有する化合物としては、例えば、スチレン、p-メチルスチレン、エチルスチレン、プロピルスチレン、イソプロピルスチレン、p-tert-ブチルスチレン等のスチレン系化合物；N-ビニルカルバゾール、N-ビニルピロリドン等の窒素ビニル化合物等を挙げることができる。

[0074] 前記アリル基を有する化合物としては、例えば、アリル（メタ）アクリレート、ジアリルマレエート、トリアリルシアヌレート、ジアリルフタレート等を挙げることができる。

[0075] 本発明においては、なかでも、室温での硬化速度が遅い点で、他のエポキシ化合物（特に好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物、最も好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有し、且つエステル結合やポリエーテル構造を有さない化合物；成分（A）に含まれる化合物を除く）を使用することが、アウトガスの発生を抑制しつつ、硬化遅延性をより安定化させる効果が得られる点で好ましい。

[0076] 本発明の封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量％）に占める成分（D）の割合は、例えば20～70重量％程度であり、上限は、好ましくは65重量％、特に好ましくは60重量％である。下限は、好ましくは30重量％、特に好ましくは40重量％、最も好ましくは50重量％である。成分（D）を上記範囲で含有することが、硬化遅延性を安定化させることができる点で好ましい。

[0077] また、本発明の封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物全量（100重量％）に占める成分（A）と成分（D）（特に好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物、最も好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有し、且つエステル結合やポリエーテル構造を有さない化合物）の合計量の割合は、例えば50重量％以上、好ましくは70重量％以上、特に好ましくは80重量％以上、最も好ましくは90重量％以上である。尚、上限は、100重量％である。

[0078] （添加剤）

本発明の封止用組成物は上記成分以外にも、必要に応じて添加剤を1種又は2種以上含有していても良い。前記添加剤としては、例えば、導電性材料、無機充填材、重合禁止剤、シランカップリング剤、酸化防止剤、光安定剤、可塑剤、レベリング剤、消泡剤、溶剤、紫外線吸収剤、イオン吸着体、顔料、蛍光体、離型剤等を挙げることができる。

[0079] 本発明の封止用組成物がより高い防湿性を求められる場合は、無機充填材を含有することが好ましい。前記無機充填材としては、例えば、シリカ、アルミナ、酸化亜鉛、酸化マグネシウム等の無機酸化物；炭酸カルシウム、炭

酸マグネシウム等の炭酸塩；ケイ酸カルシウム、ガラスビーズ、タルク、クレー、マイカ等のケイ酸塩等が挙げられる。

[0080] 無機充填材の形状は、特に限定されないが、例えば、球状（真球状、略真球状、楕円球状など）、多面体状、棒状（円柱状、角柱状など）、平板状、りん片状、不定形状等を挙げることができる。なかでも、より優れた防湿性を付与することができる点で、平板状の無機充填材を使用することが好ましい。

[0081] 本発明においては、中でもディスペンス時の塗布圧に対して直線的な応答性を有するため塗布性に優れる点で、タルク、マイカ等のケイ酸塩を使用することが好ましい。

[0082] 無機充填材の平均粒子径（レーザー回折・散乱法（マイクロトラック法）による）は、例えば0.001～30 μm 、好ましくは0.1～10 μm である。

[0083] 前記無機充填材の添加量としては、封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物100重量部に対して例えば10～60重量部程度、好ましくは20～45重量部である。無機充填材を上記範囲で添加することにより防湿性をより一層向上することができる。無機充填材の含有量が上記範囲を上回ると粘度が高くなりすぎて塗布性が低下する傾向がある。

[0084] 封止材に導電性が求められる場合は、本発明の封止用組成物は導電性材料を含有することが好ましく、特に、下記導電性繊維被覆粒子を含有することが、導電性と透明性とを兼ね備えた封止材を得ることができる点で好ましい。

[0085] （導電性繊維被覆粒子）

導電性繊維被覆粒子とは、粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質（本明細書では「導電性繊維」と称する場合がある）とを含む導電性繊維被覆粒子である。尚、導電性繊維被覆粒子において「導電性繊維が粒子状物質を被覆する」とは、導電性繊維が粒子状物質の表面の一部又は全部を覆った状態を意味する。導電性繊維被覆粒子は、導電性繊維が粒子状

物質の表面の少なくとも一部を被覆していればよく、例えば、被覆された部分よりも被覆されていない部分の方が多く存在していてもよい。また、必ずしも粒子状物質と導電性繊維とが接触している必要はないが、通常、導電性繊維の一部は粒子状物質の表面に接触している。

[0086] 図1は、本発明における導電性繊維被覆粒子の走査型電子顕微鏡像の一例である。図1に示すように、本発明における導電性繊維被覆粒子は、粒子状物質（図1における球状の物質）の少なくとも一部が導電性繊維（図1における繊維状の物質）により被覆された構成を有する。

[0087] （粒子状物質）

本発明における導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質は、粒子状の構造体である。

[0088] 上記粒子状物質を構成する材料（素材）は、特に限定されず、例えば、金属、プラスチック、ゴム、セラミック、ガラス、シリカ等の公知乃至慣用の材料が挙げられる。本発明においては、なかでも、透明プラスチック、ガラス、シリカ等の透明な材料を使用することが好ましく、特に、透明プラスチックを使用することが好ましい。

[0089] 上記透明プラスチックには熱硬化性樹脂及び熱可塑性樹脂等が含まれる。前記熱硬化性樹脂としては、例えば、ポリ（メタ）アクリレート樹脂；ポリスチレン樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリエステル樹脂；ポリウレタン樹脂；エポキシ樹脂；ポリスルホン樹脂；非晶性ポリオレフィン樹脂；ジビニルベンゼン、ヘキサトリエン、ジビニルエーテル、ジビニルスルホン、ジアリルカルビノール、アルキレンジ（メタ）アクリレート、オリゴ又はポリアルキレングリコールジ（メタ）アクリレート、アルキレントリ（メタ）アクリレート、アルキレンテトラ（メタ）アクリレート、アルキレンビス（メタ）アクリルアミド、両末端アクリル変性ポリブタジエンオリゴマー等の多官能性モノマーを単独で又はその他のモノマーと重合させて得られる網目状ポリマー；フェノールホルムアルデヒド樹脂、メラミンホルムアルデヒド樹脂、ベンゾグアナミンホルムアルデヒド樹脂、尿素ホルムアルデヒド樹脂等を

挙げることができる。前記熱可塑性樹脂としては、例えば、エチレン／酢酸ビニル共重合体、エチレン／酢酸ビニル／不飽和カルボン酸共重合体、エチレン／エチルアクリレート共重合体、エチレン／メチルメタクリレート共重合体、エチレン／（メタ）アクリル酸共重合体、エチレン／無水マレイン酸共重合体、エチレン／アミノアルキルメタクリレート共重合体、エチレン／ビニルシラン共重合体、エチレン／グリシジルメタクリレート共重合体、エチレン／ヒドロキシエチルメタクリレート共重合体、（メタ）アクリル酸メチル／スチレン共重合体、アクリロニトリル／スチレン共重合体等を挙げることができる。

[0090] 上記粒子状物質の形状は、特に限定されないが、例えば、球状（真球状、略真球状、楕円球状等）、多面体状、棒状（円柱状、角柱状等）、平板状、りん片状、不定形状等を挙げることができる。本発明においては、なかでも、導電性繊維被覆粒子を高い生産性で製造でき、本発明の封止用組成物中において均一に分散しやすく、硬化物全体へ容易に導電性を付与することができる点で、球状が好ましい。

[0091] 上記粒子状物質の平均アスペクト比は、特に限定されないが、20未満（例えば、1以上、20未満）が好ましく、特に好ましくは1～10である。平均アスペクト比が上記範囲を上回ると、少量の導電性繊維被覆粒子の配合によって本発明の封止用組成物に優れた導電性を発現させることが困難となる場合がある。尚、上記粒子状物質の平均アスペクト比は、例えば、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば、100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の粒子状物質について電子顕微鏡像を撮影し、これらの粒子状物質のアスペクト比を計測し、算術平均することにより測定できる。

[0092] また、上記粒子状物質の構成は特に限定されず、単層の構成であってもよいし、多層（複層）の構成であってもよい。また、上記粒子状物質は、中実粒子、中空粒子、多孔粒子等のいずれであってもよい。

[0093] 上記粒子状物質の平均粒子径は、特に限定されないが、0.1～100 μ

mが好ましく、特に好ましくは $1 \sim 50 \mu\text{m}$ 、最も好ましくは $5 \sim 30 \mu\text{m}$ である。平均粒子径が上記範囲を下回ると、導電性繊維被覆粒子を少量配合しただけでは優れた導電性を発現させることが困難となる場合がある。平均粒子径が上記範囲を上回ると、有機EL素子の封止層の厚みよりも平均粒子径が大きくなり、均一な厚みの塗膜を形成することが困難となる傾向がある。尚、上記粒子状物質の平均粒子径は、レーザー回折・散乱法によるメディアン径(d_{50})である。

[0094] 上記粒子状物質は透明であることが好ましい。具体的には、上記粒子状物質の可視光波長領域における全光線透過率は、特に限定されないが、70%以上が好ましく、特に好ましくは80%以上である。全光線透過率が上記範囲を下回ると、硬化物（導電性繊維被覆粒子を含む）の透明性が低下する場合がある。

[0095] 尚、上記粒子状物質の可視光波長領域における全光線透過率は、該粒子状物質の原料であるモノマーをガラス間で $80 \sim 150^\circ\text{C}$ の温度領域で重合させて厚さ1mmの平板を得、当該平板の可視光波長領域における全光線透過率をJIS K7361-1に準拠して測定することにより求められる。また、ガラスのみの全光線透過率を同様に測定し、得られた値をブランク（全光線透過率100%）とする。

[0096] また、上記粒子状物質は柔軟性を有することが好ましく、各粒子の10%圧縮強度は例えば $10 \text{ kgf}/\text{mm}^2$ 以下、好ましくは $5 \text{ kgf}/\text{mm}^2$ 以下、特に好ましくは $3 \text{ kgf}/\text{mm}^2$ 以下である。10%圧縮強度が上記範囲である粒子状物質を含む導電性繊維被覆粒子は加圧することにより微細な凹凸構造に追従して変形する。そのため、該導電性繊維被覆粒子を含有する本発明の封止用組成物を微細な凹凸構造を有する形状に硬化した場合、該粒子状物質を細部にまで行き渡らせることができ、導電性が不良となる部分の発生を防止することができる。

[0097] 上記粒子状物質の屈折率は、特に限定されないが、 $1.4 \sim 2.7$ が好ましく、特に好ましくは $1.5 \sim 1.8$ である。尚、上記粒子状物質の屈折率

は、該粒子状物質がプラスチック粒子の場合には、粒子状物質の原料であるモノマーをガラス間で80～150℃の温度領域で重合させ、縦20mm×横6mmの試験片を切り出し、中間液としてモノブロモナフタレンを使用し、プリズムと該試験片とを密着させた状態で、多波長アッペ屈折計（商品名「DR-M2」、（株）アタゴ製）を使用し、25℃、ナトリウムD線での屈折率を測定することにより求めることができる。

[0098] また、上記粒子状物質は、本発明の封止用組成物（導電性繊維被覆粒子は含まない）の硬化物との屈折率（25℃、波長589.3nmにおける）の差が小さいことが好ましく、導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と本発明の封止用組成物（導電性繊維被覆粒子は含まない）の硬化物の屈折率差の絶対値は、例えば0.1以下（好ましくは0.05以下、特に好ましくは0.02以下）である。

すなわち、本発明の有機EL素子封止用組成物に含まれる導電性繊維被覆粒子は、下記式を満たすことが好ましい。

$$|\text{粒子状物質の屈折率} - \text{有機EL素子封止用組成物（導電性繊維被覆粒子は含まない）の硬化物の屈折率}| \leq 0.1$$

[0099] 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と本発明の封止用組成物（導電性繊維被覆粒子は含まない）の硬化物の屈折率差を上記範囲にすることにより、透明性に優れ、ヘイズが例えば10%以下（好ましくは6%以下、さらに好ましくは3%以下）、全光線透過率が90%以上（好ましくは93%以上）の硬化物を得ることができる。尚、硬化物のヘイズは、JIS K7136に準拠して測定することができる。また、硬化物の可視光波長領域における全光線透過率（厚さ：10μm、波長：450nm）は、JIS K7361-1に準拠して測定することができる。

[0100] さらに、本発明における導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質は、シャープな粒度分布を有すること（＝粒子径のバラツキが少ないこと）が、より少ない使用量で優れた導電性を付与することができる点で好ましく、変動係数（CV値）が50%以下であることが好ましい。尚、変動係数とは、標

準偏差を平均粒子径で除した値であり、粒子サイズの均一性の指標となる値である。

[0101] 上記粒子状物質は、公知乃至慣用の方法により製造でき、その製造方法は特に限定されない。例えば、金属粒子の場合には、CVD法や噴霧熱分解法等の気相法や、化学的還元反応による湿式法等により製造できる。また、プラスチック粒子の場合には、例えば、上記で例示した樹脂（ポリマー）を構成するモノマーを懸濁重合法、乳化重合法、シード重合法、分散重合法等の公知の重合方法により重合する方法等により製造できる。

[0102] 本発明においては市販品を使用することもできる。熱硬化性樹脂から成る粒子状物質としては、例えば、商品名「テクポリマー MBXシリーズ」、「テクポリマー BMXシリーズ」、「テクポリマー ABXシリーズ」、「テクポリマー ARXシリーズ」、「テクポリマー AFXシリーズ」（以上、積水化成品工業（株）製）、商品名「ミクロパールSP」、「ミクロパールSI」（以上、積水化学工業（株）製）；熱可塑性樹脂から成る粒子状物質としては、例えば、商品名「ソフトビーズ」（住友精化（株）製）、商品名「デュオマスター」（積水化成品工業（株）製）等を使用することができる。

[0103] （繊維状の導電性物質（導電性繊維））

導電性繊維被覆粒子を構成する導電性繊維は、導電性を有する繊維状の構造体（線状構造体）である。上記導電性繊維の形状は繊維状（ファイバー状）であればよく、特に限定されないが、その平均アスペクト比は例えば10以上、好ましくは20～5000、特に好ましくは50～3000、最も好ましくは100～1000である。平均アスペクト比が上記範囲を下回ると、導電性繊維被覆粒子を少量配合しただけでは優れた導電性を発現させることが困難となる場合がある。上記導電性繊維の平均アスペクト比は、粒子状物質の平均アスペクト比と同様の方法で求められる。尚、上記導電性繊維における「繊維状」の概念には、「ワイヤー状」、「ロッド状」等の各種の線状構造体の形状も含まれる。また、本明細書においては、平均太さが100

0 nm以下の繊維を「ナノワイヤ」と称する場合がある。

[0104] 上記導電性繊維の平均太さ（平均直径）は、特に限定されないが、1～400 nmが好ましく、特に好ましくは10～200 nm、最も好ましくは50～150 nmである。平均太さが上記範囲を下回ると、導電性繊維同士が凝集しやすく、導電性繊維被覆粒子の製造が困難となる場合がある。一方、平均太さが上記範囲を上回ると、粒子状物質を被覆することが困難となり、効率的に導電性繊維被覆粒子を製造することが困難となる場合がある。上記導電性繊維の平均太さは、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、これらの導電性繊維の太さ（直径）を計測し、算術平均することにより求められる。

[0105] 上記導電性繊維の平均長さは、特に限定されないが、1～100 μmが好ましく、特に好ましくは5～80 μm、最も好ましくは10～50 μmである。平均長さが上記範囲を下回ると、粒子状物質を被覆することが困難となり、効率的に導電性繊維被覆粒子を製造することができなくなる場合がある。一方、平均長さが上記範囲を上回ると、導電性繊維同士がからまりやすくなる。上記導電性繊維の平均長さは、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、これらの導電性繊維の長さを計測し、算術平均することにより求められる。尚、導電性繊維の長さについては、直線状に伸ばした状態で計測すべきであるが、現実には屈曲しているものが多いため、電子顕微鏡像から画像解析装置を用いて導電性繊維の投影径及び投影面積を算出し、円柱体を仮定して下記式から算出するものとする。

$$\text{長さ} = \text{投影面積} / \text{投影径}$$

[0106] 上記導電性繊維を構成する材料（素材）は、導電性を有する素材であればよく、例えば、金属、半導体、炭素材料、導電性高分子等を挙げることができる。

- [0107] 上記金属としては、例えば、金、銀、銅、鉄、ニッケル、コバルト、錫、及びこれらの合金等の公知乃至慣用の金属を挙げることができる。本発明においては、なかでも、導電性に優れる点で銀が好ましい。
- [0108] 上記半導体としては、例えば、硫化カドミウム、セレン化カドミウム等の公知乃至慣用の半導体を挙げることができる。
- [0109] 上記炭素材料としては、例えば、炭素繊維、カーボンナノチューブ等の公知乃至慣用の炭素材料を挙げることができる。
- [0110] 上記導電性高分子としては、例えば、ポリアセチレン、ポリアセン、ポリパラフェニレン、ポリパラフェニレンビニレン、ポリピロール、ポリアニリン、ポリチオフェン、及びこれらの誘導体（例えば、共通するポリマー骨格にアルキル基、ヒドロキシル基、カルボキシル基、エチレンジオキシ基等の置換基を有するもの；具体的には、ポリエチレンジオキシチオフェン等）等を挙げることができる。本発明においては、なかでも、ポリアセチレン、ポリアニリン及びその誘導体、ポリピロール及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体が好ましい。尚、上記導電性高分子には、公知乃至慣用のドーパント（例えば、ハロゲン、ハロゲン化物、ルイス酸等のアクセプター；アルカリ金属、アルカリ土類金属等のドナー等）が含まれていてもよい。
- [0111] 本発明の導電性繊維としては導電性ナノワイヤが好ましく、特に、金属ナノワイヤ、半導体ナノワイヤ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、及び導電性高分子ナノワイヤからなる群より選択される少なくとも一種の導電性ナノワイヤが好ましく、特に導電性に優れる点で銀ナノワイヤが最も好ましい。
- [0112] 上記導電性繊維は、公知乃至慣用の製造方法により製造することができる。例えば、上記金属ナノワイヤは、液相法や気相法等により製造することができる。より具体的には、銀ナノワイヤは、例えば、Mater.Chem.Phys.2009, 114, 333-338や、Adv.Mater.2002, 14, p833-837、Chem.Mater.2002, 14, p4736-4745、特表2009-505358号公報に記載の方法により製造することができる。また、金ナノワイヤは、例えば、特開2006-233252号公報に記載の方法により製造することができる。また、銅ナノワイヤは、例え

ば、特開2002-266007号公報に記載の方法により製造することができる。また、コバルトナノワイヤは、例えば、特開2004-149871号公報に記載の方法により製造することができる。更に、半導体ナノワイヤは、例えば、特開2010-208925号公報に記載の方法により製造することができる。上記炭素繊維は、例えば、特開平06-081223号公報に記載の方法により製造することができる。上記カーボンナノチューブは、例えば、特開平06-157016号公報に記載の方法により製造することができる。上記導電性高分子ナノワイヤは、例えば、特開2006-241334号公報、特開2010-76044号公報に記載の方法により製造することができる。上記導電性繊維としては、市販品を使用することも可能である。

[0113] 本発明における導電性繊維被覆粒子は、上述の粒子状物質と導電性繊維とを溶媒中で混合することにより製造することができる。導電性繊維被覆粒子の製造方法として、具体的には、下記の(1)～(4)の方法等を挙げることができる。

(1) 上記粒子状物質を溶媒に分散させた分散液(「粒子分散液」と称する)と、上記導電性繊維を溶媒に分散させた分散液(「繊維分散液」と称する)とを混合し、必要に応じて溶媒を除去して、本発明における導電性繊維被覆粒子(又は導電性繊維被覆粒子の分散液)を得る。

(2) 上記粒子分散液に上記導電性繊維を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、導電性繊維被覆粒子(又は導電性繊維被覆粒子の分散液)を得る。

(3) 上記繊維分散液に上記粒子状物質を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、導電性繊維被覆粒子(又は導電性繊維被覆粒子の分散液)を得る。

(4) 溶媒に上記粒子状物質及び上記導電性繊維を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、導電性繊維被覆粒子(又は導電性繊維被覆粒子の分散液)を得る。

[0114] 本発明における導電性繊維被覆粒子を製造する際に使用される溶媒としては、例えば、水；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール等のアルコール；アセトン、メチルエチルケトン（MEK）、メチルイソブチルケトン（MIBK）等のケトン；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチル等のエステル；N，N－ジメチルホルムアミド、N，N－ジメチルアセトアミド等のアミド；アセトニトリル、プロピオニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル等を挙げることができる。これらは一種を単独で、又は二種以上を組み合わせ（即ち、混合溶媒として）使用することができる。本発明においては、なかでも、アルコール、ケトンが好ましい。

[0115] また、上記カチオン硬化性化合物（成分（A）等）が液状のものであれば、これを溶媒として使用することも可能である。液状の硬化性化合物を溶媒として使用する場合は、溶媒を除去する工程を経ることなく、硬化性化合物と導電性繊維被覆粒子とを含む封止用組成物を得ることができる。

[0116] 上記溶媒の粘度は、特に限定されないが、導電性繊維被覆粒子を効率的に製造することができる点で、25℃における粘度が10cP以下（例えば、0.1～10cP）であることが好ましく、特に好ましくは0.5～5cPである。尚、溶媒の25℃における粘度は、例えば、E型粘度計（商品名「VISCONIC」、（株）トキメック製）を用いて測定することができる（ローター：1°34'×R24、回転数：0.5rpm、測定温度：25℃）。

[0117] 上記溶媒の1気圧における沸点は、導電性繊維被覆粒子を効率的に製造することができる点で、200℃以下が好ましく、特に好ましくは150℃以下、最も好ましくは120℃以下である。

[0118] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記粒子状物質の含有量は、溶媒100重量部に対して、例えば0.1～50重量部程度、好まし

くは1～30重量部である。粒子状物質の含有量を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に生成することができる。

[0119] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記導電性繊維の含有量は、溶媒100重量部に対して、例えば0.1～50重量部程度、好ましくは1～30重量部である。導電性繊維の含有量を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に生成することができる。

[0120] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記粒子状物質と上記導電性繊維の割合は、粒子状物質の表面積と導電性繊維の投影面積との比〔表面積／投影面積〕が、例えば100／1～100／100程度、好ましくは100／10～100／50となるような割合であることが好ましい。上記比を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に製造することができる。尚、上記粒子状物質の表面積は、BET法（JIS Z 8830に準拠）により求めた比表面積に粒子状物質の質量（使用量）を乗ずる方法により求められる。また、上記導電性繊維の投影面積は、上述のように、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、画像解析装置を用いてこれらの導電性繊維の投影面積を算出し、算術平均することにより求められる。

[0121] 粒子状物質と導電性繊維とを混合後、溶媒を除去することによって、本発明における導電性繊維被覆粒子を固体として得ることができる。溶媒の除去は、特に限定されず、例えば、加熱、減圧留去等の公知乃至慣用の方法により実施できる。尚、溶媒は必ずしも除去する必要はなく、例えば、本発明における導電性繊維被覆粒子の分散液としてそのまま使用することもできる。

[0122] 本発明における導電性繊維被覆粒子は、上述のように、原料（粒子状物質及び導電性繊維）を溶媒中で混合することによって製造することができ、複雑な工程を必要としないため、製造コストの面で有利である。このように、溶媒中での混合という簡便な方法により製造することができるのは、原材料として使用する繊維状の導電性物質（特に、平均アスペクト比が10以上の

導電性繊維)の表面エネルギーが大きく、表面エネルギーを下げて安定化するために優先的に粒子表面へ付着乃至吸着することによるものと推測される。

[0123] 特に、粒子状物質と導電性繊維の組み合わせとして、平均粒子径 A [μm] の粒子状物質と平均長さ $A \times 0.5$ [μm] 以上 (好ましくは $A \times 1.0$ [μm] 以上、特に好ましくは $A \times 1.5$ [μm] 以上) の導電性繊維を使用することによって、より効率的に本発明における導電性繊維被覆粒子を製造することができる。特に、真球状又は略真球状の粒子状物質の場合には、平均周長 B [μm] の粒子状物質と平均長さ $(B \times 1/6)$ [μm] 以上 (好ましくは、 B [μm] 以上) の導電性繊維を使用することが好ましい。尚、上記粒子状物質の平均周長は、電子顕微鏡 (SEM、TEM) を用いて十分な数 (例えば 100 個以上、好ましくは 300 個以上; 特に、100 個、300 個等) の粒子状物質について電子顕微鏡像を撮影し、これらの粒子状物質の周長を計測し、算術平均することにより求められる。

[0124] 本発明における導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と導電性繊維の割合は、粒子状物質の表面積と導電性繊維の投影面積との比 [表面積/投影面積] が、例えば $100/1 \sim 100/100$ 程度 (特に $100/10 \sim 100/50$) となるような割合であることが、硬化物の透明性を確保しつつ、より効率的に導電性を付与することができる点で好ましい。尚、上記粒子状物質の表面積及び導電性繊維の投影面積は、それぞれ上述の方法により求められる。

[0125] 本発明における導電性繊維被覆粒子は上記構成を有するため、本発明の封止用組成物に少量を添加することで優れた導電性 (特に、厚み方向への導電性) を付与することができ、透明性と導電性に優れた硬化物を形成することができる。

[0126] そして、本発明における導電性繊維被覆粒子が柔軟性を有する場合 (例えば、10% 圧縮強度が 3 kgf/mm^2 以下の場合) は、当該導電性繊維被覆粒子を含む封止用組成物を微細な凹凸を有する形状に成形した際、導電性繊維

維被覆粒子が前記凹凸構造に追従して変形し細部にまで行き渡るため、導電性が不良となる部分の発生を防止することができ、導電性能に優れた硬化物を形成することができる。

[0127] 封止用組成物における粒子状物質（導電性繊維被覆微粒子に含まれる粒子状物質）の含有量（配合量）は、カチオン硬化性化合物 100 重量部に対して、例えば 0.09～6.0 重量部程度である。前記粒子状物質の含有量が上記範囲を下回ると、用途によっては、得られる硬化物の導電性が不十分となる場合がある。一方、前記粒子状物質の含有量が上記範囲を上回ると、得られる硬化物の透明性が低下する傾向がある。

[0128] 封止用組成物における前記粒子状物質の含有量は、封止用組成物の全量（100 体積％）に対して、例えば 0.02～7 体積％程度である。

[0129] 封止用組成物における導電性繊維の含有量（配合量）は、硬化性化合物 100 重量部に対して、例えば 0.01～1.0 重量部程度である。前記導電性繊維の含有量が上記範囲を下回ると、用途によっては、得られる硬化物の導電性が不十分となる場合がある。一方、前記導電性繊維の含有量が上記範囲を上回ると、得られる硬化物の透明性が低下する傾向がある。

[0130] 封止用組成物における前記導電性繊維の含有量は、封止用組成物の全量（100 体積％）に対して、例えば 0.01～1.1 体積％である。

[0131] 本発明の封止用組成物は、成分（A）、成分（B）、成分（C）、及び必要に応じて成分（D）、添加剤（例えば、導電性繊維被覆粒子等）を、自公転式攪拌脱泡装置、ホモジナイザー、プラネタリーミキサー、3本ロールミル、ビーズミル等の一般的に知られる混合用機器を使用して均一に混合することにより製造することができる。尚、各成分は、同時に混合してもよいし、逐次混合してもよい。

[0132] 本発明の封止用組成物（特に、ダムアンドフィル工法により有機EL素子を封止する際に、フィル材として使用する場合）の粘度（25℃、せん断速度：20（1/s））は、例えば10～10000 mPa・s程度、好ましくは20～3000 mPa・s、特に好ましくは30～2500 mPa・s

、最も好ましくは $30 \sim 1000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ である。

[0133] 本発明の封止用組成物は、光照射を施し、その後加熱処理を施すことにより硬化することができる。光照射は、厚み $100 \mu\text{m}$ の塗膜の場合、水銀ランプ等で $500 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ 以上の光を照射することが好ましい。また、加熱処理は、オーブン等により、例えば $40 \sim 200^\circ\text{C}$ （特に好ましくは $60 \sim 180^\circ\text{C}$ 、最も好ましくは $80 \sim 150^\circ\text{C}$ ）で、 $10 \sim 200$ 分間（特に好ましくは $30 \sim 120$ 分間）加熱することが好ましい。

[0134] 本発明の封止用組成物はカチオントラップ作用を有する上記成分（C）を含有するため、光照射を施してもカチオン重合開始剤から発生したカチオンは成分（C）にトラップされるため、光照射後、加熱処理を施すまではカチオン重合の進行が抑制される。すなわち、硬化遅延効果が発揮される。そして、光照射後に加熱処理を施すことで、成分（C）にトラップされたカチオンが放出され、カチオン硬化性化合物のカチオン重合が進行して、硬化を完了させることができる。すなわち、加熱処理を施すタイミングを調整することにより硬化の進行を任意にコントロールすることができる。

[0135] 本発明の封止用組成物に $200 \text{ W} / \text{cm}$ の水銀ランプで紫外線を照射（照射量： $2000 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）直後の粘度（ 25°C 、せん断速度： $20 (1 / \text{s})$ ）は、例えば $10 \sim 150000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 程度、好ましくは $20 \sim 50000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 、特に好ましくは $30 \sim 30000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ である。

[0136] 本発明の封止用組成物に $200 \text{ W} / \text{cm}$ の水銀ランプで紫外線を照射（照射量： $2000 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）後30分の粘度（ 25°C 、せん断速度： $20 (1 / \text{s})$ ）は、例えば $10 \sim 500000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 程度、好ましくは $20 \sim 300000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 、特に好ましくは $30 \sim 100000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ である。

[0137] 本発明の封止用組成物に $200 \text{ W} / \text{cm}$ の水銀ランプで紫外線を照射（照射量： $2000 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）直後から照射後30分までの粘度上昇度は、例えば10倍以下（例えば $1 \sim 10$ 倍）、好ましくは8倍以下、より好ましくは3倍以下、特に好ましくは2倍以下、最も好ましくは1.5倍以下である。

- 。
- [0138] そして、上記方法により硬化して得られる硬化物は水蒸気透過性が低く（すなわち、防湿性に優れ）、硬化物（厚さ：100 μ m）の透湿量は、例えば150 g/m²・day・atm以下、好ましくは100 g/m²・day・atm以下、特に好ましくは80 g/m²・day・atm以下、最も好ましくは50 g/m²・day・atm以下である。尚、前記透湿量は、JIS L 1099およびJIS Z 0208に準じて、厚み100 μ mに調整した硬化物の透湿量を、60℃、90%RHの条件下で測定した値である。
- [0139] また、上記方法により硬化して得られる硬化物（60mg）の硬化遅延剤由来のアウトガス量は90ppm以下程度（好ましくは70ppm以下、特に好ましくは50ppm以下）であり、低アウトガス性を示す。尚、アウトガス量はヘッドスペースGC/MSにより測定することができる。
- [0140] また、本発明の封止用組成物が上記導電性繊維被覆粒子を含有する場合、それを硬化して得られる硬化物は導電性に優れ、電気抵抗率（25℃、1気圧における）は0.1 Ω ・cm～10M Ω ・cm程度、好ましくは0.1 Ω ・cm～1M Ω ・cmである。
- [0141] 本発明の封止用組成物は、硬化遅延性を有し硬化開始時期を任意に調整できる。そのため封止用組成物に光照射し、その後有機EL素子に貼り合わせて加熱することにより有機EL素子をUVに曝すことなく、且つ貼り合わせが困難となる場合を生じることなく有機EL素子を封止することができる。また、本発明の封止用組成物は低アウトガス性及び防湿性を併せて有する硬化物を形成することができる。そのため、本発明の封止用組成物は、例えば、ダムアンドフィル工法により有機EL素子を封止する際に、フィル材として好適に使用することができ、本発明の封止用組成物を使用すれば、水分やアウトガスから有機EL素子を保護することができ、水分やアウトガスによって引き起こされる有機EL素子の劣化を防止することができる。
- [0142] [有機ELデバイス]
- 本発明の有機ELデバイスは、本発明の封止用組成物の硬化物を備えた有

機エレクトロルミネッセンスデバイスであり、有機ＥＬ素子を本発明の封止用組成物で封止して得られる。

[0143] 本発明の封止用組成物を使用すれば、下記工程を経て有機ＥＬ素子（特に、トップ・エミッション型有機ＥＬ素子）を封止することにより、光照射による素子の劣化を防止しつつ、素子を封止することができ、長寿命で信頼性の高い有機ＥＬデバイスを提供することができる。尚、光照射、及び加熱処理方法は上記方法により行うことができる。

工程１：本発明の有機ＥＬ素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程２：有機ＥＬ素子を設置した基板の素子設置面に、工程１を経て得られた光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[0144] 本発明の有機ＥＬ素子の封止方法としては、より詳細には、下記方法１、２を挙げることができる。

<方法１：図２参照>

工程１－１：リッド上に本発明の封止用組成物を塗布して塗膜／リッド積層体を形成する

工程１－２：塗膜に光照射を施す

工程２－１：基板上に有機ＥＬ素子を設置し、有機ＥＬ素子設置面に光照射後の塗膜／リッド積層体を塗膜面が素子設置面に相対するように貼り合わせる

工程２－２：加熱処理を施すことにより塗膜を硬化させる

[0145] <方法２>

工程１－１’：剥離紙等の表面に本発明の封止用組成物を塗布して封止用シート又はフィルムを形成する

工程１－２’：封止用シート又はフィルムに光照射を施す

工程２－１：基板上に有機ＥＬ素子を設置し、有機ＥＬ素子設置面側に光照射後の封止用シート又はフィルムを介してリッドを貼り合わせる

工程２－２：加熱処理を施すことにより封止用シート又はフィルムを硬化

させる

[0146] 前記リッド（蓋）や基板としては、防湿性基材を使用することが好ましく、例えば、ソーダガラス、無アルカリガラス等のガラス基材；ステンレス、アルミニウム等の金属基材；三フッ化ポリエチレン、ポリ三フッ化塩化エチレン（PCTFE）、ポリビニリデンフルオライド（PVDF）、PCTFEとPVDFとの共重合体、PVDFとポリフッ化塩化エチレンとの共重合体等のポリフッ化エチレン系ポリマー、ポリイミド、ポリカーボネート、ジシクロペンタジエン等のシクロオレフィン系樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリエチレン、ポリスチレン等の樹脂基材等を挙げることができる。尚、有機EL素子は基板上に設置され、リッド（蓋）上には設置されない。

[0147] 前記有機EL素子には、陽極／発光層／負極の積層体が含まれる。必要に応じてSiN膜等のパッシベーション膜を設けてもよい。

[0148] 本発明の封止用組成物からなる塗膜は、例えば、リッド（蓋）上にダム材を塗布してダムを形成し、そのダム内にディスペンサー等を使用して本発明の封止用組成物を吐出することにより形成することができる。塗膜の厚みは、素子を水分等から保護する目的を達成することができる範囲であれば特に制限されることはない。

[0149] また、導電性繊維被覆粒子を含有する封止用組成物をディスペンサー等の吐出機で封止用組成物を吐出する際には、導電性繊維被覆粒子を封止用組成物中に高分散した状態で吐出することが好ましく、例えば、スクリー等の回転駆動構造を有する吐出機を使用して、スクリーの回転により封止用組成物を吐出するスクリー式吐出方法等により、攪拌しつつ吐出することが好ましい。スクリーの回転速度やスクリーの羽のサイズ等は、封止用組成物の粘度や、それに含まれる導電性繊維被覆粒子のサイズ等に応じて適宜調整することが好ましい。

[0150] 上記方法によれば、UVに曝することなく有機EL素子を封止することができ、有機EL素子がUVに曝されることにより引き起こされる劣化を有さな

い。そして、低アウトガス性及び防湿性を併せて有する硬化物で有機EL素子を封止して、有機EL素子を保護することができる。従って、上記方法により有機EL素子を封止して得られる有機ELデバイスは、長寿命で信頼性が高い。

実施例

[0151] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。尚、粘度は、レオメーター（商品名「Physica MCR301」、Anton Paar社製）を使用して測定した、25℃、せん断速度が20（1/s）の時の粘度である。

[0152] 実施例1

表に記載の処方に従って各成分を自転・公転ミキサー（商品名「あわとり練太郎 ARE-310」、（株）シンキー製）内に投入し、攪拌して封止用組成物（1）を得た。

[0153] ガラス基板上に、得られた封止用組成物（1）を塗布して塗膜（1）（厚さ：100μm）を形成し、水銀ランプで紫外線を照射（照射量：1600mJ/cm²）した。紫外線照射前、紫外線照射直後、紫外線照射後30分の粘度を測定し、紫外線照射直後から紫外線照射後30分の間の粘度上昇度を下記式から算出した。

粘度上昇度＝紫外線照射後30分の間の粘度／紫外線照射直後の粘度

その後、紫外線照射後の塗膜（1）を100℃で1時間加熱して硬化物（1）を得た（ポストキュア）。

得られた硬化物（1）について、下記方法によりアウトガス量及び水蒸気透過性を評価した。

[0154] 実施例2～9、比較例1～5

表に記載の通りに処方を変更した以外は実施例1と同様にして封止用組成物を得、塗膜を得、硬化物を得た。尚、実施例6ではポストキュアの温度を150℃に変更した。

得られた硬化物について、下記方法によりアウトガス量及び水蒸気透過性

を評価した。

[0155] <アウトガス量>

実施例及び比較例で得られた硬化物の硬化遅延剤由来のアウトガス量（単位：ppm）は、バイアル瓶に硬化物60mgを入れ、UV照射（2000mJ/cm²）して100℃の条件下で1時間静置した後、バイアル瓶中のアウトガス量を測定した。尚、トルエン標準液〔標準物質としてトルエン：100ppm、溶媒としてヘキサン：60mg〕を用いて検量線を作成した。また、測定機器としては、商品名「HP-6890N」（ヒューレットパッカート社製）を使用し、カラムは商品名「DB-624」（アジレント社製）を使用した。

[0156] <水蒸気透過性>

実施例及び比較例で得られた硬化物の水蒸気透過性は、硬化物（厚み：100μm）の透湿量（g/m²・day・atm）を、JIS L 1099及びJIS Z 0208（カップ法）に準じて、60℃、90%RH条件下で測定して評価した。

[0157]

[表1]

表1		実施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
封止用組成物	硬化性化合物	a-1	40				40	15	40	40
		a-2			40					
		a-3				70				
		a-4					30			
		a-5						35		
	光カチオン重合開始剤	b-1	2	2	2	2	2	2		
		b-2							2	
		b-3								2
	硬化遅延剤	c-1	3	2.7		3	2	3	2.7	3
		c-2			2					
		c-3								
		c-4								
		c-5								
	他の硬化性化合物	d-1		10	10			19	10	10
		d-2	60			30				
		d-3		50	50		30	31	50	50
粘度 (mPa・s)	UV照射前	540	188	130	564	2280	1558	132	192	214
	UV照射直後	28900	14400	2200	93600	40500	24700	4650	32400	92400
	UV照射後30分	46000	19800	3110	103000	42000	36300	6730	45300	119000
	UV照射後の粘度上昇度	1.59	1.38	1.41	1.10	1.04	1.47	1.45	1.40	1.29
	硬化遅延剤由来のアウトガス量(ppm)	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し
透湿度 (g/m ² ・day・atm)		33	22	17	45	81	35	78	28	21

[0158]

[表2]

表2

			比較例				
			1	2	3	4	5
封止用 組成物	硬化性 化合物	a-1		20	10	40	40
		a-2					
		a-3					
		a-4					
		a-5					
	光カチオン 重合開始剤	b-1	2	2	2	2	2
		b-2					
		b-3					
	硬化遅延剤	c-1	2				
		c-2					
		c-3		6			
		c-4			60		
		c-5				10	50
	他の 硬化性 化合物	d-1	60	30	30	10	
		d-2					
		d-3	40	50		50	10
粘度 (mPa・s)	UV照射前		1170000	307	1220	186	495
	UV照射直後		1460000	658000	451000	硬化	硬化
	UV照射後30分		1420000	硬化	硬化	硬化	硬化
	UV照射後の粘度上昇度		0.97	-	-	-	-
	硬化遅延剤由来のアウトガス量(ppm)		検出無し	636	1155	検出無し	検出無し
透湿度 (g/m ² ・day・atm)			硬化せず	24	187	16	23

[0159] 実施例及び比較例で用いた化合物は、以下の通りである。

(カチオン硬化性化合物)

a-1: (3, 4, 3', 4' -ジエポキシ) ビシクロヘキシル

a-2: ビス (3, 4 -エポキシシクロヘキシルメチル) エーテル

a-3: 4, 4' -ビス [(3 -エチル -3 -オキセタニル) メトキシメチル]
] ビフェニル、商品名「ETERNACOLL OXBP」、宇部興産 (株)
製

a-4: エピスルフィド末端フルオレン化合物、商品名「CS-500」、大
阪ガスケミカル (株) 製

a-5: オキシノルボルネンジビニルエーテル、商品名「ONB-DVE」、

(株) ダイセル製

(光カチオン重合開始剤)

b-1: 4-(4-ビフェニリルチオ)フェニル-4-ビフェニリルフェニル
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

b-2: ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウム トリス
(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート

b-3: 4-(4-ビフェニリルチオ)フェニル-4-ビフェニリルフェニル
スルホニウム ヘキサフルオロアンチモネート

(硬化遅延剤)

c-1: 1, 3, 4, 6-テトラグリシジルグリコールウリル、商品名「TG
-G」、四国化成工業(株)製

c-2: 1, 3, 4, 6-テトラアリルグリコールウリル、商品名「TA-G」
、四国化成工業(株)製

c-3: クラウンエーテル、商品名「18-クラウン-6」、日本曹達(株)
製

c-4: ビスフェノールAビス(トリエチレングリコールグリシジルエーテル)
エーテル、商品名「リカレジンBEO-60E」、新日本理化(株)製

c-5: 1, 3, 5-トリス(4, 5-エポキシペンチル)-1, 3, 5-トリ
アジン-2, 4, 6-トリオン、商品名「TEPIC-VL」、日産化学
工業(株)製

(他のカチオン硬化性化合物)

d-1: 液状ビスフェノールFジグリシジルエーテル、商品名「YL-983
U」、三菱化学(株)製

d-2: ビスフェノールEジグリシジルエーテル、商品名「R1710」、プ
リンテック(株)製

d-3: o-フェニルフェノールグリシジルエーテル、商品名「SY-OPG」
、阪本薬品工業(株)製

産業上の利用可能性

[0160] 本発明の有機EL素子封止用組成物は、塗膜にUVを照射しても加熱処理を施すまでは硬化の進行を抑制することができ、たとえ貼り合わせ作業の進行が滞っても接着性が失われて貼り合わせが困難となることが無い。そして、貼り合わせ後に加熱処理を施すことにより硬化を進行させることができ、有機EL素子をUVに直に曝すことなく封止することができる。また、本発明の有機EL素子封止用組成物は、防湿性を有すると共に低アウトガス性の硬化物を形成することができ、水分やアウトガスによる有機EL素子の劣化を防止することができる。

そのため、本発明の有機EL素子封止用組成物や本発明の有機EL素子封止用組成物から成るシート又はフィルムは、トップ・エミッション型有機EL素子の封止用途に好適に使用することができる。

符号の説明

- [0161]
- | | |
|---|---------|
| 1 | リッド |
| 2 | ダム |
| 3 | ディスペンサー |
| 4 | 封止用組成物 |
| 5 | 基板 |
| 6 | 陰極 |
| 7 | 発光層 |
| 8 | 陽極 |

請求の範囲

- [請求項1] 下記成分（A）、成分（B）、及び成分（C）を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物
- 成分（B）：光カチオン重合開始剤
- 成分（C）：グリコールウリル化合物
- [請求項2] 成分（C）がグリシジル基もしくはアリル基を含有するグリコールウリル化合物である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- [請求項3] 成分（B）1重量部に対して、成分（C）を0.05～3重量部含有する請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- [請求項4] さらに、下記成分（D）を含有する請求項1～3の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 成分（D）：グリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（成分（A）に含まれる化合物を除く）
- [請求項5] さらに、平均粒子径が0.001～30 μ mの無機充填材を含有する請求項1～4の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- [請求項6] さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する請求項1～5の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子
- [請求項7] トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である請求項1～6の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項8] 下記工程 1 及び 2 を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

工程 1 : 請求項 1 ～ 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

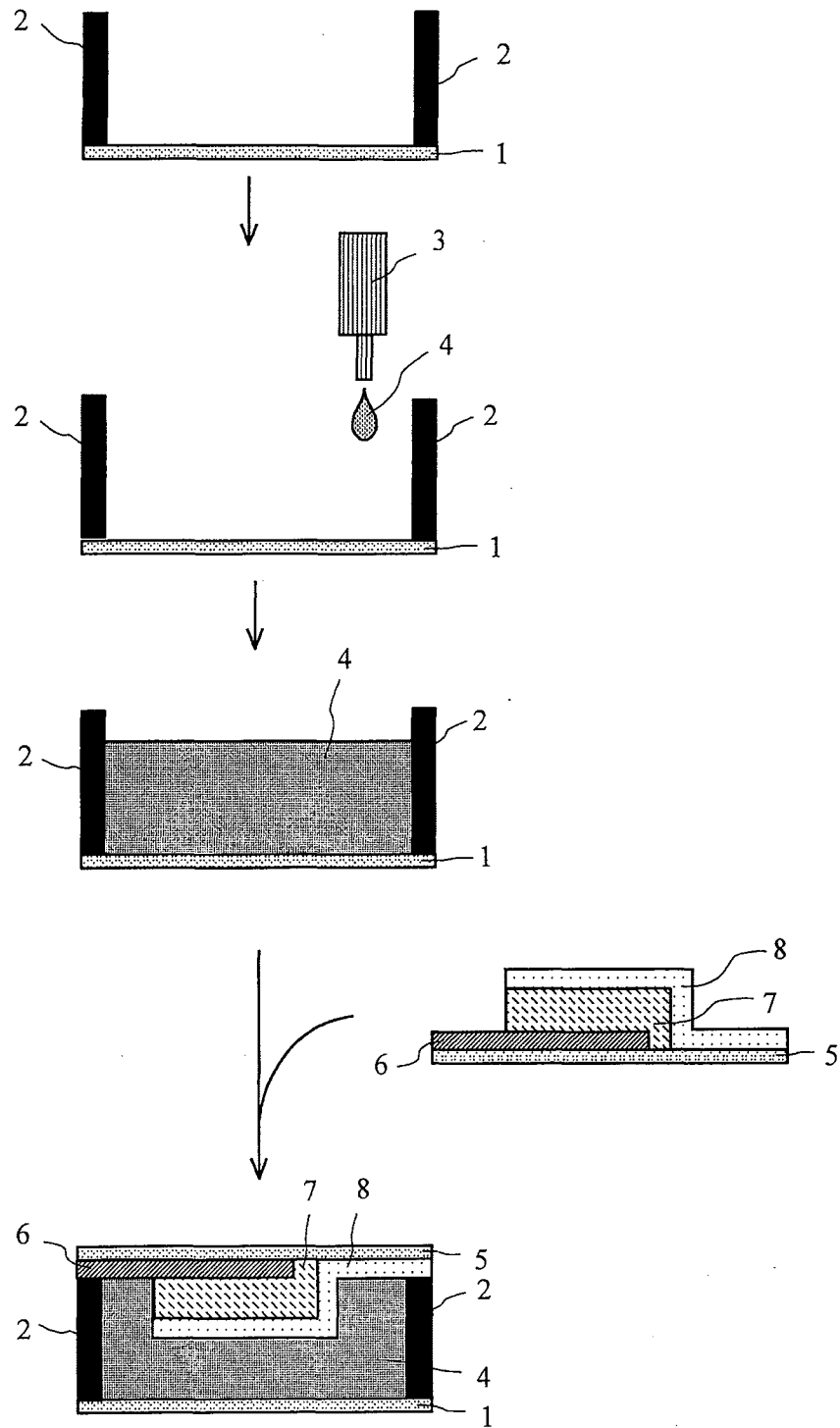
工程 2 : 有機エレクトロルミネッセンス素子を設置した基板の素子設置面に、工程 1 を経て得られた光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[請求項9] 請求項 1 ～ 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物の硬化物を備えた有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/085653

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/04(2006.01)i, C08G65/18(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H05B33/04, C08G65/18, C08L63/00, H01L51/50, H05B33/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	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	JP 2015-120889 A (Shikoku Kasei Co., Ltd.), 02 July 2015 (02.07.2015), claims; paragraphs [0024], [0037], [0040], [0047], [0048] to [0056] (Family: none)	1-9
Y	WO 2015/111525 A1 (Daicel Corp.), 30 July 2015 (30.07.2015), claims & JP 5914778 B2 & KR 10-2016-0011228 A & CN 105557068 A & TW 201533144 A	1-9

☒ 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
17 February 2017 (17.02.17)

Date of mailing of the international search report
28 February 2017 (28.02.17)

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/JP2016/085653

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/87714 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 18 June 2015 (18.06.2015), entire text & JP 5798259 B1 & JP 2016-15324 A & CN 105706264 A & KR 10-2016-0096538 A & TW 201527502 A	1-9
A	WO 2015/111635 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 30 July 2015 (30.07.2015), entire text & US 2017/0009071 A1 & CN 105916937 A & KR 10-2016-0111377 A & TW 201533145 A	1-9

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, C08G65/18(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H05B33/04, C08G65/18, C08L63/00, H01L51/50, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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	JP 2015-120889 A (四国化成工業株式会社) 2015.07.02, [特許請求の範囲], [0024], [0037], [0040], [0047], [0048]-[0056] (ファミリーなし)	1-9
Y	WO 2015/111525 A1 (株式会社ダイセル) 2015.07.30, [特許請求の範囲] & JP 5914778 B2 & KR 10-2016-0011228 A & CN 105557068 A & TW 201533144 A	1-9

☑ 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

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

17.02.2017

国際調査報告の発送日

28.02.2017

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)

中村 博之

20

3709

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

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	WO 2015/87714 A1 (積水化学工業株式会社) 2015.06.18, 全文 & JP 5798259 B1 & JP 2016-15324 A & CN 105706264 A & KR 10-2016-0096538 A & TW 201527502 A	1-9
A	WO 2015/111635 A1 (電気化学工業株式会社) 2015.07.30, 全文 & US 2017/0009071 A1 & CN 105916937 A & KR 10-2016-0111377 A & TW 201533145 A	1-9