

(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  
2022年10月6日(06.10.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/210785 A1

(51) 国際特許分類:

C08F 2/44 (2006.01) G09F 9/30 (2006.01)  
C08F 2/50 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01)  
C08G 59/00 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)  
C08L 63/00 (2006.01) H05B 33/04 (2006.01)

HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/015693

(22) 国際出願日: 2022年3月29日(29.03.2022)

(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 2021-059446 2021年3月31日(31.03.2021) JP

(71) 出願人: デンカ株式会社 (DENKA COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 Tokyo (JP).

(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).

(72) 発明者: 三浦 学 (MIURA Manabu); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 石田 泰則 (ISHIDA Yasunori); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 栗村 啓之 (KURIMURA Hiroyuki); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 山下 幸彦 (YAMASHITA Yukihiko); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (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,

(54) Title: COMPOSITION, CURED BODY, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 組成物、硬化体及び有機EL表示装置

(57) Abstract: The present invention provides a composition containing a polymerizable compound, inorganic microparticles, and a photopolymerization initiator, wherein the inorganic microparticle content is 30 vol% or more, and the curing depth is 100 μm or more when subjected to irradiation with light having a wavelength of 365 nm and an irradiation intensity of 600 mJ/cm<sup>2</sup> and left for 30 minutes at 80°C.

(57) 要約: 重合性化合物と、無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有し、前記無機微粒子の含有量が30体積%以上であり、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の光照射を行い、80°Cで30分静置したときの硬化深度が、100μm以上である、組成物。



WO 2022/210785 A1

## 明 細 書

**発明の名称**：組成物、硬化体及び有機EL表示装置

### 技術分野

[0001] 本発明は、組成物、硬化体及び有機EL表示装置に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、有機エレクトロルミネッセンス（有機EL）表示素子や有機薄膜太陽電池素子等の有機薄膜素子を用いた有機光デバイスの研究が進められている。

[0003] 有機EL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薄膜構造体を有する。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が結合して自己発光を行う。有機EL表示素子は、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、より薄型化が可能であり、かつ、直流低電圧駆動が可能であるという利点を有する。

[0004] ところが、このような有機EL表示素子は、有機発光材料層や電極が外気に曝されるとその発光特性が急激に劣化し寿命が短くなるという問題があった。したがって、有機EL表示素子の安定性及び耐久性を高めることを目的として、有機EL表示素子においては、有機発光材料層や電極を大気中の水分や酸素から遮断する封止技術が不可欠となっている。

[0005] 例えば、特許文献1には、上面発光型有機EL表示素子等において、有機EL表示素子基板の間に光硬化性の封止剤を満たし、光を照射して封止する方法が開示されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2001-357973号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0007] 近年、有機EL表示装置（特に有機ELテレビ）の大型化に伴い、より高い防湿性及び長期信頼性を実現可能な封止材が求められている。

[0008] 本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、防湿性及び長期信頼性に優れた封止材を形成可能な、組成物を提供することを目的とする。また、本発明は、当該組成物の硬化体、及び、当該組成物を用いて形成される封止構造を備える有機EL表示装置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

[0009] 本発明は、例えば、下記<1>~<18>に関する。

<1> 重合性化合物と、無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有し、前記無機微粒子の含有量が30体積%以上であり、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の光照射を行い、80℃で30分静置したときの硬化深度が、100μm以上である、組成物。

<2> 前記重合性化合物が、炭素-炭素二重結合及び環状エーテルからなる群より選択される少なくとも一種の重合性基を有する、<1>に記載の組成物。

<3> 前記無機微粒子が、前記重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ との差の絶対値（ $|n_1 - n_2|$ ）が0.5以下となる屈折率 $n_2$ を有する無機微粒子である、<1>又は<2>に記載の組成物。

<4> 前記無機微粒子の屈折率 $n_2$ が1.4以上である、<1>~<3>のいずれかに記載の組成物。

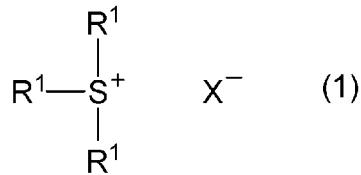
<5> 前記無機微粒子の平均円形度が0.7以上1.0以下である、<1>~<4>のいずれかに記載の組成物。

<6> 前記無機微粒子が、球状シリカ及び球状アルミナからなる群より選択される少なくとも一種を含む、<1>~<5>のいずれかに記載の組成物。

<7> 厚さ100μmあたりの全光線透過率 $T_0$ （%）と全光線反射率 $R_0$ （%）との和（ $T_0 + R_0$ ）が、50%以上である、<1>~<6>のいずれかに記載の組成物。

<8> 前記光重合開始剤が、下記式(1)で表される化合物を含む、<1>~<7>のいずれかに記載の組成物。

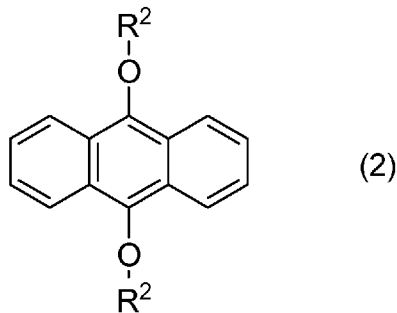
[化1]



[式(1)中、R<sup>1</sup>は水素原子、置換基を有していてもよいアルキル基又は置換基を有していてもよいアリール基を示し、X<sup>-</sup>は一価のアニオンを示す。複数存在するR<sup>1</sup>は互いに同一でも異なってもよい。]

<9> 下記式(2)で表される光増感剤を更に含有する、<1>~<8>のいずれかに記載の組成物。

[化2]



[式(2)中、R<sup>2</sup>は置換基を有していてもよいアルキル基を示す。複数存在するR<sup>2</sup>は互いに同一でも異なってもよい。]

<10> JIS Z0208に準拠して、温度85℃、相対湿度85%の条件下で測定される厚さ100μmあたり透湿度が100g/(m<sup>2</sup>・24時間)以下の硬化体を形成するための組成物である、<1>~<9>のいずれかに記載の組成物。

<11> 温度85℃、相対湿度85%、24時間での吸水率が3%以下の硬化体を形成するための組成物である、<1>~<10>のいずれかに記載の組成物。

<12> 有機EL表示素子用封止剤である、<1>~<11>のいずれか

に記載の組成物。

<13> ダム・フィル方式のダム形成用封止剤である、<1>~<12>のいずれかに記載の組成物。

<14> 重合性化合物と、前記重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ との差の絶対値 ( $|n_1 - n_2|$ ) が0.5以下となる屈折率 $n_2$ を有する無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有し、前記無機微粒子の含有量が30体積%以上であり、前記光重合開始剤の含有量が、前記重合性化合物100質量部に対して0.3質量部以上であり、前記無機微粒子の平均円形度が0.7以上1.0以下である、組成物。

<15> <1>~<14>のいずれかに記載の組成物の硬化体。

<16> 有機EL表示素子と、前記有機EL表示素子を封止する、ダム及びフィル剤からなる封止構造と、を備え、前記ダムが、<15>に記載の硬化体を含む、有機EL表示装置。

<17> 有機ELテレビである、<16>に記載の有機EL表示装置。

## 発明の効果

[0010] 本発明によれば、防湿性及び長期信頼性に優れた封止材を形成可能な、組成物が提供される。また、本発明によれば、当該組成物の硬化体、及び、当該組成物を用いて形成される封止構造を備える有機EL表示装置が提供される。

## 発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。

[0012] 本実施形態の組成物は、重合性化合物と、無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有する。本実施形態の組成物において、無機微粒子の含有量は30体積%以上である。本実施形態の組成物は、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の光照射を行い、80℃で30分静置したときの硬化深度が、100μm以上である。

[0013] 本実施形態の組成物によれば、防湿性及び長期信頼性に優れた封止材を形成することができる。このため、本実施形態の組成物は、封止剤（好ましく

は有機EL表示素子用封止剤、特に好ましくは有機ELテレビ用封止剤)として好適に用いることができる。また、本実施形態の組成物は、ダム・フィル方式(ダム及びフィル剤からなる封止構造)におけるダムを形成するための、ダム形成用封止剤として特に好適に用いることができる。

[0014] 本実施形態の組成物により上記効果が奏される理由は必ずしも限定されないが、以下のとおり考えられる。本実施形態の組成物によれば、樹脂材料と比較して透湿性が低い無機微粒子を、多く含む硬化体が形成される。また、組成物中の無機微粒子の含有量を多くすると、無機微粒子により光照射が阻害されて、硬化体中の未反応モノマー(未反応の重合性化合物)の量が増加する傾向がある。しかし、本実施形態では、上述の硬化深度を有するため、封止時の光照射によって未反応モノマーが十分に低減され、未反応モノマーに起因する防湿性及び信頼性の低下が抑制される。換言すると、本実施形態では、十分な無機微粒子を配合しつつ、所定の硬化深度を有する組成物とすることで、優れた防湿性及び長期信頼性が実現されると考えられる。

[0015] 本実施形態において、重合性化合物は、重合性基を有する化合物ということができる。重合性化合物は、1種を単独で用いてよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0016] 重合性化合物としては、炭素-炭素二重結合及び環状エーテルからなる群より選択される少なくとも一種の重合性基を有することが好ましい。

[0017] 炭素-炭素二重結合は、ラジカル重合性又はカチオン重合性を有する炭素-炭素二重結合であればよい。炭素-炭素二重結合を有する化合物としては、例えば、(メタ)アクリロイル基、ビニル基、アリル基、ビニルエーテル基、ビニルエステル基等の重合性基を有する化合物が挙げられ、これらのうち、(メタ)アクリロイル基を有する化合物((メタ)アクリレート化合物)が好ましい。

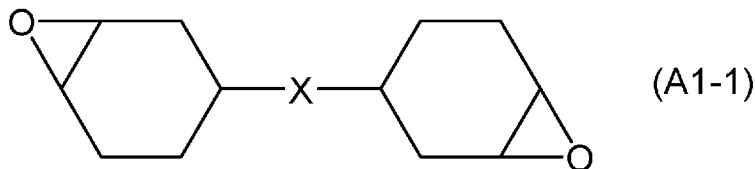
[0018] (メタ)アクリレート化合物としては、例えば、(メタ)アクリロイル基を一つ有する単官能(メタ)アクリレート、(メタ)アクリロイル基を2つ以上有する多官能(メタ)アクリレート等が挙げられる。

- [0019] 単官能（メタ）アクリレートとしては、例えば、アルキル（メタ）アクリレート（例えばエチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート等）、ベンジル（メタ）アクリレート、エトキシ化 $\text{-O-}$ フェニルフェノール（メタ）アクリレート等が挙げられる。
- [0020] 多官能（メタ）アクリレートとしては、例えば、アルカンジオールジ（メタ）アクリレート（例えば1, 6-ヘキサジオールジ（メタ）アクリレート、1, 10-デカンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 12-ドデカンジオールジ（メタ）アクリレート等）、トリシクロデカンジメタノールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。
- [0021] 環状エーテルは、カチオン重合性を有する環状エーテルであればよい。環状エーテルを有する化合物としては、例えば、エポキシ化合物、オキセタン化合物等が挙げられる。
- [0022] エポキシ化合物としては、例えば、エポキシ基を有する脂環式化合物（脂環式エポキシ化合物）、エポキシ基を有する芳香族化合物（芳香族エポキシ化合物）、エポキシ基を有する非環式化合物（非環式エポキシ化合物）等が挙げられる。これらの化合物は、1種以上を選択して使用してもよい。
- [0023] 脂環式エポキシ化合物としては、例えば、少なくとも1個のシクロアルケン環（例えば、シクロヘキセン環、シクロペンテン環、ピネン環等）を有する化合物を、過酸化水素、過酸等の適当な酸化剤でエポキシ化することによって得られる化合物又はその誘導体が挙げられる。また、脂環式エポキシ化合物としては、例えば、芳香族エポキシ化合物（例えば、ビスフェノールA型エポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物等）を水素化して得られる水素化エポキシ化合物も挙げられる。
- [0024] 脂環式エポキシ化合物としては、3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルアルキル（メタ）アクリレート（例えば、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル（メタ）アクリレート等）、（3, 3'、4, 4'-ジエポキシ）ビスシクロヘキシル、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、

水添ビスフェノールF型エポキシ樹脂等が挙げられる。

[0025] 脂環式エポキシ化合物の中では、1, 2-エポキシシクロヘキサン構造を有する脂環式エポキシ化合物が好ましい。1, 2-エポキシシクロヘキサン構造を有する脂環式エポキシ化合物の中では、下記式(A1-1)で表される化合物が好ましい。

[化3]



[0026] 式(A1-1)中、Xは単結合又は連結基(1以上の原子を有する2価の基)を示す。

[0027] 連結基は、2価の炭化水素基、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、アミド結合、又は、これらが複数個連結した基であることが好ましい。

[0028] Xは、連結基が好ましい。連結基としては、エステル結合を有する基が好ましい。連結基としてエステル結合を有する基を有する化合物としては、例えば、3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレートが挙げられる。

[0029] 脂環式エポキシ化合物の分子量は、硬化体の防湿性がより向上する点及び組成物の保存安定性がより向上する点で、1000以下が好ましく、450以下がより好ましく、400以下が更に好ましく、300以下が一層好ましく、100~280が特に好ましい。すなわち、脂環式エポキシ化合物の分子量は、例えば、100~1000、100~450、100~400、100~300又は100~280であってよい。

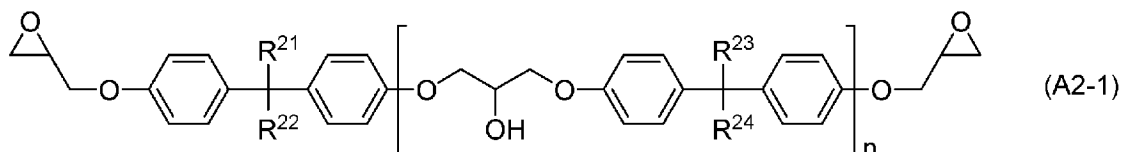
[0030] 脂環式エポキシ化合物が分子量分布を有する場合は、脂環式エポキシ化合物の数平均分子量が上記範囲であることが好ましい。なお、本明細書中、数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)により下記測定条件で測定される、ポリスチレン換算の値を示す。

- ・溶媒（移動相）：THF
- ・脱気装置：ERMA社製ERC-3310
- ・ポンプ：日本分光社製PU-980
- ・流速：1.0ml/min
- ・オートサンプラ：東ソー社製AS-8020
- ・カラムオープン：日立製作所製L-5030
- ・設定温度：40℃
- ・カラム構成：東ソー社製TSKguardcolumnMP (XL) 6.0mmID×4.0cm 2本、及び東ソー社製TSK-GELMULTI PORE HXL-M 7.8mmID×30.0cm 2本、計4本
- ・検出器：RI 日立製作所製L-3350
- ・データ処理：SIC480データステーション

[0031] 芳香族エポキシ化合物としては、モノマー、オリゴマー又はポリマーのいずれも使用可能であり、テトラブロモビスフェノールAジグリシジルエーテル等の臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂、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、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂、ノボラックフェノール型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、フェニルグリシジルエーテル及びこれらの変性物等が挙げられる。

[0032] 芳香族エポキシ化合物としては、ビスフェノール構造を有する芳香族エポキシ化合物が好ましい。ビスフェノール構造を有する芳香族エポキシ化合物の中では、下記式（A2-1）で表される化合物が好ましい。

[0033] [化4]



[0034] 式（A2-1）中、 $n$ は0～30を示し、 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 及び $R^{24}$ は、

それぞれ独立に水素原子又は置換基を有していてもよい炭素数1～5のアルキル基を表す。nは0、1以上でもよい。

[0035]  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 及び $R^{24}$ は、好ましくは水素原子又はメチル基である。 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 及び $R^{24}$ は、それぞれ同一でも異なってもよいが、同一であることが好ましい。

[0036] ビスフェノール構造を有する芳香族エポキシ化合物は、ビスフェノールA型エポキシ樹脂及びビスフェノールF型エポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0037] 芳香族エポキシ化合物の分子量は、硬化体の防湿性がより向上する点で、100～5000が好ましく、150～1000がより好ましく、200～450が更に好ましい。すなわち、芳香族エポキシ化合物の分子量は、例えば、100～5000、100～1000、100～450、150～5000、150～1000、150～450、200～5000、200～1000又は200～450であってよい。

[0038] 芳香族エポキシ化合物が分子量分布を有する場合は、芳香族エポキシ化合物の数平均分子量が上記範囲であることが好ましい。なお、本明細書中、数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により上述した測定条件で測定される、ポリスチレン換算の値を示す。

[0039] 非環式エポキシ化合物としては、例えば、アルキレングリコールのジグリシジルエーテル（例えば、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1，6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル等）、多価アルコールのポリグリシジルエーテル（例えば、グリセリン又はそのアルキレンオキサイド付加体のジ又はトリグリシジルエーテル等）、ポリアルキレングリコールのジグリシジルエーテル（例えば、ポリエチレングリコール又はそのアルキレンオキサイド付加体のジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコール又はそのアルキレンオキサイド付加体のジグリシジルエーテル等）等が挙げられる。ここで、アルキレンオキサイドとしては、エチレンオ

キサイド、プロピレンオキサイド等が挙げられる。

[0040] オキセタン化合物としては、特に限定されないが、3-エチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン（東亜合成（株）製商品名アロンオキセタンOXT-101等）、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（同OXT-121等）、3-エチル-3-（フェノキシメチル）オキセタン（同OXT-211等）、ジ（1-エチル-（3-オキセタニル））メチルエーテル（同OXT-221等）、3-エチル-3-（2-エチルヘキシロキシメチル）オキセタン（同OXT-212等）等が挙げられる。オキセタン化合物とは、分子内に1個以上のオキセタン環を有する化合物をいう。

[0041] 重合性化合物としては、炭素-炭素二重結合及び環状エーテルの両方を有する化合物を用いることもできる。炭素-炭素二重結合及び環状エーテルを有する重合性化合物としては、例えば、グリシジル（メタ）アクリレート、エポキシシクロヘキシル（メタ）アクリレート、3-エチルオキセタン3-イルメチル（メタ）アクリレート、エポキシ-4-ビニルシクロヘキサン、3-エチルオキセタン3-イルメチルビニルエーテル等が挙げられる。

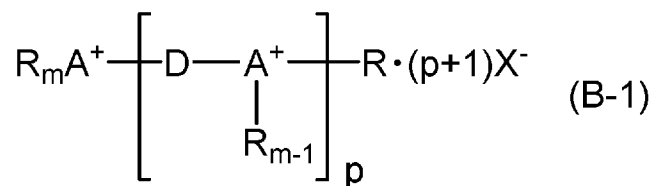
[0042] 光重合開始剤としては、光カチオン重合開始剤、光ラジカル重合開始剤、光アニオン重合開始剤等が挙げられる。本実施形態の組成物が、炭素-炭素二重結合を有する重合性化合物を含有する場合、光重合開始剤は光ラジカル重合開始剤を含むことが好ましい。また、本実施形態の組成物が、環状エーテルを有する重合性化合物を含有する場合、光重合開始剤は光カチオン重合開始剤を含むことが好ましい。

[0043] 光カチオン重合開始剤は特に限定されず、例えば、アリールスルホニウム塩誘導体（例えば、ダウケミカル社製のサイラキュアUVI-6990、サイラキュアUVI-6974、アデカ社製のアデカオプトマーSP-150、アデカオプトマーSP-152、アデカオプトマーSP-170、アデカオプトマーSP-172、サンアプロ社製のCPI-100P、CPI-101A、CPI-200K、CPI-210S、CPI-310B、CPI

−310FG、CPI−400S、LW−S1、ダブルボンド社製のチバキ  
 キュア−1190等)、アリアルヨードニウム塩誘導体(例えば、チバスペシ  
 ャリティーケミカルズ社製のイルガキュア250、ローディア・ジャパン社  
 製のRP−2074)、アレン−イオン錯体誘導体、ジアゾニウム塩誘導体  
 、トリアジン系開始剤及びその他のハロゲン化物等の酸発生剤等が挙げられ  
 る。

[0044] 光カチオン重合開始剤としては、例えば、式(B−1)で表されるオニウ  
 ム塩が挙げられる。

[化5]



[式(B−1)中、

AはVIA族〜VIIA族の原子価mの元素を示し、

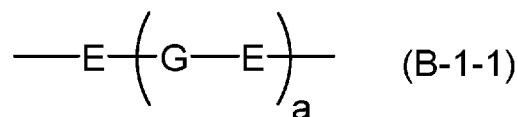
mは1〜2を示し、

pは0〜3を示し、

RはAに結合している有機基を示し、

Dは下記式(B−1−1)：

[化6]



で表される2価の基(式(B−1−1)中、Eは2価の基を示し、Gは−O  
 −、−S−、−SO−、−SO<sub>2</sub>−、−NH−、−NR′−、−CO−、−C  
 OO−、−CONH−、炭素数1〜3のアルキレン又はフェニレン基(R′  
 は炭素数1〜5のアルキル基又は炭素数6〜10のアリール基)を示し、a  
 は0〜5を示す。a+1個のE及びa個のGはそれぞれ同一であっても異な  
 ってもよい。)を示し、

X<sup>-</sup>はオニウムの対イオンである。)

[0045] 式(B-1)のオニウムイオンは特に限定されず、例えば、4-(フェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、ビス[4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル]スルフィド、ビス[4-{ビス[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{4-[ビス(4-フルオロフェニル)スルホニオ]フェニル}スルフィド、4-(4-ベンゾイル-2-クロロフェニルチオ)フェニルビス(4-フルオロフェニル)スルホニウム、4-(4-ベンゾイルフェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9,10-ジヒドロアントラセン-2-イルジ-p-トリルスルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9,10-ジヒドロアントラセン-2-イルジフェニルスルホニウム、2-[(ジ-p-トリル)スルホニオ]チオキサントン、2-[(ジフェニル)スルホニオ]チオキサントン、4-[4-(4-tert-ブチルベンゾイル)フェニルチオ]フェニルジ-p-トリルスルホニウム、4-(4-ベンゾイルフェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、5-(4-メトキシフェニル)チアアンスレニウム、5-フェニルチアアンスレニウム、ジフェニルフェナシルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルベンジルスルホニウム、2-ナフチルメチル(1-エトキシカルボニル)エチルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルフェナシルスルホニウム、オクタデシルメチルフェナシルスルホニウム等が挙げられる。

[0046] RはAに結合している有機基である。Rは、例えば、炭素数6~30のアリール基、炭素数4~30の複素環基、炭素数1~30のアルキル基、炭素数2~30のアルケニル基又は炭素数2~30のアルキニル基を表し、これらは置換基を有していてもよい。置換基としては、例えば、アルキル基、ヒドロキシ基、アルコキシ基、アルキルカルボニル基、アリールカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アリールチオカルボニル基、アシロキシ基、アリールチオ基、アルキルチオ基、アリール基

、複素環基、アリールオキシ基、アルキルスルフィニル基、アリールスルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アルキレンオキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、及びハロゲンからなる群より選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

[0047] Rの個数は $m + p(m - 1) + 1$ であり、それぞれ互いに同一であっても異なってもよい。また、2個以上のRは、互いに直接又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR'-$ 、 $-CO-$ 、 $-COO-$ 、 $-CONH-$ 、炭素数1~3のアルキレン若しくはフェニレン基を介して結合して、元素Aを含む環構造を形成していてもよい。ここで、R'は炭素数1~5のアルキル基又は炭素数6~10のアリール基である。

[0048] 炭素数6~30のアリール基としては、フェニル基等の単環式アリール基、並びに、ナフチル基、アントラセニル基、フェナンスレニル基、ピレニル基、クリセニル基、ナфтаセニル基、ベンズアントラセニル基、アントラキノリル基、フルオレニル基、ナフトキノン基及びアントラキノン基等の縮合多環式アリール基が挙げられる。

[0049] 炭素数6~30のアリール基、炭素数4~30の複素環基、炭素数1~30のアルキル基、炭素数2~30のアルケニル基又は炭素数2~30のアルキニル基は少なくとも1種の置換基を有してもよい。置換基の例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、オクチル、デシル、ドデシル、テトラデシル、ヘキサデシル、オクタデシル等の炭素数1~18の直鎖アルキル基；

イソプロピル、イソブチル、*sec*-ブチル、*tert*-ブチル、イソペンチル、ネオペンチル、*tert*-ペンチル、イソヘキシル等の炭素数1~18の分岐アルキル基；

シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル等の炭素数3~18のシクロアルキル基；

ヒドロキシ基；

メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、イソブト

キシ、*sec*-ブトキシ、*tert*-ブトキシ、ヘキシルオキシ、デシルオキシ、ドデシルオキシ等の炭素数1～18の直鎖又は分岐のアルコキシ基；

アセチル、プロピオニル、ブタノイル、2-メチルプロピオニル、ヘプタノイル、2-メチルブタノイル、3-メチルブタノイル、オクタノイル、デカノイル、ドデカノイル、オクタデカノイル等の炭素数2～18の直鎖又は分岐のアルキルカルボニル基；

ベンゾイル、ナフトイル等の炭素数7～11のアリールカルボニル基；

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、イソプロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、イソブトキシカルボニル、*sec*-ブトキシカルボニル、*tert*-ブトキシカルボニル、オクチロキシカルボニル、テトラデシルオキシカルボニル、オクタデシロキシカルボニル等の炭素数2～19の直鎖又は分岐のアルコキシカルボニル基；

フェノキシカルボニル、ナフトキシカルボニル等の炭素数7～11のアリールオキシカルボニル基；

フェニルチオカルボニル、ナフトキシチオカルボニル等の炭素数7～11のアリールチオカルボニル基；

アセトキシ、エチルカルボニルオキシ、プロピルカルボニルオキシ、イソプロピルカルボニルオキシ、ブチルカルボニルオキシ、イソブチルカルボニルオキシ、*sec*-ブチルカルボニルオキシ、*tert*-ブチルカルボニルオキシ、オクチルカルボニルオキシ、テトラデシルカルボニルオキシ、オクタデシルカルボニルオキシ等の炭素数2～19の直鎖又は分岐のアシロキシ基；

フェニルチオ、2-メチルフェニルチオ、3-メチルフェニルチオ、4-メチルフェニルチオ、2-クロロフェニルチオ、3-クロロフェニルチオ、4-クロロフェニルチオ、2-ブロモフェニルチオ、3-ブロモフェニルチオ、4-ブロモフェニルチオ、2-フルオロフェニルチオ、3-フルオロフェニルチオ、4-フルオロフェニルチオ、2-ヒドロキシフェニルチオ、4-ヒドロキシフェニルチオ、2-メトキシフェニルチオ、4-メトキシフェ

ニルチオ、1-ナフチルチオ、2-ナフチルチオ、4-[4-(フェニルチオ)ベンゾイル]フェニルチオ、4-[4-(フェニルチオ)フェノキシ]フェニルチオ、4-[4-(フェニルチオ)フェニル]フェニルチオ、4-(フェニルチオ)フェニルチオ、4-ベンゾイルフェニルチオ、4-ベンゾイル-2-クロロフェニルチオ、4-ベンゾイル-3-クロロフェニルチオ、4-ベンゾイル-3-メチルチオフェニルチオ、4-ベンゾイル-2-メチルチオフェニルチオ、4-(4-メチルチオベンゾイル)フェニルチオ、4-(2-メチルチオベンゾイル)フェニルチオ、4-(p-メチルベンゾイル)フェニルチオ、4-(p-エチルベンゾイル)フェニルチオ、4-(p-イソプロピルベンゾイル)フェニルチオ、4-(p-tert-ブチルベンゾイル)フェニルチオ等の炭素数6~20のアリールチオ基；

メチルチオ、エチルチオ、プロピルチオ、イソプロピルチオ、ブチルチオ、イソブチルチオ、sec-ブチルチオ、tert-ブチルチオ、ペンチルチオ、イソペンチルチオ、ネオペンチルチオ、tert-ペンチルチオ、オクチルチオ、デシルチオ、ドデシルチオ等の炭素数1~18の直鎖又は分岐のアルキルチオ基；

フェニル、トリル、ジメチルフェニル、ナフチル等の炭素数6~10のアリール基；

チエニル、フラニル、ピラニル、ピロリル、オキサゾリル、チアゾリル、ピリジル、ピリミジル、ピラジニル、インドリル、ベンゾフラニル、ベンゾチエニル、キノリル、イソキノリル、キノキサリニル、キナゾリニル、カルバゾリル、アクリジニル、フェノチアジニル、フェナジニル、キサントニル、チアントレニル、フェノキサジニル、フェノキサチニル、クロマニル、イソクロマニル、ジベンゾチエニル、キサントニル、チオキサントニル、ジベンゾフラニル等の炭素数4~20の複素環基；

フェノキシ、ナフチルオキシ等の炭素数6~10のアリールオキシ基；メチルスルフィニル、エチルスルフィニル、プロピルスルフィニル、イソプロピルスルフィニル、ブチルスルフィニル、イソブチルスルフィニル、sec

ーブチルスルフィニル、*tert*-ーブチルスルフィニル、ペンチルスルフィニル、イソペンチルスルフィニル、ネオペンチルスルフィニル、*tert*-ペンチルスルフィニル、オクチルスルフィニル等の炭素数1～18の直鎖又は分岐のアルキルスルフィニル基；

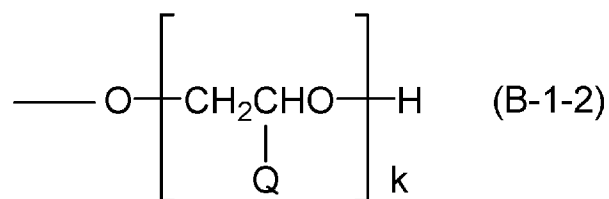
フェニルスルフィニル、トリルスルフィニル、ナフチルスルフィニル等の炭素数6～10のアリールスルフィニル基；

メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、イソプロピルスルホニル、ブチルスルホニル、イソブチルスルホニル、*sec*-ブチルスルホニル、*tert*-ブチルスルホニル、ペンチルスルホニル、イソペンチルスルホニル、ネオペンチルスルホニル、*tert*-ペンチルスルホニル、オクチルスルホニル等の炭素数1～18の直鎖又は分岐のアルキルスルホニル基；

フェニルスルホニル、トリルスルホニル（トシル基）、ナフチルスルホニル等の炭素数の6～10のアリールスルホニル基；

式（B-1-2）：

[化7]



で表されるアルキレンオキシ基（Qは水素原子又はメチル基を表し、kは1～5の整数を表す）；

非置換のアミノ基；

炭素数1～5のアルキル及び／又は炭素数6～10のアリールでモノ置換もしくはジ置換されているアミノ基；

シアノ基；

ニトロ基；

フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン等が挙げられる。

- [0050] 式 (B-1) 中の  $p$  は  $[D-A+R_{m-1}]$  結合の繰り返し単位数を表し、0 ~ 3 の整数であることが好ましい。
- [0051] 式 (B-1) 中のオニウムイオン  $[A^+]$  として好ましいものはスルホニウム、ヨードニウム、セレンニウムであるが、代表例としては以下のものが挙げられる。
- [0052] スルホニウムイオンとしては、トリフェニルスルホニウム、トリ- $p$ -トリルスルホニウム、トリ- $o$ -トリルスルホニウム、トリス (4-メトキシフェニル) スルホニウム、1-ナフチルジフェニルスルホニウム、2-ナフチルジフェニルスルホニウム、トリス (4-フルオロフェニル) スルホニウム、トリ-1-ナフチルスルホニウム、トリ-2-ナフチルスルホニウム、トリス (4-ヒドロキシフェニル) スルホニウム、4-(フェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、4-( $p$ -トリルチオ)フェニルジ- $p$ -トリルスルホニウム、4-(4-メトキシフェニルチオ)フェニルビス (4-メトキシフェニル) スルホニウム、4-(フェニルチオ)フェニルビス (4-フルオロフェニル) スルホニウム、4-(フェニルチオ)フェニルビス (4-メトキシフェニル) スルホニウム、4-(フェニルチオ)フェニルジ- $p$ -トリルスルホニウム、ビス [4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル] スルフィド、ビス [4-{ビス [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 {4-[ビス (4-フルオロフェニル) スルホニオ]フェニル} スルフィド、ビス {4-[ビス (4-メチルフェニル) スルホニオ]フェニル} スルフィド、ビス {4-[ビス (4-メトキシフェニル) スルホニオ]フェニル} スルフィド、4-(4-ベンゾイル-2-クロロフェニルチオ)フェニルビス (4-フルオロフェニル) スルホニウム、4-(4-ベンゾイル-2-クロロフェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、4-(4-ベンゾイルフェニルチオ)フェニルビス (4-フルオロフェニル) スルホニウム、4-(4-ベンゾイルフェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9, 10-ジヒドロアントラセン-2-イルジ- $p$ -トリルス

ルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9, 10-ジヒドロアントラセン-2-イルジフェニルスルホニウム、2-[ (ジ-*p*-トリル) スルホニオ] チオキサントン、2-[ (ジフェニル) スルホニオ] チオキサントン、4-[4-(4-*t e r t*-ブチルベンゾイル) フェニルチオ] フェニルジ-*p*-トリルスルホニウム、4-[4-(4-*t e r t*-ブチルベンゾイル) フェニルチオ] フェニルジフェニルスルホニウム、4-[4-(ベンゾイルフェニルチオ)] フェニルジ-*p*-トリルスルホニウム、4-[4-(ベンゾイルフェニルチオ)] フェニルジフェニルスルホニウム、5-(4-メトキシフェニル) チアアンスレニウム、5-フェニルチアアンスレニウム、5-トリルチアアンスレニウム、5-(4-エトキシフェニル) チアアンスレニウム、5-(2, 4, 6-トリメチルフェニル) チアアンスレニウム等のトリアリールスルホニウム；

ジフェニルフェナシルスルホニウム、ジフェニル4-ニトロフェナシルスルホニウム、ジフェニルベンジルスルホニウム、ジフェニルメチルスルホニウム等のジアリールスルホニウム；

フェニルメチルベンジルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルベンジルスルホニウム、4-メトキシフェニルメチルベンジルスルホニウム、4-アセトカルボニルオキシフェニルメチルベンジルスルホニウム、2-ナフチルメチルベンジルスルホニウム、2-ナフチルメチル(1-エトキシカルボニル) エチルスルホニウム、フェニルメチルフェナシルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルフェナシルスルホニウム、4-メトキシフェニルメチルフェナシルスルホニウム、4-アセトカルボニルオキシフェニルメチルフェナシルスルホニウム、2-ナフチルメチルフェナシルスルホニウム、2-ナフチルオクタデシルフェナシルスルホニウム、9-アントラセニルメチルフェナシルスルホニウム等のモノアリールスルホニウム；

ジメチルフェナシルスルホニウム、フェナシルテトラヒドロチオフェニウム、ジメチルベンジルスルホニウム、ベンジルテトラヒドロチオフェニウム、オクタデシルメチルフェナシルスルホニウム等のトリアルキルスルホニウム

ム；等が挙げられる。

[0053] これらのオニウムイオンの中では、スルホニウムイオンとヨードニウムイオンからなる1種以上が好ましく、スルホニウムイオンがより好ましい。スルホニウムイオンとしては、トリフェニルスルホニウム、トリ-p-トリルスルホニウム、4-(フェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、ビス[4-(ジフェニルスルホニオ)フェニル]スルフィド、ビス[4-{ビス[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{4-[ビス(4-フルオロフェニル)スルホニオ]フェニル}スルフィド、4-(4-ベンゾイル-2-クロロフェニルチオ)フェニルビス(4-フルオロフェニル)スルホニウム、4-(4-ベンゾイルフェニルチオ)フェニルジフェニルスルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9, 10-ジヒドロアントラセン-2-イルジ-p-トリルスルホニウム、7-イソプロピル-9-オキソ-10-チア-9, 10-ジヒドロアントラセン-2-イルジフェニルスルホニウム、2-[(ジ-p-トリル)スルホニオ]チオキサントン、2-[(ジフェニル)スルホニオ]チオキサントン、4-[4-(4-tert-ブチルベンゾイル)フェニルチオ]フェニルジ-p-トリルスルホニウム、4-[4-(ベンゾイルフェニルチオ)]フェニルジフェニルスルホニウム、5-(4-メトキシフェニル)チアアンスレニウム、5-フェニルチアアンスレニウム、ジフェニルフェナシルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルベンジルスルホニウム、2-ナフチルメチル(1-エトキシカルボニル)エチルスルホニウム、4-ヒドロキシフェニルメチルフェナシルスルホニウム及びオクタデシルメチルフェナシルスルホニウムからなる1種以上が好ましい。

[0054] 式(B-1)においてX<sup>-</sup>は対イオンである。その個数は1分子当りp+1である。対イオンは、特に限定されないが、ホウ素化合物、リン化合物、アンチモン化合物、ヒ素化合物、アルキルスルホン酸化合物等のハロゲン化物、メチド化合物等が挙げられる。X<sup>-</sup>としては、例えば、F<sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、Br<sup>-</sup>、I<sup>-</sup>等のハロゲンイオン；OH<sup>-</sup>；ClO<sub>4</sub><sup>-</sup>；FSO<sub>3</sub><sup>-</sup>、ClSO<sub>3</sub><sup>-</sup>、CH

${}^3\text{SO}_3^-$ 、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{SO}_3^-$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$ 等のスルホン酸イオン類； $\text{HSO}_4^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 等の硫酸イオン類； $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ 等の炭酸イオン類； $\text{H}_2\text{PO}_4^-$ 、 $\text{HPO}_4^{2-}$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ 等のリン酸イオン類； $\text{PF}_6^-$ 、 $\text{PF}_5\text{OH}^-$ 、フッ素化アルキルフルオロリン酸イオン等のフルオロリン酸イオン類； $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{H}_4\text{CF}_3)_4^-$ 等のホウ酸イオン類； $\text{AlCl}_4^-$ ； $\text{BiF}_6^-$ 等が挙げられる。その他には $\text{SbF}_6^-$ 、 $\text{SbF}_5\text{OH}^-$ 等のフルオロアンチモン酸イオン類、 $\text{AsF}_6^-$ 、 $\text{AsF}_5\text{OH}^-$ 等のフルオロヒ素酸イオン類等が挙げられる。

[0055] フッ素化アルキルフルオロリン酸イオンとしては、式(B-1-3)等で表されるフッ素化アルキルフルオロリン酸イオン等が挙げられる。



[0056] 式(B-1-3)において、Rfはフッ素原子で置換されたアルキル基を表す。Rfの個数bは、1～5であり、整数であることが好ましい。b個のRfはそれぞれ同一であっても異なってもよい。Rfの個数bは、2～4がより好ましく、2～3が最も好ましい。

[0057] 式(B-1-3)で表されるフッ素化アルキルフルオロリン酸イオンにおいて、Rfはフッ素原子で置換されたアルキル基を表し、好ましい炭素数は1～8、更に好ましい炭素数は1～4である。アルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、オクチル等の直鎖アルキル基；イソプロピル、イソブチル、sec-ブチル、tert-ブチル等の分岐アルキル基；更にシクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル等のシクロアルキル基等が挙げられる。Rfの具体例としては、 $\text{CF}_3$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2$ 、 $(\text{CF}_3)_2\text{CF}$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2$ 、 $(\text{CF}_3)_2\text{CFCF}_2$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2(\text{CF}_3)\text{CF}$ 、 $(\text{CF}_3)_3\text{C}$ 等が挙げられる。

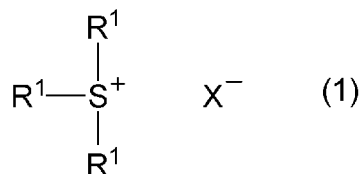
[0058] 好ましいフッ素化アルキルフルオロリン酸アニオンの具体例としては、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2)_2\text{PF}_4]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2)_3\text{PF}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_3)_2\text{CF})_2\text{PF}_4]^-$ 、 $[(\text{CF}_3)_2\text{CF})_3\text{PF}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2$

)<sub>2</sub>PF<sub>4</sub>]<sup>-</sup>、[(CF<sub>3</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>PF<sub>3</sub>]<sup>-</sup>、[(CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>)<sub>2</sub>PF<sub>4</sub>]<sup>-</sup>、[(CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>PF<sub>3</sub>]<sup>-</sup>、[(CF<sub>3</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>)<sub>2</sub>PF<sub>4</sub>]<sup>-</sup>及び[(CF<sub>3</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>PF<sub>3</sub>]<sup>-</sup>等が挙げられる。

[0059] 光カチオン重合開始剤は、重合性化合物との混合を容易にするため、あらかじめ溶剤類に溶解したものをを用いてもよい。溶剤類としては、例えば、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、1,2-ブチレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート等のカーボネート類等が挙げられる。

[0060] 光カチオン重合開始剤としては、式(1)で表される化合物が好ましい。式(1)で表される化合物としては、トリアリールスルホニウムトリス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロホスフェート等が挙げられる。

[化8]



[0061] 式(1)中、R<sup>1</sup>は水素原子、置換基を有していてもよいアルキル基又は置換基を有していてもよいアリール基を示し、X<sup>-</sup>は一価のアニオンを示す。複数存在するR<sup>1</sup>は互いに同一でも異なっていてもよい。

[0062] R<sup>1</sup>におけるアルキル基としては、上記Rにおける炭素数1~30のアルキル基と同じものが例示できる。また、R<sup>1</sup>におけるアリール基としては、上記Rにおける炭素数6~30のアリール基と同じものが例示できる。

[0063] X<sup>-</sup>としては、上記と同じものが例示できる。

[0064] R<sup>1</sup>は、好ましくは置換基を有していてもよいアルキル基又は置換基を有していてもよいアリール基であり、より好ましくは置換基を有していてもよいアリール基である。

- [0065] 光ラジカル重合開始剤としては、特に限定されないが、
- ベンゾフェノン及びその誘導体；
  - ベンジル及びその誘導体；
  - アントラキノン及びその誘導体；
  - ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンジルジメチルケタール等のベンゾイン型光重合開始剤；
  - ジエトキシアセトフェノン、4-tert-ブチルトリクロロアセトフェノン等のアセトフェノン型光重合開始剤；
  - 2-ジメチルアミノエチルベンゾエート；
  - p-ジメチルアミノエチルベンゾエート；
  - ジフェニルジスルフィド；
  - チオキサントン及びその誘導体；
  - カンファーキノン、7,7-ジメチル-2,3-ジオキソビシクロ [2.2.1]ヘプタン-1-カルボン酸、7,7-ジメチル-2,3-ジオキソビシクロ [2.2.1]ヘプタン-1-カルボキシ-2-ブロモエチルエステル、7,7-ジメチル-2,3-ジオキソビシクロ [2.2.1]ヘプタン-1-カルボキシ-2-メチルエステル、7,7-ジメチル-2,3-ジオキソビシクロ [2.2.1]ヘプタン-1-カルボン酸クロライド等のカンファーキノン型光重合開始剤；
  - 2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルフォリノプロパン-1-オン、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォリノフェニル)-ブタノン-1等の $\alpha$ -アミノアルキルフェノン型光重合開始剤；
  - ベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、ベンゾイルジエトキシホスフィンオキシド、2,4,6-トリメチルベンゾイルジメトキシフェニルホスフィンオキシド、2,4,6-トリメチルベンゾイルジエトキシフェ

ニルホスフィンオキサイド、ビス（2，4，6-トリメチルベンゾイル）-フェニルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィンオキサイド型光重合開始剤；

フェニル-グリオキシリックアシッド-メチルエステル；

オキシ-フェニル-アセチックアシッド 2- [2-オキソ-2-フェニル-アセトキシ-エトキシ]-エチルエステル；

オキシ-フェニル-アセチックアシッド 2- [2-ヒドロキシ-エトキシ]-エチルエステル；等が挙げられる。

[0066] 光重合開始剤の含有量は、重合性化合物100質量部に対して、0.01質量部以上が好ましく、0.1質量部以上がより好ましく、0.3質量部以上が更に好ましく、0.5質量部以上が一層好ましい。これにより硬化性がより向上する。また、重合開始剤の含有量は、重合性化合物100質量部に対して、5質量部以下が好ましく、3質量部以下がより好ましい。これにより、より長期保管における信頼性に優れた封止材を形成できる。すなわち、光重合開始剤の含有量は、重合性化合物100質量部に対して、例えば、0.01～5質量部、0.01～3質量部、0.1～5質量部、0.1～3質量部、0.3～5質量部、0.3～3質量部、0.5～5質量部又は0.5～3質量部であってよい。

[0067] 無機微粒子としては、結晶性シリカ、非晶性シリカ、アルミナ、マグネシア、ジルコニア、タルク、マイカ、クレイ、カオリン、ルチル形酸化チタン、アナターゼ型酸化チタン、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等を用いることができる。無機微粒子としては、球状シリカ、球状アルミナ、球状マグネシア、球状ジルコニア等の球状の無機微粒子を好適に用いることができる。無機微粒子が球状であると、照射光が組成物中の重合性化合物と無機微粒子との界面で乱反射し、組成物の深部まで照射光が到達しやすくなり、上述の好適な硬化深度をより満たしやすくなる傾向がある。

[0068] 無機微粒子の平均円形度（真円度）は、好ましくは0.7以上であり、より好ましくは0.8以上、更に好ましくは0.85以上である。これにより、上述の乱反射による効果がより顕著に得られる傾向がある。無機微粒子の平均円形度は、1.0以下であってよい。

[0069] なお、本明細書中、無機微粒子の平均円形度は、顕微鏡観察により観測される無機微粒子の一次粒子について投影面積及び周囲長を計測し、以下の式を用いて算出した値を、個数平均した値である。

$$\text{平均円形度} = 4 \times \pi \times (\text{投影面積}) / (\text{周囲長})^2$$

[0070] 無機微粒子は、重合性化合物の屈折率と近い屈折率を有することが好ましい。重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ と無機微粒子の屈折率 $n_2$ との差の絶対値（ $|n_1 - n_2|$ ）は、例え0.6以下であってよく、好ましくは0.5以下、より好ましくは0.4以下、更に好ましくは0.3以下、一層好ましくは0.25以下であり、0.2以下、0.15以下又は0.1以下であってもよい。無機微粒子が重合性化合物の屈折率と近い屈折率を有することで、無機微粒子と重合性化合物との界面で照射光の反射が起こりにくくなり、組成物の深部まで照射光が到達しやすくなり、上述の好適な硬化深度をより満たしやすくなる傾向がある。

[0071] なお、本明細書中、無機微粒子の屈折率 $n_2$ は、既知の屈折率 $n$ の液体を標準試料とし、標準試料に無機微粒子を所定の体積分率 $v$ で分散した混合物の屈折率 $n'$ を、屈折率計を用いて測定し、以下の式を用いて算出した値である。

$$n_2 = (n' - n) / v + n$$

[0072] 本実施形態の組成物が、複数種類の無機微粒子を含む場合、最も含有量の多い無機微粒子（例えば、無機微粒子の総量基準で50体積%以上、60体積%以上、70体積%以上、80体積%以上又は90体積%以上）の $|n_1 - n_2|$ が上記範囲であることが好ましく、全ての無機微粒子の $|n_1 - n_2|$ が上記範囲であることがより好ましい。

[0073] 無機微粒子の屈折率 $n_2$ は特に限定されず、例えば1.3以上であり、好ま

しくは1.4以上である。また、無機微粒子の屈折率 $n_2$ は、例えば2.5以下であり、好ましくは2.3以下、より好ましくは2.0以下、更に好ましくは1.8以下、一層好ましくは1.6以下であり、1.5以下であってもよい。無機微粒子の屈折率 $n_2$ は、例えばアッベ式屈折率計により測定される。すなわち、無機微粒子の屈折率 $n_2$ は、例えば1.3~2.5、1.3~2.3、1.3~2.0、1.3~1.8、1.3~1.6、1.3~1.5、1.4~2.5、1.4~2.3、1.4~2.0、1.4~1.8、1.4~1.6又は1.4~1.5であってよい。

[0074] 無機微粒子の平均粒子径は、例えば0.1 $\mu\text{m}$ 以上であってよく、好ましくは0.5 $\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは1 $\mu\text{m}$ 以上である。無機微粒子の平均粒子径が大きいと、硬化体中で水分の透過を阻害する効果が得られやすくなる。また、無機微粒子の平均粒子径は、例えば50 $\mu\text{m}$ 以下であってよく、好ましくは30 $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは10 $\mu\text{m}$ 以下である。無機微粒子の平均粒子径が小さいと、組成物中で無機微粒子が分離しにくくなり、より均一な硬化体を得られやすくなり、長期信頼性がより向上する傾向がある。すなわち、無機微粒子の平均粒子径は、例えば、0.1~50 $\mu\text{m}$ 、0.1~30 $\mu\text{m}$ 、0.1~10 $\mu\text{m}$ 、0.5~50 $\mu\text{m}$ 、0.5~30 $\mu\text{m}$ 、0.5~10 $\mu\text{m}$ 、1~50 $\mu\text{m}$ 、1~30 $\mu\text{m}$ 又は1~10 $\mu\text{m}$ であってよい。

[0075] なお、本明細書中、無機微粒子の平均粒子径は、マイクロトラック粒度分布装置を用い、レーザー回折・散乱法により測定される値を示す。

[0076] 無機微粒子の含有量は、30体積%以上であり、好ましくは32体積%以上、より好ましくは35体積%以上であり、40体積%以上又は45体積%以上あってもよい。十分な硬化深度を維持しつつ無機微粒子の含有量を多くすることで、硬化体の透湿性がより低下する傾向がある。無機微粒子の含有量の上限は、上述な硬化深度を維持できれば特に限定されない。無機微粒子の含有量は、例えば80体積%以下であってよく、好ましくは70体積%以下、より好ましくは65体積%以下であり、60体積%以下、55体積%以

下又は50体積%以下であってもよい。無機微粒子の含有量を少なくすることで、上述の硬化深度をより満たしやすくなる傾向がある。すなわち、無機微粒子の含有量は、例えば、30～80体積%、30～70体積%、30～65体積%、30～60体積%、30～55体積%、30～50体積%、32～80体積%、32～70体積%、32～65体積%、32～60体積%、32～55体積%、32～50体積%、35～80体積%、35～70体積%、35～65体積%、35～60体積%、35～55体積%、35～50体積%、40～80体積%、40～70体積%、40～65体積%、40～60体積%、40～55体積%、40～50体積%、45～80体積%、45～70体積%、45～65体積%、45～60体積%、45～55体積%又は45～50体積%であってよい。

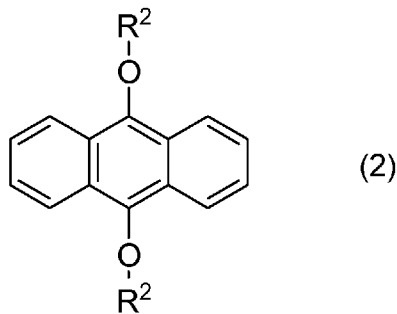
[0077] 本実施形態の組成物は、光増感剤を更に含んでいてもよい。光増感剤とは、エネルギー線を吸収して、重合開始剤から反応種（例えば、光カチオン重合開始剤から発生するカチオン、光ラジカル重合開始剤から発生するラジカル）を効率よく発生させることができる化合物を示す。

[0078] 光増感剤は特に限定されず、例えば、ベンゾフェノン誘導体、フェノチアジン誘導体、フェニルケトン誘導体、ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ナフタセン誘導体、クリセン誘導体、ペリレン誘導体、ペンタセン誘導体、アクリジン誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾイン誘導体、フルオレン誘導体、ナフトキノン誘導体、アントラキノン誘導体、キサントゲン誘導体、キサントン誘導体、チオキサントゲン誘導体、チオキサントン誘導体、クマリン誘導体、ケトクマリン誘導体、シアニン誘導体、アジン誘導体、チアジン誘導体、オキサジン誘導体、インドリン誘導体、アズレン誘導体、トリアリルメタン誘導体、フタロシアニン誘導体、スピロピラン誘導体、スピロオキサジン誘導体、チオスピロピラン誘導体、有機ルテニウム錯体等が挙げられる。これらの中では、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン等のフェニルケトン誘導体、9,10-ジブトキシアントラセン等のアントラセン誘導体が好ましく、アン

トラセン誘導体がより好ましい。アントラセン誘導体の中では、9, 10-ジブトキシアントラセンが好ましい。光増感剤は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0079] 好適な光増感剤としては、例えば下記式(2)で表される光増感剤が挙げられる。下記式(2)で表される光増感剤としては、例えばジブトキシアントラセン等が挙げられる。

[化9]



[0080] 式(2)中、R<sup>2</sup>は置換基を有していてもよいアルキル基を示す。

[0081] R<sup>2</sup>のアルキル基の炭素数は、例えば1~10であってよく、好ましくは2~8、より好ましくは2~6である。すなわち、R<sup>2</sup>のアルキル基の炭素数は、例えば、1~10、1~8、1~6、2~10、2~8又は2~6であってよい。

[0082] 本実施形態の組成物が光増感剤を含む場合、光増感剤の含有量は、重合性化合物100質量部に対して、例えば0.01質量部以上であってよく、0.05質量部以上であってよい。また、光増感剤の含有量は、貯蔵安定性の観点からは、重合性化合物100質量部に対して、例えば5質量部以下であってよく、3質量部以下が好ましい。すなわち、光増感剤の含有量は、重合性化合物100質量部に対して、例えば、0.01~5質量部、0.01~3質量部、0.05~5質量部又は0.05~3質量部であってよい。

[0083] 本実施形態の組成物は、上記以外の他の成分を更に含んでもよい。他の成分としては、例えば、封止剤分野で用いられる公知の添加剤を特に制限無く使用できる。他の成分としては、例えば、シランカップリング剤、酸化防止剤、樹脂粒子、金属不活性化剤、填料、安定剤、中和剤、滑剤、抗菌剤

等が挙げられる。

[0084] 他の成分の含有量は特に限定されず、組成物の全量基準で、例えば10質量%以下であってよく、5質量%以下であってよく、1質量%以下であってよい。

[0085] 本実施形態の組成物の製造方法は、特に限定されず、上述の各成分が十分に混合される攪拌能力を有する混合方法で、上述の各成分を混合すればよい。混合方法としては、例えば、攪拌翼、スクリュー、マグネチックスターラー等の攪拌子に回転力を付与して攪拌する方法、タンブラーミキサー、遊星式攪拌機等の容器回転により攪拌する方法、ビースミル等の攪拌球によるせん断力を利用して攪拌する方法、ロールミル等の圧縮力を利用して攪拌する方法、振とう機等の振動力を利用して攪拌する方法、ボルテックスミキサー等の混合物自身の乱流を利用して攪拌する方法、超音波攪拌機等の超音波を利用して攪拌する方法など、公知の分散機を利用する方法等が挙げられる。これらのうち、上述の各成分を十分且つ安全に混合でき、攪拌子等の不純物を最小限にできる観点から、遊星式攪拌機等の容器回転により攪拌する方法が好ましい。容器回転により攪拌する方法としては、真空自転公転ミキサーを用いる方法等が挙げられる。

[0086] 本実施形態の組成物を硬化することで、重合性化合物の重合体及び無機微粒子を含む硬化体を得ることができる。当該硬化体は、透湿性が低く、封止材（特に、有機EL表示素子用封止材、ダム・フィル封止構造のダム）として好適に用いることができる。

[0087] 本実施形態の組成物は、例えばエネルギー線の照射により硬化することができる。エネルギー線としては、反応効率及び安全性の観点からは、紫外光及び可視光が好適に用いられる。本実施形態の組成物の硬化に用いられる光源としては、特に限定されないが、ハロゲンランプ、メタルハライドランプ、ハイパワーメタルハライドランプ（インジウム等を含有する）、低圧水銀ランプ、高圧水銀ランプ、超高圧水銀ランプ、キセノンランプ、キセノンエキシマランプ、キセノンフラッシュランプ、ライトエミッティングダイオー

ド（以下、LEDという）等が挙げられる。また、自然光（太陽光）も反応開始光源になり得る。これらの光源のうち、目的の波長を選択的に照射できることからLED光源が好ましい。

- [0088] 上記光源の波長は特に限定されず、上記光源は重合開始剤の反応波長等により適宜選択される。その波長は、反応性の効率の面から400nm以下とすることができ、好ましくは395nm以下であり、より好ましくは385nm以下であり、更に好ましくは365nm以下である。また、硬化深度の効率の面から300nm以上とすることができ、好ましくは320nm以上であり、より好ましくは340nm以上であり、更に好ましくは365nm以上である。すなわち、上記光源の波長は、例えば、300~400nm、300~395nm、300~385nm、300~365nm、320~400nm、320~395nm、320~385nm、320~365nm、340~400nm、340~395nm、340~385nm、340~365nm、365~400nm、365~395nm又は365~385nmであってよい。
- [0089] 上記光源による照射方法は、直接照射であってもよく、反射鏡、ファイバー等による集光照射であってもよい。また、低波長カットフィルター、熱線カットフィルター、コールドミラー等を用いた照射であってもよい。
- [0090] 上記光源の照射量は組成物の厚さにより適宜選択してよい。例えば、厚さ100 $\mu$ mの組成物に対する照射量は、600mJ/cm<sup>2</sup>以上であることが好ましく、1000mJ/cm<sup>2</sup>以上であることがより好ましい。なお、厚さが100 $\mu$ mよりも小さい組成物に対しては、その厚みに応じて（例えば厚みに比例するように）照射量を適宜調整してよい。
- [0091] 本実施形態の組成物の硬化に際しては、光照射後、硬化促進のために後加熱処理をしてもよい。後加熱の温度は、有機EL表示素子への影響を避ける観点から150℃以下が好ましく、100℃以下がより好ましく、90℃以下又は80℃以下であってもよい。後加熱の温度は、40℃以上が好ましく、50℃以上、60℃以上、70℃以上又は80℃以上であってもよい。す

なわち、後加熱の温度は、例えば、40～150℃、40～100℃、40～90℃、40～80℃、50～150℃、50～100℃、50～90℃、50～80℃、60～150℃、60～100℃、60～90℃、60～80℃、70～150℃、70～100℃、70～90℃又は70～80℃であってよい。また、後処理の時間は、有機EL表示素子への影響を避ける観点から120分以下が好ましく、60分以下がより好ましく、30分以下が更に好ましい。後処理の時間は、5分以上であってよく、10分以上であってよく、20分以上が好ましく、30分以上がより好ましい。すなわち、後処理の時間は、例えば、5～120分、5～60分、5～30分、10～120分、10～60分、10～30分、20～120分、20～60分、20～30分、30～120分又は30～60分であってよい。

[0092] 本実施形態の組成物は、接着剤として用いることもできる。本実施形態の組成物は、例えば、有機EL表示素子等のパッケージ等の接着に好適に用いることができる。

[0093] 本実施形態の組成物を用いて2つの部材を接着する方法としては、例えば、組成物を第一の部材の全面又は一部に塗布する工程と、第一の部材上に塗布された組成物に光を照射する工程と、光を照射された組成物が硬化するまでの間に、組成物を介して第一の部材と第二の部材とを接着させる工程と、を含む方法が挙げられる。このような方法によれば、第二の部材を光及び熱に晒すことなく、第一の部材上に接着することができる。このため、上記方法は、背面板と有機EL表示素子との接着に好適に用いることができる。

[0094] 本実施形態の組成物を用いて有機EL表示装置を製造する方法としては、例えば、背面板上に組成物を塗布する工程と、背面板上に塗布された組成物に光を照射する工程と、光を遮断して、組成物を介して、背面板と有機EL表示素子を形成した基板とを接着させる工程と、を含む製造方法が挙げられる。このような方法によれば、有機EL表示素子を光及び熱に晒すことなく封止できる。

[0095] また、本実施形態の組成物を用いて有機EL表示装置を製造する方法とし

ては、例えば、一方の基板に組成物を塗布する工程と、組成物を介して一方の基板と他方の基板とを接着させる工程と、基板間の組成物に光を照射して組成物を硬化させる工程と、を含む製造方法も挙げられる。

[0096] 本実施形態の組成物は、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の光照射を行い、80℃で30分静置したときの硬化深度が、100μm以上である。当該硬化深度は、好ましくは120μm以上、より好ましくは140μm以上、更に好ましくは160μm以上、一層好ましくは180μm以上であり、200μm以上、250μm以上、300μm以上、350μm以上、400μm以上、450μm以上又は500μm以上であってもよい。硬化深度の値が大きいと、未反応モノマーの残存に起因する防湿性及び信頼性の低下が抑制され、より優れた防湿性及び長期信頼性が実現される傾向がある。上記硬化深度の上限は特に限定されない。上記硬化深度は、例えば1000μm以下であってもよく、好ましくは800μm以下、より好ましくは700μm以下であってもよい。すなわち、上記硬化深度は、例えば、100~1000μm、100~800μm、100~700μm、120~1000μm、120~800μm、120~700μm、140~1000μm、140~800μm、140~700μm、160~1000μm、160~800μm、160~700μm、180~1000μm、180~800μm、180~700μm、200~1000μm、200~800μm、200~700μm、250~1000μm、250~800μm、250~700μm、300~1000μm、300~800μm、300~700μm、350~1000μm、350~800μm、350~700μm、400~1000μm、400~800μm、400~700μm、450~1000μm、450~800μm、450~700μm、500~1000μm、500~800μm又は500~700μmであってもよい。

[0097] 本実施形態の組成物は、硬化深度が上記範囲となるように各成分の種類及び含有量が適宜調整されていてよい。

- [0098] 本実施形態の組成物の硬化体（以下、単に本実施形態の硬化体ともいう。）の比重は、例えば1.3以上であり、好ましくは1.5以上であり、より好ましくは1.7以上である。また、本実施形態の硬化体の比重は、例えば5.0以下であってよく、好ましくは3.0以下である。すなわち、本実施形態の硬化体の比重は、例えば、1.3～5.0、1.3～3.0、1.5～5.0、1.5～3.0、1.7～5.0又は1.7～3.0であってよい。なお、硬化体の比重は、JIS K7112 B法に準拠し、浸せき液として23℃の水を使用して測定される値を示す。
- [0099] 本実施形態の組成物は、硬化体の比重が上記範囲となるように各成分の種類及び含有量が適宜調整されていてよい。
- [0100] 本実施形態の硬化体において、重合性化合物の重合体のガラス転移温度は、例えば80℃以上であってよく、好ましくは85℃以上、より好ましくは90℃以上、更に好ましくは100℃以上である。重合性化合物の重合体のガラス転移温度は、例えば250℃以下であってよい。
- [0101] なお、本明細書中、重合体のガラス転移温度（ $T_g$ ）は、動的粘弾性スペクトルから求められる値を示す。動的粘弾性スペクトルでは、ある温度で固体である重合体に対し、その温度において応力及び歪みを加えたのち一定の昇温速度で加熱した際に、貯蔵弾性率の低下とともに損失正接（以下、 $\tan \delta$ と略す）のピークトップを示す温度をガラス転移温度とすることができる。
- [0102] 本実施形態の組成物は、重合体のガラス転移温度が上記範囲となるように各成分の種類及び含有量が適宜調整されていてよい。
- [0103] 本実施形態の組成物の粘度は、例えば0.1 Pa·s以上であり、好ましくは1 Pa·s以上、より好ましくは10 Pa·s以上、更に好ましくは100 Pa·s以上である。組成物の粘度が高いと、組成物の硬化の際に流動が少なく安定した寸法の硬化体を得られやすくなる。本実施形態の組成物の粘度は、例えば10000 Pa·s以下であり、好ましくは1000 Pa·s以下である。組成物の粘度が低いと、組成物の加工及び取り扱いが容易と

なる。すなわち、本実施形態の組成物の粘度は、 $0.1 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $0.1 \sim 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $1 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $1 \sim 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $10 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $10 \sim 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 、 $100 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 又は $100 \sim 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であってよい。なお、粘度は、JIS K5600 2-3法に準拠し、コーンプレート粘度計法を用い、 $23^\circ\text{C}$ で測定される値を示す。

[0104] 本実施形態の硬化体は、JIS Z0208に準拠して、温度 $85^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $85\%$ の条件下で測定される、厚さ $100 \mu\text{m}$ あたりの透湿度が、 $150 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であることが好ましく、 $130 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であることがより好ましく、 $100 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であることが更に好ましく、 $80 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であることが一層好ましく、 $60 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であってもよく、 $50 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下であってもよい。なお、上記透湿度は、JIS Z0208:1976に準拠して、 $85^\circ\text{C}$ 、 $85\% \text{ RH}$ の環境下に24時間暴露して測定した $100 \mu\text{m}$ 厚での透湿度 ( $\text{g} / \text{m}^2$ )ということもできる。上記透湿度は、例えば $0.01 (\text{g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以上であってよく、 $0.1 (\text{g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以上であってもよく、 $1 (\text{g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以上であってもよく、 $5 (\text{g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以上であってもよい。すなわち、上記透湿度は、例えば、 $0.01 \sim 150 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.01 \sim 130 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.01 \sim 100 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.01 \sim 80 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.01 \sim 60 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.01 \sim 50 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 150 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 130 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 100 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 80 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 60 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $0.1 \sim 50 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 150 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 130 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 100 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 80 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 60 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $1 \sim 50 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $5 \sim 150 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24$

時間)、 $5 \sim 130 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $5 \sim 100 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $5 \sim 80 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、 $5 \sim 60 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 、又は、 $5 \sim 50 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ であってよい。

[0105] 本実施形態の組成物は、硬化体の透湿度が上記範囲となるように各成分の種類及び含有量が適宜調整されていてよい。

[0106] 本実施形態の硬化体は、温度 $85^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $85\%$ 、 $24$ 時間での吸水率が、例えば $15\%$ 以下であってよく、好ましくは $10\%$ 以下、より好ましくは $5\%$ 以下、更に好ましくは $3\%$ 以下であり、 $2\%$ 以下、 $1.5\%$ 以下又は $1\%$ 以下であってもよい。これにより、硬化体中の水分の残存に起因する防湿性及び信頼性の低下が抑制され、より優れた防湿性及び長期信頼性が実現される傾向がある。

[0107] 本実施形態の組成物は、硬化体の吸水率が上記範囲となるように各成分の種類及び含有量が適宜調整されていてよい。

[0108] 以上、本発明の好適な実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではない。

[0109] 例えば、本発明は、上述の組成物を塗布及び硬化して、ダムを形成する工程を含む、ダム・フィル封止構造を有する有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法に関するものであってよい。

[0110] また、本発明は、ダム及びフィル剤からなるダム・フィル封止構造を有する有機EL表示装置に関するものであってよく、このとき、ダムは上述の組成物の硬化体を含んでいてよい。

[0111] なお、ダム・フィル封止構造は公知のダム・フィル封止構造であってよく、フィル剤は公知のフィル剤であってよい。また、有機EL表示装置のダム・フィル封止構造以外の構成は、公知の有機EL表示装置と同様の構成であってよい。

[0112] 上記有機EL表示素子は、有機ELテレビであってよい。本発明よれば、大型化が顕著な有機ELテレビにおいて、十分な防湿性及び長期信頼性を実現可能な封止剤を提供できる。

## 実施例

[0113] 以下、実施例によって本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。実施例は、特記しない限り、23℃、相対湿度50質量%で試験した。

[0114] 実施例及び比較例では、以下の化合物を使用した。

[0115] (A) 重合性化合物

(A-1) グリシジルメタクリレート (共栄社化学社製「ライトエステルG」、比重: 1.1、屈折率: 1.45、分子量142)

(A-2) ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル (アデカ社製「ED523T」、比重: 1.1、屈折率: 1.48、分子量216)

(A-3) テトラブロモビスフェノールAジグリシジルエーテル (DIC社製「エピクロン152」、比重: 1.7、屈折率: 1.60、分子量972)

(A-4) 3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート (ダイセル化学社製「セロキサイド2021」、比重: 1.2、屈折率: 1.52、分子量252)

(A-5) 1, 10-デカンジオールジメタクリレート (新中村化学社製「NKエステルDOD-N」、比重: 1.0、屈折率: 1.46)

[0116] (B) 重合開始剤

(B-1) トリアリールスルホニウムトリス (ペンタフルオロフェニル) ボレート (サンアプロ社製「CPI-310B」)

(B-2) ベンジルジメチルケタール (BASF社製「Irgacure TPO」)

[0117] (C) 無機微粒子

(C-1) 球状シリカ (デンカ社製「FB-5SDC」、平均粒子径: 4 μm、真円度: 0.9、屈折率: 1.44、比重2.1)

(C-2) 球状アルミナ (デンカ社製「DAW-05」、平均粒子径: 5 μm、真円度: 0.95、屈折率: 1.77、比重3.9)

(C-3) 板状タルク (松村産業「ハイファイラー#17」、平均粒子径: 12  $\mu\text{m}$ 、真円度: 0.5、屈折率: 1.57、比重2.7)

(C-4) ルチル形酸化チタン (石原産業「CR-EL」、平均粒子径: 0.25  $\mu\text{m}$ 、真円度: 0.7、屈折率: 2.13、比重4.2)

[0118] (D) 光増感剤

(D-1) ジブトキシアントラセン (川崎化成工業「アントラキュアー UVS-1331」)

[0119] (実施例1~7及び比較例1~4)

表1~3に示す原材料を表1~3に示す割合で計量し、真空自転公転ミキサー (イーエムイー「UFO-S3」) で600 rpm、5分攪拌混合し、実施例及び比較例の組成物を調製した。なお、配合割合は質量部で示す。また、無機微粒子の含有量については比重から体積割合を算出し、体積%で示す。

[0120] 実施例及び比較例の各組成物について、下記の各値を求めた。結果を表1~3に示す。

[0121] <重合性化合物の重合体の屈折率>

重合性化合物及び重合開始剤を表1~3に示す割合で計量し、自転公転ミキサー (シンキー「AR-250」) で2000 rpm、5分攪拌混合し、混合物を得た。次いで、混合物をポリエチレンテレフタレートフィルム上に厚さ100  $\mu\text{m}$ となるように塗布し、波長365 nmのLED光源にて照射量600 mJ/cm<sup>2</sup>の紫外光を照射し、80°Cで30分間静置した。その後、ポリエチレンテレフタレートフィルムを剥離し、測定試料を得た。得られた測定試料の屈折率を、アッベ式屈折率計 (アタゴ「DR-M2」) にて測定した。

[0122] <硬化深度>

アルミ箔で側面及び下部を被覆した内径4 mm、深さ8 mmのウレタンチューブに組成物を充填し、80°Cのホットプレート上でチューブ上部から波長365 nmのLED光源にて、照射量600 mJ/cm<sup>2</sup>の紫外光を照射し

た。照射後、80℃で30分間静置したのち、チューブ下部の未硬化部分を、エタノールを含浸させたガーゼで拭き取り、残った硬化部分の厚さをマイクロメーター（ミットヨ社製）にて測定した。

[0123] <全光線透過率、全光線反射率>

組成物をガラスの上に厚さ100μmとなるように塗布し、更にその上からガラスを重ね、ガラス／組成物／ガラスの3層構造とした。ヘーズメーター（日本電色「NDH-8000」）にて無塗布の2枚のガラスを用いてベース補正を行った後、上記3層構造の試料について全光線透過率及び全光線反射率を測定した。

[0124] <硬化体の作製>

ポリエチレンテレフタレートフィルム上に厚さ100μmとなるように組成物を塗布した。次いで、波長365nmのLED光源にて、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の紫外光を照射した後、80℃で30分間静置した。その後、ポリエチレンテレフタレートフィルムを剥離し、硬化体を得た。

[0125] <屈折率の差>

上述の方法で求めた重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ と、無機微粒子の屈折率 $n_2$ とを用いて、以下の式より算出した。但し、組成物が無機微粒子を複数含む場合には、各無機微粒子について $|n_1 - n_2|$ を計算し、最大値を表に記載した。

$$\text{屈折率の差} = |n_1 - n_2|$$

なお、実施例6は、 $|n_1 - n_2|$ の最大値は0.57であるが、 $|n_1 - n_2|$ が0.5以下の無機微粒子（(C-1)球状シリカ）が無機微粒子の大半を占めている。

[0126] <硬化体の比重>

硬化体の比重は、メトラートレドの比重測定キットを用いて測定した。測定雰囲気は23℃とした。

[0127] <透湿度>

硬化体の透湿度は、試験条件を85℃、85%RH、時間を24時間とし

たこと以外は、JIS Z 0208の透湿カップ法に準じて測定した。

[0128] <吸湿率（吸水率）>

硬化体を23℃50%RH雰囲気中で24時間静置した後に、85℃、85%RH雰囲気中で24時間加湿し、その後再び23℃50%RHで1時間冷却したものをカールフィッシャー法にて水分率（%）を測定し、この値を吸湿率とした。

[0129] 次いで、実施例及び比較例の各組成物について、下記の方法で側面封止基板を作製し、封止材の硬化状態の評価及び信頼性試験を行った。結果を表1～3に示す。

[0130] <側面封止基板の作製>

30mm四方の無アルカリガラスの上に、ノズル径0.2mmφの卓上塗布機（武蔵エンジニアリング社製、SHOTmini）にて、組成物4mLを約17mm四方の正方形を描くように塗布し、第一のガラス基板を作製した。次いで、金属カルシウムを0.2μm厚、13mm四方の範囲に蒸着したガラス基板（Q-Lights社製）を第二のガラス基板として準備し、第一のガラス基板と第二のガラス基板とを貼り合わせた。このとき、第一のガラス基板上の組成物が第二のガラス基板上の金属カルシウムを囲うように、第一のガラス基板と第二のガラス基板の位置を合わせた。その後、第一のガラス基板側から、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の紫外光を照射したのち、真空プレス機で40℃の条件下、0.1MPaの荷重をかけてプレスした。次いで、80℃のオーブンで30分間加熱し、組成物の硬化体からなる封止材で側面を封止された側面封止基板を得た。

[0131] <硬化状態の評価>

側面封止基板を目視で確認し、封止材に未硬化部分が存在しなかった場合をA、封止材に未硬化部分が認められた場合をCとして評価した。

[0132] <信頼性試験>

側面封止基板を85℃、85%RHの雰囲気中で静置した。黒色の金属カルシウム層が、水との反応により全て白色に変色するまでの時間を計測した

[0133] [表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
重合性 化合物 (質量部)	(A-1)	80	—	—	—
	(A-2)	—	80	—	—
	(A-3)	—	—	60	60
	(A-4)	10	20	40	40
	(A-5)	10	—	—	—
重合 開始剤 (質量部)	(B-1)	0.5	1	0.5	1
	(B-2)	0.5	—	—	—
無機 微粒子 (質量部)	(C-1)	120	180	—	240
	(C-2)	—	—	300	60
	(C-3)	—	—	—	—
	(C-4)	—	—	—	—
光増感剤 (質量部)	(D-1)	—	—	0.5	—
無機微粒子の含有量(体積%)		55	65	73	76
重合性化合物の重合体の屈折率( $n^1$ )		1.46	1.49	1.56	1.56
屈折率の差( $ n^1 - n^2 $ )(最大値)		0.02	0.05	0.21	0.21
全光線透過率( $T_o$ (%))		60	42	53	58
全光線反射率( $R_o$ (%))		39	43	25	22
$T_o + R_o$		99	85	78	80
硬化深度( $\mu m$ )		800	520	280	190
硬化体の比重		1.5	1.6	2.7	2.1
透湿度( $g/m^2 \cdot 24h$ )		74	47	22	9
吸湿率(%)		1.3	0.5	0.8	1.8
封止基板の硬化状態		A	A	A	A
封止基板の信頼性試験(hr)		864	1008	1200	1344

[0134]

[表2]

		実施例 5	実施例 6	実施例 7
重合性 化合物 (質量部)	(A-1)	—	—	—
	(A-2)	—	—	—
	(A-3)	60	60	—
	(A-4)	40	40	—
	(A-5)	—	—	100
重合 開始剤 (質量部)	(B-1)	1	1	—
	(B-2)	—	—	0.5
無機 微粒子 (質量部)	(C-1)	40	120	100
	(C-2)	—	—	100
	(C-3)	40	—	—
	(C-4)	—	40	—
光増感剤 (質量部)	(D-1)	—	—	0.1
無機微粒子の含有量(体積%)		42	62	65
重合性化合物の重合体の屈折率( $n^1$ )		1.56	1.56	1.46
屈折率の差( $ n^1 - n^2 $ )(最大値)		0.01	0.57	0.31
全光線透過率( $T_o$ (%))		61	5	50
全光線反射率( $R_o$ (%))		35	93	15
$T_o + R_o$		96	98	65
硬化深度( $\mu m$ )		630	170	120
硬化体の比重		1.8	2.0	1.8
透湿度( $g/m^2 \cdot 24h$ )		96	83	98
吸湿率(%)		3.6	12.2	2.2
封止基板の硬化状態		A	A	A
封止基板の信頼性試験(hr)		600	840	576

[0135]

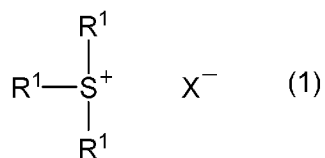
[表3]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
重合性 化合物 (質量部)	(A-1)	80	—	—	—
	(A-2)	—	80	—	—
	(A-3)	—	—	60	—
	(A-4)	10	20	40	—
	(A-5)	10	—	—	100
重合 開始剤 (質量部)	(B-1)	—	1	1	—
	(B-2)	1	—	—	0.1
無機 微粒子 (質量部)	(C-1)	—	—	—	100
	(C-2)	—	—	—	100
	(C-3)	—	40	—	—
	(C-4)	—	—	160	—
光増感剤 (質量部)	(D-1)	—	—	—	—
無機微粒子の含有量(体積%)		0	27	54	65
重合性化合物の重合体の屈折率( $n^1$ )		1.46	1.49	1.56	1.46
屈折率の差( $ n^1 - n^2 $ ) (最大値)		—	0.08	0.57	0.31
全光線透過率( $T_0$ (%))		100	79	0	50
全光線反射率( $R_0$ (%))		0	16	37	15
$T_0 + R_0$		100	95	37	65
硬化深度( $\mu\text{m}$ )		>1000	240	20	40
硬化体の比重		1.1	1.3	2.5	1.8
透湿度( $\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{h}$ )		528	183	399	280
吸湿率(%)		0.8	1.2	32.5	19.5
封止基板の硬化状態		A	A	C	C
封止基板の信頼性試験(hr)		120	312	72	168

## 請求の範囲

- [請求項1] 重合性化合物と、無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有し、前記無機微粒子の含有量が30体積%以上であり、波長365nm、照射量600mJ/cm<sup>2</sup>の光照射を行い、80℃で30分静置したときの硬化深度が、100μm以上である、組成物。
- [請求項2] 前記重合性化合物が、炭素-炭素二重結合及び環状エーテルからなる群より選択される少なくとも一種の重合性基を有する、請求項1に記載の組成物。
- [請求項3] 前記無機微粒子が、前記重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ との差の絶対値 ( $|n_1 - n_2|$ ) が0.5以下となる屈折率 $n_2$ を有する無機微粒子である、請求項1又は2に記載の組成物。
- [請求項4] 前記無機微粒子の屈折率 $n_2$ が1.4以上である、請求項1～3のいずれか一項に記載の組成物。
- [請求項5] 前記無機微粒子の平均円形度が0.7以上1.0以下である、請求項1～4のいずれか一項に記載の組成物。
- [請求項6] 前記無機微粒子が、球状シリカ及び球状アルミナからなる群より選択される少なくとも一種を含む、請求項1～5のいずれか一項に記載の組成物。
- [請求項7] 厚さ100μmあたりの全光線透過率 $T_0$ (%)と全光線反射率 $R_0$ (%)との和( $T_0 + R_0$ )が、50%以上である、請求項1～6のいずれか一項に記載の組成物。
- [請求項8] 前記光重合開始剤が、下記式(1)で表される化合物を含む、請求項1～7のいずれか一項に記載の組成物。

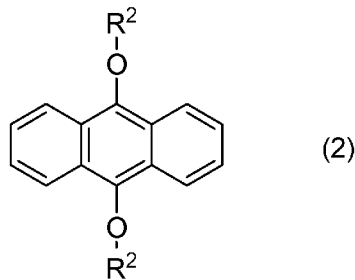
[化1]



[式(1)中、 $R^1$ は水素原子、置換基を有していてもよいアルキル基又は置換基を有していてもよいアリール基を示し、 $X^-$ は一価のアニオンを示す。複数存在する $R^1$ は互いに同一でも異なってもよい。]

[請求項9] 下記式(2)で表される光増感剤を更に含有する、請求項1～8のいずれか一項に記載の組成物。

[化2]



[式(2)中、 $R^2$ は置換基を有していてもよいアルキル基を示す。複数存在する $R^2$ は互いに同一でも異なってもよい。]

[請求項10] JIS Z0208に準拠して、温度85℃、相対湿度85%の条件下で測定される厚さ100 $\mu$ mあたり透湿度が100g/( $m^2 \cdot 24$ 時間)以下の硬化体を形成するための組成物である、請求項1～9のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項11] 温度85℃、相対湿度85%、24時間での吸水率が3%以下の硬化体を形成するための組成物である、請求項1～10のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項12] 有機EL表示素子用封止剤である、請求項1～11のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項13] ダム・フィル方式のダム形成用封止剤である、請求項1～12のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項14] 重合性化合物と、前記重合性化合物の重合体の屈折率 $n_1$ との差の絶対値( $|n_1 - n_2|$ )が0.5以下となる屈折率 $n_2$ を有する無機微粒子と、光重合開始剤と、を含有し、

前記無機微粒子の含有量が30体積%以上であり、  
前記光重合開始剤の含有量が、前記重合性化合物100質量部に対して0.3質量部以上であり、  
前記無機微粒子の平均円形度が0.7以上1.0以下である、組成物。

[請求項15] 請求項1～14のいずれか一項に記載の組成物の硬化体。

[請求項16] 有機EL表示素子と、  
前記有機EL表示素子を封止する、ダム及びフィル剤からなる封止構造と、  
を備え、  
前記ダムが、請求項15に記載の硬化体を含む、有機EL表示装置。

[請求項17] 有機ELテレビである、請求項16に記載の有機EL表示装置。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/015693

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C08F 2/44</i> (2006.01)i; <i>C08F 2/50</i> (2006.01)i; <i>C08G 59/00</i> (2006.01)i; <i>C08L 63/00</i> (2006.01)i; <i>G09F 9/30</i> (2006.01)i; <i>H01L 27/32</i> (2006.01)i; <i>H01L 51/50</i> (2006.01)i; <i>H05B 33/04</i> (2006.01)i FI: C08F2/44 A; H05B33/14 A; H01L27/32; H05B33/04; C08F2/50; G09F9/30 365; G09F9/30 309; C08G59/00; C08L63/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08F2/44; C08F2/50; C08G59/00; C08L63/00; G09F9/30; H01L27/32; H01L51/50; H05B33/04		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 62-246514 A (G C DENTAL IND CORP) 27 October 1987 (1987-10-27) claims, p. 3, lower right column, lines 9-13, p. 10, upper left column, line 9 to lower left column, line 10, p. 10, lower right column, lines 7-18, p. 14, lower column, tables	1-7, 10-11, 14-15
A		8-9, 12-13, 16-17
X	JP 2004-123775 A (TAIYO INK MFG CO LTD) 22 April 2004 (2004-04-22) claims, paragraphs [0001], [0007], [0012], [0047]-[0056]	1-7, 10-17
A		8-9
X	JP 2015-124286 A (DAICEL CORP) 06 July 2015 (2015-07-06) claims, paragraphs [0002], [0021], [0041], [0049], [0057], [0084], [0097]-[0106]	1-17
X	JP 2009-531515 A (NATIONAL STARCH AND CHEMICAL INVESTMENT HOLDING CORPORATION) 03 September 2009 (2009-09-03) claims, paragraphs [0025]-[0026], [0030]-[0064]	1-11, 14-15
A		12-13, 16-17
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 <b>10 June 2022</b>		Date of mailing of the international search report <b>21 June 2022</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/JP2022/015693**

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2015/166657 A1 (MITSUI CHEMICALS INC) 05 November 2015 (2015-11-05)	1-7, 10-12, 14-15
A	paragraphs [0003], [0113], [0165], [0168], [0171]	8-9, 13, 16-17
E, X	WO 2022/085599 A1 (DENKA COMPANY LTD) 28 April 2022 (2022-04-28)	1-17
	claims, examples 1-10	
P, X	WO 2021/201013 A1 (DENKA COMPANY LTD) 07 October 2021 (2021-10-07)	1-17
	claims, examples 1-14, 1-15, 1-17, 1-20, 2-1	

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2022/015693**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	62-246514	A	27 October 1987	US 4820744 A claims, column 1, lines 6-12, examples 1, 7-9, column 15, tables	
				US 5043361 A	
JP	2004-123775	A	22 April 2004	KR 10-2004-0028570 A	
				CN 1497345 A	
				TW 200407669 A	
JP	2015-124286	A	06 July 2015	(Family: none)	
JP	2009-531515	A	03 September 2009	US 2010/0164368 A1 claims, paragraphs [0025]-[0026], [0030]-[0053]	
				WO 2007/111606 A1	
				TW 200736331 A	
				KR 10-2008-0105118 A	
				CN 101410433 A	
				CN 102336890 A	
				CN 103772649 A	
WO	2015/166657	A1	05 November 2015	KR 10-2016-0111434 A	
				CN 106062121 A	
				TW 201546160 A	
WO	2022/085599	A1	28 April 2022	(Family: none)	
WO	2021/201013	A1	07 October 2021	(Family: none)	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08F 2/44(2006.01)i; C08F 2/50(2006.01)i; C08G 59/00(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; G09F 9/30(2006.01)i; H01L 27/32(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i; H05B 33/04(2006.01)i FI: C08F2/44 A; H05B33/14 A; H01L27/32; H05B33/04; C08F2/50; G09F9/30 365; G09F9/30 309; C08G59/00; C08L63/00</p>																	
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08F2/44; C08F2/50; C08G59/00; C08L63/00; G09F9/30; H01L27/32; H01L51/50; H05B33/04</p> <p>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</p> <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>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年							
日本国実用新案公報	1922-1996年																
日本国公開実用新案公報	1971-2022年																
日本国実用新案登録公報	1996-2022年																
日本国登録実用新案公報	1994-2022年																
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X A</td> <td>JP 62-246514 A（而至歯科工業株式会社）27.10.1987（1987-10-27） 特許請求の範囲、3頁右下欄9-13行、10頁左上欄9行-同頁左下欄10行、10頁右下欄7-18行、14頁下欄表</td> <td>1-7, 10-11, 14-15  8-9, 12-13, 16-17</td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>JP 2004-123775 A（太陽インキ製造株式会社）22.04.2004（2004-04-22） 特許請求の範囲、[0001]、[0007]、[0012]、[0047]-[0056]</td> <td>1-7, 10-17  8-9</td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>JP 2015-124286 A（株式会社ダイセル）06.07.2015（2015-07-06） 特許請求の範囲、[0002]、[0021]、[0041]、[0049]、[0057]、[0084]、[0097]-[0106]</td> <td>1-17</td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>JP 2009-531515 A（ナショナル スターチ アンド ケミカル インベストメント ホールディング コーポレイション）03.09.2009（2009-09-03） 特許請求の範囲、[0025]-[0026]、[0030]-[0064]</td> <td>1-11, 14-15  12-13, 16-17</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	X A	JP 62-246514 A（而至歯科工業株式会社）27.10.1987（1987-10-27） 特許請求の範囲、3頁右下欄9-13行、10頁左上欄9行-同頁左下欄10行、10頁右下欄7-18行、14頁下欄表	1-7, 10-11, 14-15  8-9, 12-13, 16-17	X A	JP 2004-123775 A（太陽インキ製造株式会社）22.04.2004（2004-04-22） 特許請求の範囲、[0001]、[0007]、[0012]、[0047]-[0056]	1-7, 10-17  8-9	X A	JP 2015-124286 A（株式会社ダイセル）06.07.2015（2015-07-06） 特許請求の範囲、[0002]、[0021]、[0041]、[0049]、[0057]、[0084]、[0097]-[0106]	1-17	X A	JP 2009-531515 A（ナショナル スターチ アンド ケミカル インベストメント ホールディング コーポレイション）03.09.2009（2009-09-03） 特許請求の範囲、[0025]-[0026]、[0030]-[0064]	1-11, 14-15  12-13, 16-17
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号															
X A	JP 62-246514 A（而至歯科工業株式会社）27.10.1987（1987-10-27） 特許請求の範囲、3頁右下欄9-13行、10頁左上欄9行-同頁左下欄10行、10頁右下欄7-18行、14頁下欄表	1-7, 10-11, 14-15  8-9, 12-13, 16-17															
X A	JP 2004-123775 A（太陽インキ製造株式会社）22.04.2004（2004-04-22） 特許請求の範囲、[0001]、[0007]、[0012]、[0047]-[0056]	1-7, 10-17  8-9															
X A	JP 2015-124286 A（株式会社ダイセル）06.07.2015（2015-07-06） 特許請求の範囲、[0002]、[0021]、[0041]、[0049]、[0057]、[0084]、[0097]-[0106]	1-17															
X A	JP 2009-531515 A（ナショナル スターチ アンド ケミカル インベストメント ホールディング コーポレイション）03.09.2009（2009-09-03） 特許請求の範囲、[0025]-[0026]、[0030]-[0064]	1-11, 14-15  12-13, 16-17															
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																	
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&amp;” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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				
* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの																
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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																
“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	“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																
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献																
“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																	
<p>国際調査を完了した日</p> <p>10.06.2022</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>21.06.2022</p>																
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁 (ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>尾立 信広 4J 8380</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	WO 2015/166657 A1 (三井化学株式会社) 05.11.2015 (2015 - 11 - 05) [0003]、[0113]、[0165]、[0168]、[0171]	1-7, 10-12, 14-15 8-9, 13, 16-17
E, X	WO 2022/085599 A1 (デンカ株式会社) 28.04.2022 (2022 - 04 - 28) 特許請求の範囲、実施例1-10	1-17
P, X	WO 2021/201013 A1 (デンカ株式会社) 07.10.2021 (2021 - 10 - 07) 特許請求の範囲、実施例1-14 1-15 1-17 1-20 2-1	1-17

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/015693

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 62-246514 A	27.10.1987	US 4820744 A 特許請求の範囲、1欄6-12 行、EXAMPLE 1、EXAMPLES 7-9、15欄TABLE US 5043361 A	
JP 2004-123775 A	22.04.2004	KR 10-2004-0028570 A CN 1497345 A TW 200407669 A	
JP 2015-124286 A	06.07.2015	(ファミリーなし)	
JP 2009-531515 A	03.09.2009	US 2010/0164368 A1 特許請求の範囲、[0025]- [0026]、[0030]-[0053] WO 2007/111606 A1 TW 200736331 A KR 10-2008-0105118 A CN 101410433 A CN 102336890 A CN 103772649 A	
WO 2015/166657 A1	05.11.2015	KR 10-2016-0111434 A CN 106062121 A TW 201546160 A	
WO 2022/085599 A1	28.04.2022	(ファミリーなし)	
WO 2021/201013 A1	07.10.2021	(ファミリーなし)	