

(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
2014 年 1 月 23 日(23.01.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/013716 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 65/18 (2006.01) *G09F 9/30* (2006.01)
C08G 59/18 (2006.01) *H01L 27/32* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C08K 5/00 (2006.01) *H05B 33/04* (2006.01)
C08L 71/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/004331
- (22) 国際出願日: 2013 年 7 月 16 日(16.07.2013)
- (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 2012-160182 2012 年 7 月 19 日(19.07.2012) JP
- (71) 出願人: 日本化薬株式会社(NIPPON KAYAKU KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1028172 東京都千代田区富士見一丁目 1 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 内藤 伸彦(NAITOU, Nobuhiko); 〒1158588 東京都北区志茂 3-3-1-12 日本化薬株式会社 機能化学品研究所内 Tokyo (JP). 松尾 雄一郎(MATSUO, Yuichiro); 〒1158588 東京都北区志茂 3-3-1-12 日本化薬株式会社 機能化学品研究所内 Tokyo (JP). 市川 淳子(ICHIKAWA, Junko); 〒1158588 東京都北区志茂 3-3-1-12 日本化薬株式会社 機能化学品研究所内 Tokyo (JP). 水口 貴文(MIZUGUCHI,

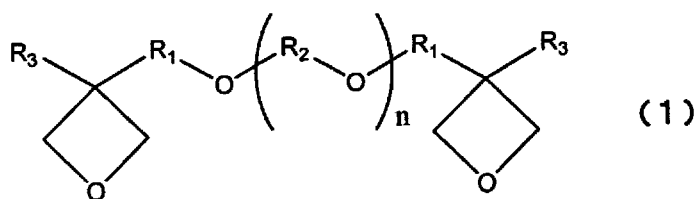
Takafumi); 〒1158588 東京都北区志茂 3-3-1-12 日本化薬株式会社 機能化学品研究所内 Tokyo (JP). 堤 裕貴(TSUTSUMI, Hiroki); 〒1158588 東京都北区志茂 3-3-1-12 日本化薬株式会社 Tokyo (JP).

- (74) 代理人: 佐伯 憲生(SAEKI, Norio); 〒1030027 東京都中央区日本橋三丁目 1 番 8 号 アミノ酸会館ビル 4 階 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (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

[続葉有]

(54) Title: ENERGY RAY-CURABLE RESIN COMPOSITION AND CURED PRODUCT THEREOF

(54) 発明の名称: エネルギー線硬化型樹脂組成物及びその硬化物



(57) Abstract: The present invention relates to an energy ray-curable resin composition for organic EL element sealing materials, which contains two or more compounds (A), for example, compounds represented by formula (1), said compounds (A) having two or more oxetane rings in each molecule. This resin composition has small curing shrinkage and provides a cured product that has excellent visible light transmittance, excellent light resistance, high Tg and low water vapor transmission rate. Consequently, this resin composition is useful as a solid sealing material for solid sealing of organic EL elements. (In formula (1), each R₁ independently represents a direct bond or a linear or branched chain hydrocarbon group having 1-6 carbon atoms; R₂ represents a linear or branched chain hydrocarbon group having 1-15 carbon atoms or a hydrocarbon group containing an alicyclic ring, an aromatic ring, a heterocyclic ring or a fused ring; each R₃ independently represents a linear or branched chain hydrocarbon group having 1-6 carbon atoms; and n represents 0 (zero) or an integer having an average of 1-5.)

(57) 要約: 本発明は、分子中に 2 つ以上のオキセタン環を有する化合物 (A)、例えば下記式 (1) (式中、R₁ はそれぞれ独立して直接結合または炭素数 1 ~ 6 の直鎖または分岐鎖状の炭化水素基を示し、R₂ は炭素数 1 ~ 15 の直鎖若しくは分岐鎖状の炭化水素基、または、脂環、芳香環、複素環若しくは縮合環を含む炭化水素基を示し、R₃ はそれぞれ独立して炭素数 1 ~ 6 の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を示し、n は 0 (ゼロ)、又は、平均値で 1 ~ 5 の整数を表す) を 2 種類以上含有する有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物に関するものであり、該樹脂組成物は硬化収縮率が小さく、可視光透過率、耐光性に優れ、Tg が高く、水蒸気透過度の低い硬化物となることから、有機 EL 素子における固体封止に固体封止材として有用である。

WO 2014/013716 A1

WO 2014/013716 A1



(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))

明 細 書

発明の名称：エネルギー線硬化型樹脂組成物及びその硬化物

背景技術

[0001] エネルギー線硬化樹脂は、一般的に無溶剤で加工ができる為、作業性に優れる。また、硬化速度が早く、エネルギー必要量が低いことからエネルギー線硬化技術はディスプレイ周辺材料を始め、種々の産業において重要な技術である。近年、ディスプレイはフラットパネルディスプレイ（F P D）と称される薄型のディスプレイ、特にプラズマディスプレイ（P D P）、液晶ディスプレイ（L C D）が市場投入され広く普及している。また、次世代の自発光型薄膜ディスプレイとして有機E Lディスプレイ（O L E D）が期待されており、一部の商品では既に実用化されている。有機E Lディスプレイの有機E L素子は、T F T等の駆動回路が形成されたガラス等の基板上に、陰極および陽極によって挟持された発光層を含む薄膜積層体からなる素子部本体が形成された構造を有している。素子部の発光層または電極といった層は、水分または酸素により劣化し易く、劣化によって輝度やライフの低下、変色が発生する。その為、有機E L素子は、外部からの水分または不純物の浸入を遮断するように封止されている。高品質で高信頼性の有機E L素子の実現に向けて、より高性能な封止材料が望まれており、従来から種々封止技術が検討されている。

[0002] 有機E L素子の代表的な封止方法として、予め乾燥剤を挿入した金属製またはガラス製の封止キャップを、封止用接着剤を用いて有機E L素子の基板に固定する方法が検討されている。この方法は、有機E L素子の基板外周部に接着剤を塗布し、その上に封止キャップを設置、次いで接着剤を固化させることによって、基板と封止キャップとを固定し、有機E L素子を密閉している。このような方法では、ガラス製の封止キャップによる封止が主流となっている。しかし、ガラス製の封止キャップは、平坦なガラス基板に乾燥剤を挿入するための掘り込みを加工することによって作製されるため、高コストとなる傾向がある。また、封止キャップによる封止は、封止キャップの内

側に乾燥剤が挿入されることになるため、封止キャップ側から光を取り出すことはできない。即ち、光源から放たれた光は素子の基板側から取り出されることになり、ボトムエミッション型の素子に制限される。ボトムエミッション型の素子の場合、基板に形成された駆動回路部による開口率の低下、および駆動回路部によって光が一部遮られることによる取り出し効率の低下の問題がある。そのため、有機ＥＬ素子の基板の反対側から光を取り出すトップエミッション型の素子に適用可能な封止方法の開発が望まれている。

[0003] トップエミッション型の素子に適用可能な代表的な封止方法として、薄膜封止法および固体封止法がある。薄膜封止法は、有機ＥＬ素子の上に無機または有機材料からなる薄膜を多層積層してパッシベーション膜とする方法である。この方法によって素子に十分な防湿性を付与するには、素子上に何層もの薄膜を順次積層する必要がある。そのため、薄膜封止法では成膜工程が長く高コストとなり、また成膜に必要とされる大型の真空系設備の導入によって初期投資が高くなる傾向がある。

[0004] 一方、固体封止法は、有機ＥＬ素子の素子部全体を覆うようにパッシベーション膜を設け、その上に封止材料を介して封止用透明基板を設ける方法である。一般に、パッシベーション膜は、無機材料を蒸着またはスパッタリングすることによって形成されるが、それはピンホールを有する不完全な膜であるか、機械的強度の弱い膜であることが多い。そのため、固体封止法では、素子上にパッシベーション膜を設けた後に、封止用接着剤を介してガラス基板などの封止用透明基板を設けることによって封止の信頼性を高めている。このような固体封止法は、簡便かつ低コストでトップエミッション型の素子の封止を実施可能な方法として注目を集めている。

[0005] 有機ＥＬ素子の固体封止法による封止では、熱または光硬化性樹脂を封止用接着剤として使用することが可能であるが、それらの特性は素子の性能および封止作業の生産性に著しい影響を及ぼす可能性があるため非常に重要である。例えば、封止用接着剤の水蒸気透過率が十分でないとパッシベーション膜のピンホールから素子部に浸入し、素子の劣化を招く可能性がある。ま

た、封止材料の硬化反応が遅ければ、硬化工程に時間がかかり、封止作業の生産性が低下する可能性がある。

[0006] これらに用いられる封止用接着剤には、可視光領域での高い透過率の他、発光に耐えうる耐光性、安定した成形性や残留応力抑制のための低硬化収縮性、発光素子を湿気から保護するための低水蒸気透過率などが求められる。有機EL素子の封止用接着剤として周知の接着剤を使用して固体封止法による封止を実施することは可能であるが、信頼性および生産性の双方で満足できる結果を得ることは難しいのが現状であり、固体封止法に好適に使用可能な封止用接着剤の開発が望まれている。

オキセタン化合物を含む硬化性樹脂組成物は、いくつか知られている（例えば特許文献1～5）。しかしながら、オキセタン環を少なくとも2つ有する化合物を少なくとも2種併用した有機EL用に使用される硬化樹脂組成物は知られていない。

先行技術文献

特許文献

- [0007] 特許文献1：特許第3876630
特許文献2：特許第2679586
特許文献3：特許第4421938
特許文献4：特許第4655172
特許文献5：特開2000-169552号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] 有機EL素子の封止材に適した樹脂組成物には、硬化収縮率の小さいこと、該樹脂組成物から得られる硬化物は、可視光透過率、耐光性、硬化性に優れ、T_gが高く、水蒸気透過度が低いという特性が要求されている。本発明の目的は、そのような要求を満たす、有機EL素子の封止材に適した樹脂組成物及び該樹脂組成物から得られる硬化物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、前記課題を解決するため鋭意研究の結果、分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）を少なくとも2種類含有するエネルギー線硬化型樹脂組成物及びその硬化物が前記課題を解決することを見出し、本発明を完成させた。

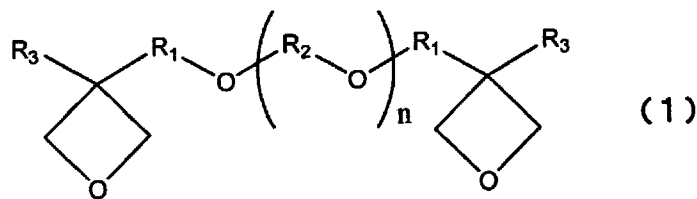
[0010] 即ち、本発明は、下記（1）～（23）に関する。

（1） 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）を2種類以上含有する有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

（2） エネルギー線硬化型樹脂組成物が、重量平均分子量10,000g/mol以上である反応性基を有さない有機化合物成分を含まないか、又は、含む場合はその含有量が該樹脂組成物の総量に対して1.5重量%未満であることを特徴とする（1）に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

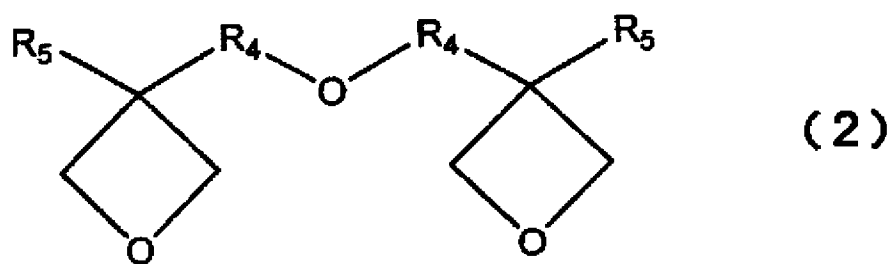
（3） 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）が少なくとも下記一般式（1）または下記一般式（2）で表されるオキセタン環を有する化合物、

式（1）



（式中、 R_1 はそれぞれ独立して直接結合または炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状の炭化水素基を示し、 R_2 は炭素数1～15の直鎖若しくは分岐鎖状の炭化水素基、または、脂環、芳香環、複素環若しくは縮合環を含む炭化水素基を示し、 R_3 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を示し、 n は平均値で1～5の整数を表す）、

式（2）



(式中、 R_4 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状の炭化水素基、及び R_5 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を表す)、

である上記(1)または(2)に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[0011] (4) 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)が少なくとも分子中に脂環または芳香環を有する化合物である(1)乃至(3)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(5) 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)として、上記式(1)の化合物及び上記式(2)の化合物を含有する(1)乃至(4)のいずれか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(6) 式(1)の化合物1質量部に対して、式(2)の化合物の含有割合が0.6～1.5質量部の範囲である上記(5)に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(7) 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)を2種類以上含有し、該樹脂組成物中に含まれる全有機化合物成分が重量平均分子量10,000g/mol以下で、且つ、20℃～80℃で相互に可溶な成分から構成された上記(1)乃至(5)のいずれか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(8) (メタ)アクリレート化合物を含まないか、又は含んでも、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、15質量部未満である上記(1)乃至(6)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

脂組成物。

[0012] (9) 更に、エポキシ化合物 (B) 及び光カチオン重合開始剤 (C) の何れか一方若しくは両者を含み、その含量が、溶剤を除く樹脂組成物の総量 100 質量部に対して、0.1～70 質量部であり、上記化合物 (A) を、その合計含量で、溶剤を除く樹脂組成物の総量 100 質量部に対して、30～99.9 質量部含む上記 (1) 乃至 (8) の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(10) 更に、エポキシ化合物 (B) を含有する上記 (1) 乃至 (8) の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(11) エポキシ化合物 (B) が脂環式エポキシ化合物である上記 (9) 又は (10) に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(12) エポキシ化合物 (B) が分子中に 2 個以上のエポキシ基を有する化合物である上記 (9) 乃至 (11) の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(13) エポキシ化合物 (B) を、上記化合物 (A) とエポキシ化合物 (B) の総量 100 質量部に対して、20～70 質量部含有する上記 (10) 乃至 (12) の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(14) 分子中に 2 つ以上のオキセタン環を有する化合物 (A) を、該化合物 (A) およびエポキシ化合物 (B) の総量 100 質量部に対して、30～90 質量部含有する上記 (10) 乃至 (13) の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[0013] (15) 更に、光カチオン重合開始剤 (C) を含有する上記 (1) 乃至 (14) 11 の何れか一項に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(16) 光カチオン重合開始剤 (C) がスルホニウム塩、ヨードニウム塩、ホスホニウム塩、アンモニウム塩及びアンチモン酸塩からなる群から選択される少なくとも一つである上記 (15) に記載の有機 EL 素子封止材用エネルギー

ギー線硬化型樹脂組成物。

(17) 更に、微粒子(D)を含有する上記(1)乃至(16)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(18) 微粒子(D)の一次粒径が100nm以下である上記(17)に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(19) E型粘度計で測定した25℃での粘度が10mPa・s以上である(1)乃至(18)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(20) 該樹脂組成物を硬化したときの硬化収縮率が、5.5%以下である(1)乃至(15)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

(21) 上記(1)乃至(20)の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物を硬化せしめて得られる硬化物。

(22) 厚み100μmでの水蒸気透過率が200g/m²・day/60℃以下である上記(21)に記載の硬化物。

(23) 上記(21)または(22)に記載の硬化物を有する有機ELディスプレイ。

発明の効果

[0014] 本発明の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物（以下単に本発明の樹脂組成物とも云う）は硬化収縮率が小さく、該樹脂組成物の硬化物は、可視光透過率、耐光性に優れ、耐熱性が高く、水蒸気透過度が低いことから、特に有機EL素子の封止材に適している。

発明を実施するための形態

[0015] 本発明における「有機EL素子封止材用」の語は、有機EL素子の封止、特に固体封止における、ガラス等の封止基板と有機EL素子の間に充填される固体封止剤としての用途を意味する。

本発明の樹脂組成物は、分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)を2種類以上含有することを特徴とする。

上記の構成により、2種類の2官能のオキセタン化合物が硬化時に相互に硬化系に導入されることとなり、1種類では達成できなかった、耐熱性、剛性、屈折率制御、耐水性、低収縮率の効果を同時に達成することが可能となる。

即ち、1種類の2官能のオキセタン化合物の使用、又は、単官能オキセタン化合物と1種類の2官能オキセタン化合物の併用では、上記の効果を同時に達成することは難しかった。しかし、2種類の2官能オキセタン化合物を使用することで、硬化時の低収縮率、高い剛性、高い屈折率、高い耐水性を維持しつつ、2種類以上のオキセタン化合物同士が硬化系に複雑に導入されていくため、相乗効果として1種類のみでは達成し得なかった極めて高い耐熱性（高いガラス転位点（ T_g ））を有する硬化物の提供が可能となる。更に、2種類以上使用することで、耐熱性、剛性、屈折率、収縮率について、制御を行うことが極めて容易になる。

[0016] 本発明の樹脂組成物に含有される分子中に少なくとも2つのオキセタン環を有する化合物（A）としては、分子中に少なくとも2つのオキセタン環を有していれば何れも使用することが可能である。

分子中に少なくとも2つのオキセタン環を有する化合物（A）としては、例えば、1,4-ビス{[(3-エチルー3-オキセタニル)メトキシ]メチル}ベンゼン（市販品としては、これを主成分（80%以上含む）とするアロンオキセタン^{RTM} OXT-121）（東亜合成株式会社）；キシリレンビスオキセタン）、3-エチルー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、ジ[2-(3-オキセタニル)ブチル]エーテル、1,4-ビス[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]ベンゼン、1,3-ビス[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]ベンゼン、1,2-ビス[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]ベンゼン、4,4'-ビス[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]ビフェニル、2,2'-ビス[(3-エチルー3-オキセタニル)メトキシ]ビフェニル、3,3',5,5'-テトラメチル[4,4'-ビス(3-

エチルオキシタン-3-イル)メトキシ]ビフェニル、2, 7-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル)メトキシ]ナフタレン、1, 6-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル)メトキシ]-2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロヘキサン、3 (4), 8 (9)-ビス [(1-エチル-3-オキシタニル)メトキシメチル]トリシクロ [5. 2. 1. 2. 6]デカン、1, 2-ビス { [2- (1-エチル-3-オキシタニル)メトキシ]エチルチオ}エタン、4, 4'-ビス [(1-エチル-3-オキシタニル)メチル]チオジベンゼンチオエーテル、2, 3-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル)メトキシメチル]ノルボルナン、2-エチル-2- [(3-エチルオキシタン-3-イル)メトキシメチル]-1, 3-ジオール [(1-エチル-3-オキシタニル)メチル]-プロパン-1, 3-ジオール、2, 2-ジメチル-1, 3-ジオール [(3-エチルオキシタン-3-イル)メチル]-プロパン-1, 3-ジオール、2-ブチル-2-エチル-1, 3-ジオール [(3-エチルオキシタン-3-イル)メチル]-プロパン-1, 3-ジオール、1, 4-ジオール [(3-エチルオキシタン-3-イル)メチル]-ブタン-1, 4-ジオール、2, 4, 6-トリオキシ [(3-エチルオキシタン-3-イル)メチル]シアヌル酸等があげられる。これらは2種以上を用いることが好ましく、少なくとも1つはアルキレンオキシ基を有するオキシタン化合物が好ましい。

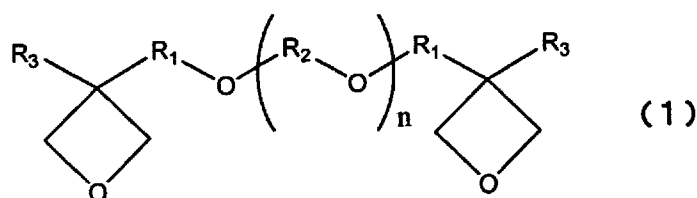
[0017] 本発明で使用される好ましい少なくとも2つのオキセタン環を有するオキセタン化合物としては、少なくとも2つのオキセタン環が、少なくとも一つのエーテル結合を含む架橋基により連結されたオキセタン化合物を挙げることが出来る。本発明においては、好ましくは、該オキセタン化合物を少なくとも2種類使用する。好ましい態様においては、タイプの異なる2種類を使用する。好ましい一つの態様は、上記のエーテル結合を含む架橋基が環構造を含まない鎖状の架橋基であるオキセタン化合物と、環構造を含む鎖状の架橋基であるオキセタン化合物の2種類を併用する態様である。該2種類のオキセタン化合物を併用することにより、上記の効果をよりよく達成すること

が出来る。

少なくとも2つのオキセタン環が、少なくとも一つのエーテル結合を含む架橋基により連結されたオキセタン化合物としては、上記一般式(1)または一般式(2)の化合物を挙げることが出来る。なお、本発明における「架橋基」は、2つの原子の間を結合する2価の基を意味する。

該オキセタン化合物の2種類の組合せとしては、上記一般式(1)の化合物と一般式(2)の化合物の組合せが好ましい。特に、市場から入手しやすい点で、キシリレンビスオキセタン及び3-エチルー3-{[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]メチル}オキセタンの組合せは特に好ましい。

[0018] 本発明で2官能オキセタン化合物として使用される好ましい一つの化合物は、一般式(1)



(式中、 R_1 はそれぞれ独立に、直接結合または炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基(炭化水素結合)を示し、 R_2 は炭素数1~15の直鎖若しくは分岐鎖状の炭化水素基(炭化水素結合)、または、脂環、芳香環、複素環若しくは縮合環を含む炭化水素基を示し、 R_3 はそれぞれ独立して炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を示し、 n は平均値で1~5の整数を表す。)

で表されるオキセタン化合物である。

なお、上記式(1)における R_1 及び R_2 は上記構造式から明らかな通り、2価の炭化水素基であり、 R_3 は1価の炭化水素基である。

R_1 としては、炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基が好ましく、炭素数1~6のアルキレン基がより好ましく、炭素数1~3のアルキレン基が特に好ましい。

R_2 としては、炭素数1~12の直鎖アルキレン基、炭素数1~12の分岐

鎖状アルキレン基、炭素数3～12のフェニレン基またはシクロアルキレン基を有するアルキレン基が好ましく、炭素数6～12のフェニレン基を有するアルキレン基（好ましくは炭素数1～4のアルキレン基）が特に好ましい。

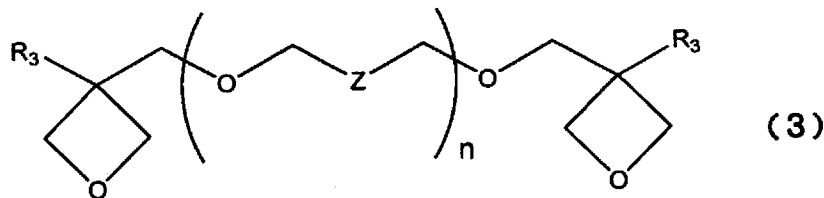
R_3 としては、炭素数1～3のアルキル基が好ましい。

n としては、1～3が好ましい。

尚、上記式(1)の化合物において、 R_2 に脂環、芳香環、複素環、縮合環といった環構造（例えば、フェニレン基、ナフタレン基、炭素数3～8のシクロアルキレン基）を有するオキセタン化合物を用いると、硬化収縮率が小さくなり、硬化物の T_g （ガラス転移点）、剛性、屈折率が向上するため好ましい。

ここで、上記式(1)の化合物において、特に好ましい具体例としては、下記一般式(3)

[0019]



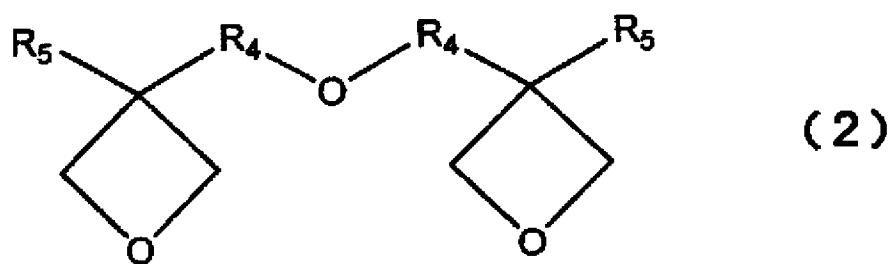
（式中、 R_3 は前記式(1)と同じ意味を表し、同一でも異なってもよい。Zは炭素数3～12の環状基を表し、該環は脂環（脂肪族環）、芳香環、複素環又は縮合環の何れでもよい。 n は平均値で1～5の整数を表す。）で表される化合物である。

Zの炭素数3～12の環状基としては2価の脂肪族環基又は芳香環基が好ましく、フェニレン基が特に好ましい。

上記式(3)の化合物を用いることで、硬化収縮率をより低く保つことが可能となる。

[0020] また、下記一般式(2)で表されるオキセタン化合物は下記の通りである。

[0021]



式中、 R_4 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状の炭化水素基、及び R_5 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を表す。なお、 R_4 は上記構造式から明らかなとおり、2価の炭素数1～6の炭化水素基であり、 R_5 は1価の炭化水素基である。

上記式(2)において、 R_4 は炭素数1～6の直鎖炭化水素基、さらに好ましくは炭素数1～3のアルキレン基である。

R_5 においては、炭素数1～3の直鎖炭化水素基が好ましく、特に好ましくは炭素数1～3のアルキル基である。

[0022] また、成分の1つとして脂環、芳香環、複素環、縮合環といった環構造（例えば、フェニレン基、ナフタレン基、炭素数3～8のシクロアルキレン基）を有するオキセタン化合物を用いると硬化物の T_g （ガラス転移点）、剛性、屈折率が向上するため好ましい。さらに好ましくは、環構造が脂環または芳香環であるオキセタン化合物である。具体的には上記一般式(3)で表される化合物である。本発明の成分(A)の含有量は反応性化合物である成分(A)＋成分(B)の総量100質量部に対して、30～100質量部であり、より好ましくは30～90質量部であり、特に好ましくは40～90質量部である。また、場合により、成分(A)の上記含有量は30～80質量部も好ましく、更に好ましくは50～75質量部である。残部が成分(B)である。

また、本発明の樹脂組成物の総量（溶剤を含む場合は溶剤を除く）100質量部に対する成分(A)の含有割合は、通常30～99.9質量部であり、より好ましくは40～99.5質量部、更に好ましくは、50～99.5質量部である。

成分（Ａ）の官能基当量としては、 $10 \sim 500 \text{ g/eq}$ が好ましく、 $50 \sim 250 \text{ g/eq}$ がさらに好ましい。

また、官能基当量が $50 \sim 150 \text{ g/eq}$ の前記オキセタン化合物（好ましくは式（２）で表される化合物）と、官能基当量が $100 \sim 200 \text{ g/eq}$ であり芳香環を有するオキセタン化合物（好ましくは式（３）で表される化合物、より好ましくは式（３）でＺがフェニレン基である化合物）を組み合わせることで、高Ｔｇ（ガラス転移点）でありながら高い屈折率を有する樹脂組成物を得ることができる。

式（１）の化合物（好ましくは式（３）の化合物）と式（２）の化合物を組合わせて用いる場合、両者の比率は式（１）の化合物１質量部に対して、式（２）の化合物を通常 $0.6 \sim 1.5$ 質量部の範囲、好ましくは $0.7 \sim 1.3$ 質量部の範囲、より好ましくは $0.8 \sim 1.2$ 質量部、最も好ましくは、 $0.9 \sim 1.1$ 質量部の範囲である。

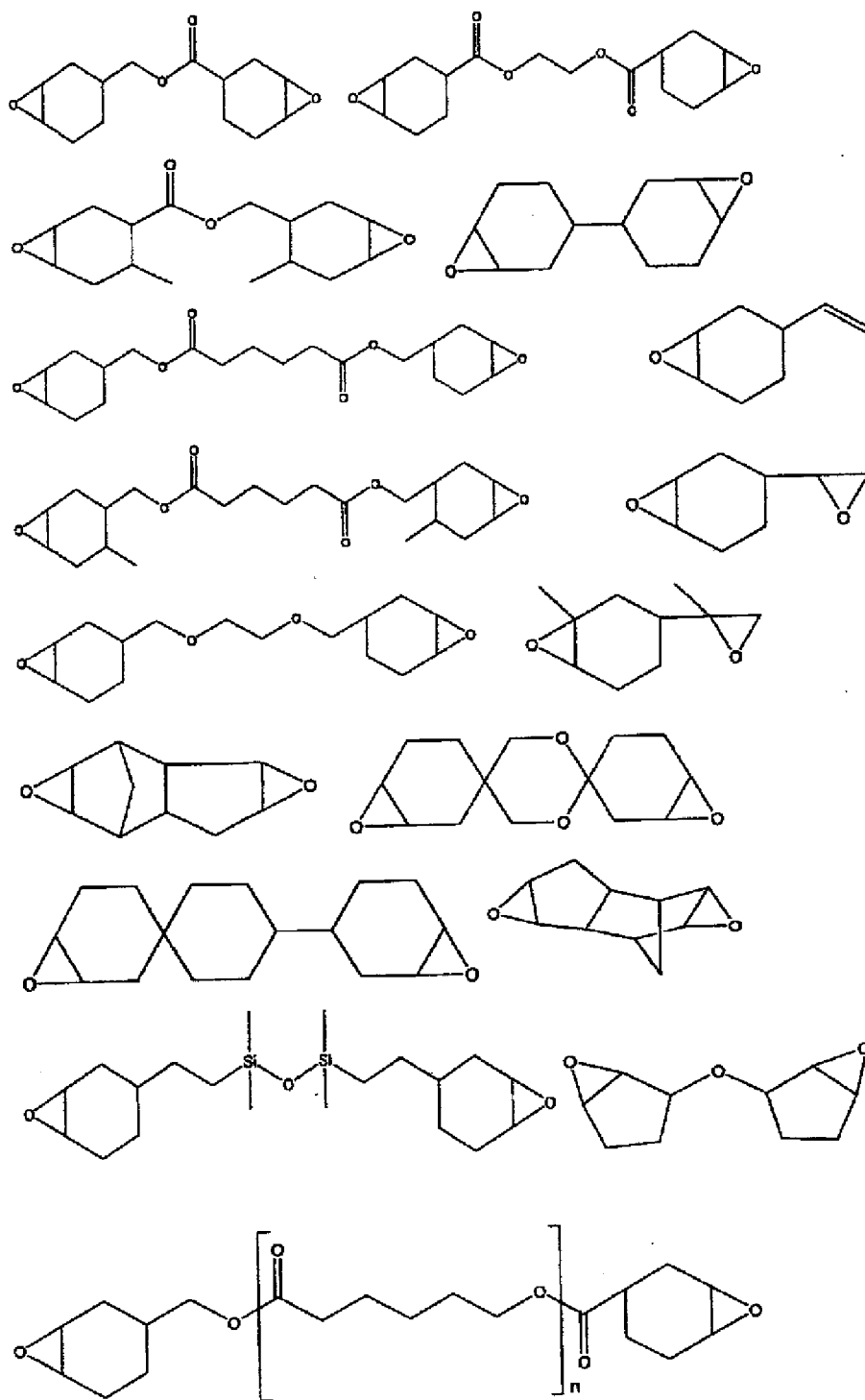
[0023] 本発明の樹脂組成物に含有されるエポキシ基を有する化合物（Ｂ）（以下エポキシ化合物（Ｂ）又は成分（Ｂ）とも云う）としては、単官能エポキシ化合物及び多官能エポキシ化合物の何れでも良い。また、芳香環を含むエポキシ化合物（芳香族エポキシ化合物）や芳香環を含まない脂肪族エポキシ化合物の何れでも良い。本発明においては、芳香族エポキシ化合物又は脂肪族環を含むエポキシ化合物（脂肪族環含有エポキシ化合物）が好ましい。特に、脂肪族環環上にエポキシ基が形成されている脂環式エポキシが好ましい。

[0024] 単官能エポキシ化合物としては、例えば、フェニルグリシジルエーテル、*p*-tert-ブチルフェニルグリシジルエーテル、ブチルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、1,2-ブチレンオキサイド、1,3-ブタジエンモノオキサイド、1,2-エポキシドデカン、エピクロロヒドリン、1,2-エポキシデカン、スチレンオキサイド、シクロヘキセンオキサイド、3-メタクリロイルオキシメチルシクロヘキセンオキサイド、3-アクリロイルオキシメチルシクロヘキセンオキサイド、3-ビニルシクロヘキセンオキサイド等が挙げられる。

[0025] 多官能エポキシ化合物の例としては、例えば、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールSジグリシジルエーテル、臭素化ビスフェノールAジグリシジルエーテル、臭素化ビスフェノールFジグリシジルエーテル、臭素化ビスフェノールSジグリシジルエーテル、エポキシノボラック樹脂、水添ビスフェノールAジグリシジルエーテル、水添ビスフェノールFジグリシジルエーテル、水添ビスフェノールSジグリシジルエーテル、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、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル-5, 5-スピロ-3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-メタン-ジオキサン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、ビニルシクロヘキセンオキサイド、4-ビニルエポキシシクロヘキサン、ビス(3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル)アジペート、3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシル-3', 4'-エポキシ-6'-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、メチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサン)、ジシクロペンタジエンジエポキシサイド、エチレングリコールのジ(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)エーテル、エチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート)、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジオクチル、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、1, 4-ブタンジオールジグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル、グリセリントリ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、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、1, 1, 3-テトラデカジエンジオキサイド、リモネンジオキサイド、1, 2, 7, 8-ジエポキシオクタン、1, 2, 5, 6-ジエポキシシクロオクタン等が挙げられる。

[0026] 脂環式エポキシの例としては、シクロヘキセンオキサイド、あるいはシクロペンテンオキサイドを含有する化合物であれば全て用いることができる。該脂環式エポキシとしては具体的には下記構造を持つ化合物が例示される。

[0027]



(式中、 n は平均値で 1 ～ 5 の正数を表す。)

[0028] 本発明で使用するエポキシ化合物（Ｂ）としては、通常用いられるエポキシ樹脂であれば前記で例示したもの限定されるものではない。

前記のエポキシ化合物のなかでも、芳香族エポキシ化合物及び脂環式エポキシ化合物が、硬化速度に優れるという点から好ましく、特に脂環式エポキシ化合物が好ましい。脂環式エポキシ化合物の中でも好ましくは2官能の脂環式エポキシ化合物であり、3, 4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3', 4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレートが特に好ましい。

上記エポキシ化合物(B)は単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。本発明の成分(B)の含有量は反応性化合物である成分(A)+成分(B)の総量100質量部に対して、通常0~70質量部であり、好ましくは10~70質量部であり、より好ましくは20~70質量部であり、特に好ましくは25~50質量部である。また、場合により、10~60質量部もより好ましい。

本発明で使用するエポキシ化合物(B)のエポキシ当量としては、50~500 g/eqが好ましく、100~300 g/eqがさらに好ましい。

[0029] 本発明の樹脂組成物に含有される光カチオン重合開始剤(C)としては、例えば芳香族ヨードニウム錯塩や芳香族スルホニウム錯塩等を挙げることができる。

[0030] 芳香族ヨードニウム錯塩の具体例としては、ジフェニルヨードニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジ(4-ノニルフェニル)ヨードニウムヘキサフルオロホスフェート等が挙げられる。

[0031] 芳香族スルホニウム錯塩の具体例としては、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、トリフェニルスルホニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、4, 4'-ビス[ジフェニルスルホニオ]ジフェニルスルフィド-ビスヘキサフルオロホスフェート、4, 4'-ビス[ジ(β -ヒドロキシエトキシ)フェニルスルホニオ]ジフェニルスルフィド-ビスヘキサフルオロアンチモネート、7-[ジ(p-トルイル)スルホニオ]-2-イソ

プロピルチオキサントンヘキサフルオロホスフェート、7- [ジ (p-トルイル) スルホニオ] -2-イソプロピルチオキサントンヘキサフルオロアンチモネート、7- [ジ (p-トルイル) スルホニオ] -2-イソプロピルテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレート、フェニルカルボニル-4'-ジフェニルスルホニオ-ジフェニルスルフィド-ヘキサフルオロホスフェート、フェニルカルボニル-4'-ジフェニルスルホニオ-ジフェニルスルフィド-ヘキサフルオロアンチモネート、4-tert-ブチルフェニルカルボニル-4'-ジフェニルスルホニオ-ジフェニルスルフィド-ヘキサフルオロホスフェート、4-tert-ブチルフェニルカルボニル-4'-ジフェニルスルホニオ-ジフェニルスルフィド-ヘキサフルオロアンチモネート、4-tert-ブチルフェニルカルボニル-4'-ジフェニルスルホニオ-ジフェニルスルフィド-テトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレート、チオフェニルジフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、チオフェニルジフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、4- {4- (2-クロロベンゾイル) フェニルチオ} フェニルビス (4-フルオロフェニル) スルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、チオフェニルジフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネートのハロゲン化物、4, 4', 4''-トリ (β-ヒドロキシエトキシフェニル) スルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、4, 4'-ビス [ジフェニルスルホニオ] ジフェニルスルフィド-ビスヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニル [4- (フェニルチオ) フェニル] スルホニウムトリフルオロトリスペンタフルオロエチルホスファート、トリス [4- (4-アセチルフェニルスルファニル) フェニル] スルホニウムトリス [(トリフルオロメチル) スルホニル] メタニド等を挙げることができる。

[0032] 芳香族スルホニウム錯塩の中でも、高感度でありかつ市場から入手しやすいチオフェニルジフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、4- {4- (2-クロロベンゾイル) 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] スルホニウムトリフルオロトリスペンタフルオロエチルホスファート、トリス[4-（4-アセチルフェニルスルファニル）フェニル] スルホニウムトリス[（トリフルオロメチル）スルホニル] メタニド等が好ましい。

さらに、環境及び人体への有害性、ならびに各国の規制を鑑みると、アンチモン元素を含有しないジフェニル[4-（フェニルチオ）フェニル] スルホニウムトリフルオロトリスペンタフルオロエチルホスファート、トリス[4-（4-アセチルフェニルスルファニル）フェニル] スルホニウムトリス[（トリフルオロメチル）スルホニル] メタニドを使用することが最も好ましい。

本発明の成分（C）の含有量は成分（A）+成分（B）の総量100質量部に対して、0.1～10質量部であり、好ましくは0.5～3質量部である。

また、樹脂組成物の総量（溶媒を含む場合は溶媒を除く）100質量部に対する、成分（C）の割合も上記と同じ範囲が好ましい。更に、成分（A）100質量部に対する成分（C）の含有割合もほぼ上記と同じ範囲が好ましい。

なお、本発明の樹脂組成物においては、光カチオン重合開始剤（C）は単独で用いてもよいし、複数種を混合して用いてもよい。

また、ラジカル型光重合開始剤を併用できる。ラジカル型光重合開始剤であれば、どの光重合開始剤でもよいが、例えば、2-ヒドロキシ-2-メチル-フェニルプロパン-1-オン又は1-ヒドロキシシクロヘキシル-フェニルケトンが挙げられる。

[0033] 本発明に使用される微粒子（D）としては有機微粒子、無機微粒子が挙げられる。また、該微粒子（D）は、必要とされる光線透過率、硬度、耐擦傷性、硬化収縮率、屈折率を考慮し、必要に応じて、単独、または複数種を混合して用いることができる。該微粒子（D）を使用することで、本発明の樹脂組成物の硬化収縮率及び該樹脂組成物の硬化物の透湿度を低下させ、液屈

折率を上げることが出来る。

一方、該硬化物の光の透過率（特に、380nm～780nmの波長域での光の透過率）を向上させる観点からは、本発明の樹脂組成物は該微粒子（D）を含有しない方が好ましい。

[0034] 本発明に使用される有機微粒子としては、ポリスチレン樹脂ビーズ、アクリル系樹脂ビーズ、ウレタン樹脂ビーズ、ポリカーボネート樹脂ビーズ等の有機ポリマービーズ、多孔質ポリスチレン樹脂ビーズ、多孔質アクリル系樹脂ビーズ、多孔質ウレタン樹脂ビーズ、多孔質ポリカーボネート樹脂ビーズ等の多孔質有機ポリマービーズ、ベンゾグアナミン－ホルマリン縮合物の樹脂粉末、ベンゾグアナミン－メラミン－ホルマリン縮合物の樹脂粉末、尿素－ホルマリン縮合物の樹脂粉末、アスパラギン酸エステル誘導体の粉末、ステアリン酸亜鉛の粉末、ステアリン酸アミドの粉末、エポキシ樹脂パウダー、ポリエチレンパウダー等が挙げられ、架橋ポリメチルメタクリレート樹脂ビーズや架橋ポリメチルメタクリレート・スチレン樹脂ビーズ等が好ましい。これら有機微粒子は市販品として容易に入手することができ、又、公知文献を参考に調製することもできる。

[0035] 本発明に使用することができる無機微粒子としては導電性金属酸化物、透明性金属酸化物、その他無機フィラー等が挙げられる。

[0036] 本発明に使用される導電性金属酸化物としては、アンチモン酸亜鉛、酸化錫ドーパ酸化インジウム（ITO）、アンチモンドーパ酸化錫（ATO）、五酸化アンチモン、酸化錫、アルミニウムドーパ酸化亜鉛、ガリウムドーパ酸化亜鉛、フッ素ドーパ酸化錫等が挙げられる。

[0037] 本発明に使用される透明性金属酸化物としては、シリカ、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化セリウム、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化チタン／酸化ジルコニウム／酸化錫／五酸化アンチモン複合物、酸化ジルコニウム／酸化錫／五酸化アンチモン複合物、酸化チタン／酸化ジルコニウム／酸化錫複合物等が挙げられる。

[0038] 本発明に使用されるその他無機フィラーとしては、酸化カルシウム、塩化

カルシウム、ゼオライト、シリカゲル等が挙げられる。

[0039] 本発明に使用される微粒子としては硬度と耐擦傷性に優れ、屈折率の高い微粒子が好ましく、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化セリウム、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化チタン／酸化ジルコニウム／酸化錫／五酸化アンチモン複合物、酸化ジルコニウム／酸化錫／五酸化アンチモン複合物、酸化チタン／酸化ジルコニウム／酸化錫複合物等の金属酸化物微粒子が好適に用いられる。また、ディスプレイに用いられる光学シートは高い光線透過率が要求される為、微粒子の一次粒径は100nm以下が好ましい。これらの配合割合としては、成分(A)＋成分(B)の総量100質量部に対して通常0～30質量部であり、使用する場合は通常、1～30質量部であり、好ましくは5～20質量部である。

[0040] さらに、微粒子の分散剤として、ポリカルボン酸系の分散剤やシランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、変性シリコンオイル等のシリコン系分散剤や有機共重合体系の分散剤等を併用することも可能である。これらの配合割合としては、本発明の樹脂組成物の全質量（溶剤を除く樹脂組成物の総量）に対して0～30質量％程度、好ましくは0.05～5質量％程度である。

[0041] なお、一次粒径とは凝集を崩したときの、その粒子が持つ一番小さい粒径を意味する。即ち、楕円形状の微粒子では短径を一次粒径とする。一次粒径は動的光散乱法や電子顕微鏡観察等により測定することができる。具体的には、日本電子株式会社製JSM-7700F電界放出形走査電子顕微鏡を使用し、加速電圧30kV条件下で一次粒径を測定できる。

本発明においては、1次粒径が100nm以下であることが好ましい。そして、5～100nmである微粒子が好適に使用できる。100nm以下であることにより、樹脂組成物の硬化収縮率及び透湿度が小さく、光線透過率も比較的高い硬化物を提供することが可能となる。

[0042] これら微粒子は溶媒に分散し使用することができる。特に無機微粒子は水または有機溶媒に分散された形で市販品を入手することが出来る。無機微粒

子を分散するために使用される有機溶媒としては、炭化水素溶剤、エステル系溶剤、エーテル系溶剤又はケトン系溶剤等が挙げられる。

炭化水素溶剤としては、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、テトラメチルベンゼン等の芳香族系炭化水素溶剤、ヘキサン、オクタン、デカン等の脂肪族系炭化水素溶剤、及びそれらの混合物である石油エーテル、ホワイトガソリン、ソルベントナフサ等が挙げられる。

エステル系溶剤としては、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル等のアルキルアセテート類、 γ -ブチロラクトン等の環状エステル類、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノメチルエーテルモノアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテルモノアセテート、トリエチレングリコールモノエチルエーテルモノアセテート、ジエチレングリコールモノブチルエーテルモノアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルモノアセテート、ブチレングリコールモノメチルエーテルモノアセテート等の（モノ又はポリ）アルキレングリコールモノアルキルエーテルモノアセテート類、グルタル酸ジアルキル、コハク酸ジアルキル、アジピン酸ジアルキル等のポリカルボン酸アルキルエステル類等が挙げられる。

エーテル系溶剤としては、ジエチルエーテル、エチルブチルエーテル等のアルキルエーテル類、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、ジプロピレングリコールジメチルエーテル、ジプロピレングリコールジエチルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジエチルエーテル等のグリコールエーテル類、テトラヒドロフラン等の環状エーテル類等が挙げられる。

ケトン系溶剤としては、アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、イソホロン等が挙げられる。

[0043] また本発明の樹脂組成物には、得られる本発明の樹脂組成物の粘度、屈折率、密着性などを考慮して、成分（A）、成分（B）以外に反応性の化合物を使用しても良い。具体的には、（メタ）アクリレート化合物が挙げられる

。

該（メタ）アクリレート化合物としては、単官能（メタ）アクリレート、2官能（メタ）アクリレート、分子内に3個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート、ウレタン（メタ）アクリレート、ポリエステル（メタ）アクリレート、エポキシ（メタ）アクリレート等を使用することができる。

本発明においては、硬化収縮率を小さく保つ観点から、これらの（メタ）アクリレート化合物を含まないか、又は、含む場合には、硬化収縮率を大きくしない程度、例えば、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、通常15質量部未満、好ましくは10質量部以下、更に好ましくは5質量部以下であり、最も好ましくは2質量部以下である。本発明においては、硬化収縮率を小さく保つ観点から、該（メタ）アクリレート化合物を含まない態様が最も好ましい。

[0044] 単官能（メタ）アクリレートとしては、例えば、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニロキシエチル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート等の脂環式（メタ）アクリレート；テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、モルホリン（メタ）アクリレート等のヘテロ環を有する（メタ）アクリレート；ベンジル（メタ）アクリレート、エトキシ変性クレゾール（メタ）アクリレート、プロポキシ変性クレゾール（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールベンゾエート（メタ）アクリレート、*o*-フェニルフェノール（メタ）アクリレート、*o*-フェニルフェノールモノエトキシ（メタ）アクリレート、*o*-フェニルフェノールポリエトキシ（メタ）アクリレート、*p*-フェニルフェノール（メタ）アクリレート、*p*-フェニルフェノールモノエトキシ（メタ）アクリレート、*p*-フェニルフェノールポリエトキシ（メタ）アクリレート、*o*-フェニルベンジルアクリレート、*p*-フェニルベンジルアクリレート等の芳香環を有

する（メタ）アクリレート；カルバゾール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、カルバゾール（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性カルバゾール（メタ）アクリレート等の複素環を有する（メタ）アクリレート；ナフチル（メタ）アクリレート、ナフチル（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、ナフチル（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性ナフチル（メタ）アクリレート、ビナフトール（メタ）アクリレート、ビナフトール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、ビナフトール（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性ビナフトール（メタ）アクリレート、ナフトール（メタ）アクリレート、ナフトール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、ナフトール（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性ナフトール（メタ）アクリレート等の縮合環を有する（メタ）アクリレート；イミド環構造を有するイミド（メタ）アクリレート；ブタンジオールモノ（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、ジプロピレングリコール（メタ）アクリレート等の水酸基を有する（メタ）アクリレート；ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ブトキシエチル（メタ）アクリレート、カプロラクトン（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、 α -ブチル（メタ）アクリレート、オクタフルオロペンチル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、イソステアリル（メタ）アクリレート、イソミリスチル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート等のアルキル基を有する（メタ）アクリレート；エトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシルカルビトール（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコール（メ

タ) アクリレート等の多価アルコールの(メタ)アクリレート;等を挙げることができる。

[0045] 2つの官能基を有する(メタ)アクリレートモノマーとしては、ヒドロピバルアルデヒド変性トリメチロールプロパンジ(メタ)アクリレート等のヘテロ環を有する(メタ)アクリレート;(ポリ)エトキシ変性ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、(ポリ)プロポキシ変性ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、(ポリ)エトキシ変性ビスフェノールFジ(メタ)アクリレート、(ポリ)プロポキシ変性ビスフェノールFジ(メタ)アクリレート、(ポリ)エトキシ変性ビスフェノールSジ(メタ)アクリレート、(ポリ)プロポキシ変性ビスフェノールSジ(メタ)アクリレート、ヘキサヒドロフタル酸ジ(メタ)アクリレート、ビスフェノキシ(ポリ)エトキシフルオレン、ビフェニルジメタノールジ(メタ)アクリレート等の芳香環を有する(メタ)アクリレート;ビナフトールジ(メタ)アクリレート、ビナフトール(ポリ)エトキシジ(メタ)アクリレート、ビナフトール(ポリ)プロポキシジ(メタ)アクリレート、(ポリ)カプロラクトン変性ビナフトールジ(メタ)アクリレート等の縮合環を有する(メタ)アクリレート;ビスフェノールフルオレンジ(メタ)アクリレート、ビスフェノキシメタノールフルオレンジ(メタ)アクリレート、ビスフェノキシエタノールフルオレンジ(メタ)アクリレート、ビスフェノキシカプロラクトンフルオレンジ(メタ)アクリレート等の多環芳香族を有する(メタ)アクリレート;ジアクリル化イソシアヌレート等のイソシアネートのアクリル化物;1,4-ブタンジオールジ(メタ)アクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ(メタ)アクリレート、1,9-ノナンジオールジ(メタ)アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジ(メタ)アクリレート等の直鎖メチレン構造を有する(メタ)アクリレート;トリシクロデカンジメタノール(メタ)アクリレート等の脂環式(メタ)アクリレート、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、プロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレンジ(メタ)アクリレート

等の多価アルコールのジ（メタ）アクリレート；等を挙げることができる。

[0046] 多官能（メタ）アクリレートモノマーとしては、トリス（アクリロキシエチル）イソシアヌレート、（ポリ）カプロラクトン変性トリス（アクリロキシエチル）イソシアヌレート等のイソシアヌレート環を有する多官能（メタ）アクリレート；ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、（ポリ）エトキシ変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロポキシ変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、（ポリ）エトキシ変性ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロポキシ変性ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、（ポリ）カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、（ポリ）エトキシ変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロポキシ変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ポリペンタエリスリトールポリ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、（ポリ）エトキシ変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロポキシ変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、グリセロールトリ（メタ）アクリレート等の多価アルコールの多官能（メタ）アクリレート；リン酸トリ（メタ）アクリレート等の含リンの多官能（メタ）アクリレート；トリメチロールプロパンベンゾエート（メタ）アクリレート等の芳香族を有する多官能（メタ）アクリレート；2，2，2-トリシアクリロイロキシメチルコハク酸等の酸変性された多官能（メタ）アクリレート；シリコーンヘキサ（メタ）アクリレート等のシリコーン骨格を有する多官能（メタ）アクリレート；等を挙げることができる。

[0047] ウレタン（メタ）アクリレートとしては、例えば、ジオール化合物（下記

ポリエステルジオールを含む)と、有機ポリイソシアネートを反応させ、次いで水酸基含有(メタ)アクリレートを付加した反応物等が挙げられる。

ジオール化合物としては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサジオール、1,8-オクタンジオール、1,9-ノナンジオール、2-メチル-1,8-オクタンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、2,4-ジエチル-1,5-ペンタンジオール、2-ブチル-2-エチル-1,3-プロパンジオール、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ビスフェノールAポリエトキシジオール、ビスフェノールAポリプロポキシジオール等、又はこれらジオール化合物と二塩基酸若しくはその無水物(例えば、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、ダイマー酸、イソフタル酸、テレフタル酸、フタル酸若しくはこれらの無水物)との反応物であるポリエステルジオール等を挙げることが出来る。

上記有機ポリイソシアネートとしては、例えば、テトラメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、2,2,4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、2,4,4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等の鎖状飽和炭化水素イソシアネート、イソホロンジイソシアネート、ノルボルナンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、メチレンビス(4-シクロヘキシルイソシアネート)、水添ジフェニルメタンジイソシアネート、水添キシレンジイソシアネート、水添トルエンジイソシアネート等の環状飽和炭化水素イソシアネート、2,4-トリレンジイソシアネート、1,3-キシリレンジイソシアネート、p-フェニレンジイソシアネート、3,3'-ジメチル-4,4'-ジイソシアネート、6-イソプロピル-1,3-フェニルジイソシアネート、1,5-ナフタレンジイソシアネート等の芳香族ポリイソシアネート等を挙げること出来る。

[0048] エポキシ（メタ）アクリレートとしては、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、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニル型フェノールアラルキル樹脂、ビスフェノールAのプロピレンオキサイド付加物の末端グリシジルエーテル、フルオレンエポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂類と（メタ）アクリル酸との反応物等を挙げることができる。

[0049] ポリエステル（メタ）アクリレートとしては、ジオール化合物と二塩基酸又はその無水物との反応物であるポリエステルジオールと、（メタ）アクリル酸の反応物等が挙げられる。

[0050] 中でも本発明の樹脂組成物に使用することのできる（メタ）アクリレートとしては、硬化収縮率が低い材料が好適に用いられる。具体的には、環構造を有する（メタ）アクリレートが好ましく、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニロキシエチル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、p-クミルフェノール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、ナフトール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、ナフトール（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、フェニルフェノール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、フェニルフェノール（ポリ）プロポキシ（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、トリシクロデカンジメタノール（メタ）アクリレート、ヒドロピバルアルデヒド変性トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、ビフェニルジメタノールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。特に好ましくは、硬化物のT_gが高く、硬化収縮率の低いフェニルフェノール（ポリ）エトキシ（メタ）アクリレート、トリシクロデカンジメタノール（メタ）アクリレート、ヒドロピバルアルデヒド変性トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、ビフェニルジメタノールジ（メタ）アクリレートである。

なお、本発明の樹脂組成物においては、その他の成分である（メタ）アクリレートは、必要に応じて添加され、単独で用いてもよいし、複数種を混合

して用いてもよい。

本発明では成分（A）＋成分（B）を100質量部とした場合に、（メタ）アクリレート化合物の配合割合は、通常、0～200質量部であり、場合により、10～200質量部であり、好ましくは50～100質量部であっても良いが、出来れば、本発明の樹脂組成物に含まれないか、又は、最小限の使用が好ましい。

[0051] また、（メタ）アクリレート化合物を使用する場合には前記光カチオン重合開始剤以外の光重合開始剤を用いることが好ましい。具体的には、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等のベンゾイン類；アセトフェノン、2，2－ジエトキシ－2－フェニルアセトフェノン、2，2－ジエトキシ－2－フェニルアセトフェノン、1，1－ジクロロアセトフェノン、2－ヒドロキシ－2－メチル－フェニルプロパン－1－オン、ジエトキシアセトフェノン、1－ヒドロキシシクロヘキシル－フェニルケトン、2－メチル－1－〔4－（メチルチオ）フェニル〕－2－モルホリノプロパン－1－オン、オリゴ〔2－ヒドロキシ－2－メチル－1－〔4－（1－メチルビニル）フェニル〕プロパノン〕等のアセトフェノン類；2－エチルアントラキノン、2－tert－ブチルアントラキノン、2－クロロアントラキノン、2－アミルアントラキノン等のアントラキノン類；2，4－ジエチルチオキサントン、2－イソプロピルチオキサントン、2－クロロチオキサントン等のチオキサントン類；アセトフェノンジメチルケタール、ベンジルジメチルケタール等のケタール類；ベンゾフェノン、4－ベンゾイル－4’－メチルジフェニルサルファイド、4，4’－ビスメチルアミノベンゾフェノン等のベンゾフェノン類；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、ジフェニル－（2，4，6－トリメチルベンゾイル）フォスフィンオキシド等のホスフィンオキサイド類等を挙げることができる。好ましくは、アセトフェノン類であり、さらに好ましくは2－ヒドロキシ－

2-メチルフェニルプロパン-1-オン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトンを挙げることができる。なお、本発明の樹脂組成物においては、光重合開始剤は単独で用いてもよいし、複数種を混合して用いてもよい。

光重合開始剤の含有割合は通常、樹脂組成物100質量部に対して0～10質量部である。使用する場合は、通常0.001～10質量部であり、0.01～8質量部が好ましい。

[0052] 本発明の樹脂組成物の各成分の使用割合は、所望の屈折率や耐久性や粘度や密着性等を考慮して決められるが、成分(A)+成分(B)を100質量部とした場合に、成分(A)の含有量は、通常30～100質量部であり、好ましくは30～80質量部であり、より好ましくは40～70質量部、又は、50～75質量部である。成分(B)の含有量は通常0～70質量部、好ましくは20～70質量部であり、より好ましくは25～50質量部、又は、30～60質量部である。本発明の樹脂組成物においては通常成分(C)を含むのが好ましく、成分(C)の含有量は0.1～10質量部であり、好ましくは0.5～3質量部である。成分(D)は任意成分であり、含まなくても良いが、必要に応じて含んでも良く、含む場合、成分(A)+成分(B)の総量100質量部に対して、1～30質量部であり、好ましくは5～20質量部である。

本発明の好ましい態様の一つとして、(i)上記化合物(A)及び(ii)エポキシ化合物(B)及び光カチオン重合開始剤(C)の何れか一方若しくは両者を含む態様を挙げることが出来る。その場合、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、(i)の上記化合物(A)の含有量は、その合計量で、通常30～99.9質量部、好ましくは、40～99.5質量部、より好ましくは、50～99.5質量部であり、また、場合により、40～90質量部が好ましく、50～80質量部がより好ましい。また、上記(ii)の、成分(B)及び／又は成分(C)の含有量は、その合計量で、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、通常0.1～70質量

部、好ましくは、0.5～60質量部であり、場合により、10～60質量部が好ましく、20～50質量部がより好ましい。

[0053] 本発明の樹脂組成物には、前記成分以外に取り扱い時の利便性等を改善するために、必要に応じて、離型剤、消泡剤、レベリング剤、光安定剤、酸化防止剤、重合禁止剤、可塑剤、帯電防止剤等の添加剤を状況に応じて併用して含有することができる。

各種添加剤の含有量は、樹脂組成物100質量部に対して、通常0～10質量部である。使用する場合は、通常0.001～10質量部であり、0.01～8質量部が好ましい。

[0054] また、耐久性や可撓性を得るために可塑剤が使用される例も多い。使用される可塑剤としては、所望の粘度、耐久性、透明性や可撓性等により選択される。具体的には、ポリエチレン、ポリプロピレン等のオレフィン系ポリマー、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ビス(2-エチルヘキシル)フタレート、ジイソデシルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ジイソノニルフタレート、ジシクロヘキシルフタレート、エチルフタリルエチルグリコレート、ブチルフタリルブチルグリコレート等のフタル酸エステル、トリス(2-エチルヘキシル)トリメリテート等のトリメリット酸エステル、ジブチルアジペート、ジイソブチルアジペート、ビス(2-エチルヘキシル)アジペート、ジイソノニルアジペート、ジイソデシルアジペート、ビス(2-(2-ブトキシエトキシ)エチル)アジペート、ビス(2-エチルヘキシル)アゼレート、ジブチルセバケート、ビス(2-エチルヘキシル)セバケート、ジエチルサクシネート等の脂肪族二塩基酸エステル、トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリス(2-エチルヘキシル)ホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、2-エチルヘキシルジフェニルホスフェート等の正リン酸エステル、メチルアセチルリシノレート等のリシノール酸エステル、ポリ(1,3-ブタンジオールアジペート)等のポリエステル、

グリセリルトリアセテート等の酢酸エステル、N-ブチルベンゼンスルホンアミド等のスルホンアミド、ポリエチレングリコールベンゾエート、ポリエチレングリコールジベンゾエート、ポリプロピレングリコールベンゾエート、ポリプロピレングリコールジベンゾエート、ポリテトラメチレングリコールベンゾエート、ポリテトラメチレングリコールベンゾエート等のポリアルキレンオキサイド（ジ）ベンゾエート、ポリプロピレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール等のポリエーテル、ポリエトキシ変性ビスフェノールA、ポリプロポキシ変性ビスフェノールA等のポリアルコキシ変性ビスフェノールA、ポリエトキシ変性ビスフェノールF、ポリプロポキシ変性ビスフェノールF等のポリアルコキシ変性ビスフェノールF、ナフタレン、フェナントレン、アントラセン等の多環芳香族、（ビ）ナフトール、（ポリ）エトキシ変性（ビ）ナフトール、（ポリ）プロポキシ変性（ビ）ナフトール、（ポリ）テトラメチレングリコール変性（ビ）ナフトール、（ポリ）カプロラクトン変性（ビ）ナフトール等のナフトール誘導体、ジフェニルスルフィド、ジフェニルポリスルフィド、ベンゾチアゾリルジスルフィド、ジフェニルチオ尿素、モルホリノジチオベンゾチアゾール、シクロヘキシルベンゾチアゾール-2-スルフェンアミン、テトラメチルチウラムジスルフィド、テトラエチルチウラムジスルフィド、テトラブチルチウラムジスルフィド、テトラキス（2-エチルヘキシル）チウラムジスルフィド、テトラメチルチウラムモノスルフィド、ジペンタメチレンチウラムテトラスルフィド等の含硫黄化合物が上げられる。好ましくは、（ポリ）エチレングリコールジベンゾエート、（ポリ）プロピレングリコールジベンゾエート、ビナフトール、（ポリ）エトキシ変性ビナフトール、（ポリ）プロポキシ変性ビナフトール、ジフェニルスルフィドである。

[0055] 更に、必要に応じて、アクリルポリマー、ポリエステルエラストマー、ウレタンポリマー及びニトリルゴム等のポリマー類といった柔軟化剤も添加することができる。

可塑剤ないし柔軟化剤の含有量は、樹脂組成物100質量部に対して、通

常0～90質量部であり、使用する場合は、1～90質量部であり、2～80質量部が好ましい。

[0056] 本発明における反応性基を有しない有機化合物成分としては、オキセタニル基、エポキシ基、ラジカル反応性の不飽和結合含有基等の、イオン反応性又はラジカル反応性の基を含まない有機化合物が含まれ、前記の微粒子（D）における有機微粒子、前記の成分（A）～成分（D）以外の添加剤などが含まれる。これらは、相溶性の点から重量平均分子量が10,000g/mol以下であることが好ましく、5,000g/mol以下が特に好ましい。本発明においては、重量平均分子量が10,000g/mol以上の反応性基を有しない有機化合物は、本発明の樹脂組成物中に含まないか、又は、含む場合、その含有量は、有機溶剤を除く樹脂組成物の総量に対して1.5重量%以下であることが好ましく、1.0重量%以下であることがより好ましく、0.5重量%以下であることが特に好ましい。1.5重量%以下とすることで、反応性基を有しない成分が相溶せずに、固形状またはゲル状等の不溶成分として残存していることを防ぐことが可能となるため、硬化物性として透明性、耐熱性に劣るものとなることを防ぐことができることから好ましい。また、水蒸気透過度を低下させるためにアルキルアルミニウム等の有機金属化合物を加えることもできる。溶剤を加えることもできるが、溶剤を添加しないものが好ましい。

[0057] 本発明の樹脂組成物では用いられる有機化合物の各成分の重量平均分子量が10,000g/mol以下が好ましく、さらに好ましくは5,000g/mol以下である。重量平均分子量の大きい成分は溶解し難い為、調製された樹脂組成物は濁った液体となる。これは、ディスプレイに使用される樹脂組成物は均一に透明であることが不可欠である為、好適ではない。また、透過率に関しても優れた特性が求められ、具体的には波長380～780nmにおける各波長の光線透過率が80%以上であることが好ましい。光線透過率は、株式会社日立ハイテクノロジーズ製の分光光度計U-3900H等の測定機器により測定ができる。

[0058] 本発明の有機EL素子封止材用樹脂組成物の好ましい態様のいくつかを下記に挙げる。なお、下記において、樹脂組成物の総量といった場合、該樹脂組成物が溶媒を含む場合はそれを除いた総量を意味する。

I. 前記、分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)を少なくとも2種類含有する有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物において、分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物(A)の少なくとも2種類の組合せが前記一般式(2)で表される化合物と前記一般式(3)の化合物の組合せであり、一般式(3)の化合物1質量部に対して、一般式(2)で表される化合物を、0.6～1.5質量部の割合で含む態様。

II. 一般式(2)で表される化合物の含量割合が、0.8～1.2である上記Iに記載の態様。

III. 更に、光カチオン重合開始剤(C)を、上記化合物(A)の合計含量100質量部に対して、0.1～10質量部の割合で含む上記I又はIIに記載の態様。

IV. 更に、エポキシ化合物(B)を含有し、上記化合物(A)とエポキシ化合物(B)の総量100質量部に対して、10～70質量部の割合で含む上記I～IIIの何れか一項に記載の態様。

V. 樹脂組成物の総量100質量部に対して、上記化合物(A)の含量が50質量部以上である上記I～IVの何れか一項に記載の態様。

VI. (メタ)アクリレート化合物を含まないか、又は含んでも、樹脂組成物の総量100質量部に対して、15質量部未満である上記I～Vの何れか一項に記載の態様。

VII. 硬化収縮率が5.5%以下である上記I～VIの何れか一項に記載の態様。

VIII. 硬化収縮率が5%以下である上記I～VIの何れか一項に記載の態様。

IX. 有機EL素子封止材用が、封止用透明基板接着用である上記I～VIIIの何れか一項に記載の態様。

[0059] 本発明の樹脂組成物は、各成分を常法に従い混合溶解することにより調製することができる。例えば、攪拌装置、温度計のついた丸底フラスコに各成分を仕込み、20～80℃、好ましくは40～80℃にて0.5～6時間攪拌することにより得ることができる。

[0060] 本発明の樹脂組成物の粘度は、固体有機EL用封止材（例えばガラス等）を接着するための塗膜を形成することが出来れば良く、25℃で、10 mPa・s以上であればよく、好ましくは10～3000 mPa・s程度である。また、微粒子（D）を含まない本発明の樹脂組成物の粘度は、10～150 mPa・s程度であり、20～120 mPa・s程度が好ましい。微粒子（D）を含む本発明の樹脂組成物の粘度は、300～3000 mPa・s程度が好ましく、より好ましくは500～2500 Pa・s程度である。

また、基材上に成型する光学レンズを製造する際の形状の転写性や加工性の作業性に適した粘度としては、25℃で10 mPa・s以上が好ましい。

[0061] 本発明の樹脂組成物はエネルギー線によって容易に硬化させることができる。ここでエネルギー線の具体例としては、紫外線、可視光線、赤外線、X線、ガンマー線、レーザー光線等の電磁波、アルファ線、ベータ線、電子線等の粒子線等が挙げられる。本発明においては、これらのうち、紫外線、レーザー光線、可視光線、または電子線が好ましい。

[0062] 常法に従い、本発明の樹脂組成物に前記エネルギー線を照射することにより、本発明の硬化物を得ることができる。本発明の樹脂組成物の硬化物層の屈折率を高いものとするために、本発明の樹脂組成物の液屈折率も高い方が好ましく、該液屈折率は通常1.45～1.55であり、好ましくは1.48～1.52である。該液屈折率はアッペ屈折率計（型番：DR-M2、株式会社アタゴ製）等で測定することができる。

本発明の樹脂組成物を硬化させた時の硬化収縮率は、5.5%以下が好ましく、好ましくは5%以下であり、4.7%以下がより好ましく、4.5%以下が最も好ましい。下限は小さければ小さいほど好ましいが、本発明においては通常4%程度である。

本発明の樹脂組成物を、厚み $100\mu\text{m}$ の硬化物フィルムとしたとき、 60°C での水蒸気透過率が $200\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}$ 以下であることが好ましく、 $100\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}$ 以下であることがより好ましく、 $60\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}$ 以下であることが特に好ましい。当該範囲にあることで、水分の透過により、素子にダメージを与えることを有効に防ぐことが可能となる。

[0063] 本発明の樹脂組成物を用いる有機EL素子の固体封止は、通常、基板上に形成された有機EL素子上にパッシベーション膜を形成する工程、上記パッシベーション膜の上に、本発明の樹脂組成物（封止用接着剤）を塗布する工程、該塗布層上に、封止用透明基板を設ける工程、および上記塗布層を硬化させる工程を経ることにより行うことが出来る。通常、封止用透明基板としては、ガラスなどの透湿しない透明基板が用いられる。

[0064] 封止される有機EL素子は、該素子として機能する素子部本体を支持する基板（支持基板）と、下部電極と、少なくとも発光層を含む有機EL層と、上部電極とを含む素子部本体とから構成される。該基板には、ガラス基板、シクロオレフィンやポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート等から成る透明有機材料、該透明有機材料をグラスファイバー等で高剛性化した有機／無機ハイブリッド透明基板等の電気絶縁性物質からなる平坦な基板を用いる。また、素子部本体の代表的な構成としては以下のものが挙げられる。

- (1) 下部電極／発光層／上部電極
- (2) 下部電極／電子輸送層／発光層／上部電極
- (3) 下部電極／発光層／正孔輸送層／上部電極
- (4) 下部電極／電子輸送層／発光層／正孔輸送層／上部電極

例えば、上記(4)の層構造を有する有機EL素子は、基板の片面上に、Al-Li合金等からなる下部電極（陰極）を抵抗加熱蒸着法またはスパッタ法によって形成し、次いで有機EL層として、オキサジアゾール誘導体やトリアゾール誘導体等からなる電子輸送層、発光層、TPD（トリフェニルジアミン）等からなる正孔輸送層及び上部電極（陽極）を抵抗加熱蒸着法又はイオンビームスパッタ法等の薄膜形成方法によって順次積層することによ

って作製することが可能である。なお、有機EL素子の層構造、又は材料は表示素子として機能するものであれば特に限定されるものではない。また、本発明による固体封止方法はいかなる構造の有機EL素子であっても適用可能である。

[0065] パッシベーション膜は、有機EL素子を覆うように形成される。パッシベーション膜は、窒化ケイ素、酸化ケイ素などの無機材料を蒸着やスパッタなどの方法によって形成することが可能である。パッシベーション膜は、有機EL素子へ水分やイオン性不純物等が浸入するのを防止するために設けられる。パッシベーション膜の厚さは、10nm～100μmの範囲が好ましく、100nm～10μmの範囲とすることがより好ましい。

[0066] パッシベーション膜は、成膜法にもよるが、一般にピンホールが存在する不完全な膜であるか、機械的強度が弱い膜であることが多い。そのため、固体封止方法では、パッシベーション膜の上にさらに接着剤を塗布し、封止用透明基板を用いて圧着し、接着剤を硬化することによって封止の信頼性を高めている。

上記のようにして得られた封止された有機EL素子を、表示装置に組み込む（搭載する）ことにより、本発明の樹脂組成物の硬化物を有する有機ELディスプレイを得ることが出来る。

実施例

[0067] 次に、実施例により本発明を更に詳細に説明する。本発明は以下の実施例によって何ら限定されるものではない。なお、数値の単位「部」は質量部を示す。

[0068] 以下の実施例（表1）に示す組成にて本発明の樹脂組成物及び硬化物を得た。又、樹脂組成物及び硬化膜についての評価方法及び評価基準は以下の通り行った。なお、有機溶媒を含有する実施例については、エバポレーターで十分に有機溶媒を揮発させた後に評価を行った。

[0069] （1）粘度：E型粘度計（TV-200：東機産業株式会社製）を用いて25℃で測定した。

[0070] (2) 液屈折率：配合した樹脂組成物の屈折率（25℃）をアッペ屈折率計（DR-M2：株式会社アタゴ製）で測定した。

[0071] (3) 透湿度：紫外線硬化型樹脂をガラス基板で挟み、100μmのスペーサーを使用し膜厚を調整し、高圧水銀灯（80W/cm、オゾンレス）で3000mJ/cm²で硬化させ試験片を作製した。得られた試験片をLyssty水蒸気透過度計L80-5000（Systech Illinois社製）、60℃×90%RHにて透湿度を測定した。

[0072] (4) T_g（ガラス転移点）：硬化した紫外線硬化性樹脂層のT_g点を粘弾性測定システムEXSTAR DMS-6000（エスアイアイ・ナノテクノロジー株式会社製）、引張モード、周波数1Hz、スキャンレイト（scan rate）；室温より2℃/minにて測定した。

[0073] (5) 硬化収縮率：基材上に紫外線硬化型樹脂層を塗布し、高圧水銀灯（80W/cm、オゾンレス）で3000mJ/cm²の照射を行い硬化させ膜比重測定用の硬化物を作成した。

これを、JIS K7112 B法に準拠し、硬化物の比重（DS）を測定した。また、23±2℃で樹脂組成物の比重（DL）を測定し、次式により硬化収縮率を算出した。測定結果は4回の測定結果の平均値で示す。

$$\text{硬化収縮率 (\%)} = (DS - DL) / DS \times 100$$

[0074] (6) 脆性：易接着PET（A4300 100μm厚み：東洋紡績株式会社製）上にメイヤーバーコーターにて20μm厚みで塗布し、高圧水銀灯（80W/cm、オゾンレス）で3000mJ/cm²の照射を行い硬化させ試験片を得た。その後、試験片を180°折り曲げることで評価を行った。

○・・・クラックの発生無し

×・・・クラックの発生有り

[0075] (7) 光線透過率：紫外線硬化型樹脂をガラス基板で挟み、60μmのスペーサーを使用し膜厚を調整し、高圧水銀灯（80W/cm、オゾンレス）で3000mJ/cm²で硬化させ試験片を作製した。得られた試験片を株式会社日立ハイテクノロジーズ製分光光度計U-3900H（光源C）により、

波長 380～780 nm における各波長の光線透過率を測定し、400 nm での数値を透過率とした。

[0076] 表 1

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
成分 A	OXT-121	50	35	35				100
	OXT-221	50	35	35	50	50	100	
成分 B	SEJ-01R		30	30				
成分 C	GSID 26-1	1	1	1	1	3	1	1
成分 D	SZR-K			50				
その他	OXT-101				50	50		
粘度 mPa·s		45	67	2000	18	18	13	180
液屈折率		1.483	1.487	1.504	1.456	1.456	1.456	1.511
透湿度 g/m ² ・24h		59	59	50	—	81	58	59
T _g (DMS 室温から 2℃)		114	148	145	—	64	88	88
硬化収縮率 %		4.6	5.0	4.4	—	7.0	5.7	3.7
脆性		○	○	○	—	○	○	○
光線透過率 %		87.1	82.3	81.2	—	85.5	87.1	83.9

上表において、比較例 1 は高圧水銀灯（80W/cm、オゾンレス）で 3000 mJ/cm² の照射でも硬化しなかった為、液状で測定可能な項目のみを記載した

[0077] OXT-121：東亜合成株式会社製キシリレンビスオキセタン

OXT-221：東亜合成株式会社製 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

SEJ-01R：日本化薬株式会社製 3,4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3',4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレート

GSID 26-1：BASF ジャパン株式会社製（トリス[4-(4-アセチルフェニルスルファニル)フェニル]スルホニウムトリス[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタニド

SZR-K：堺化学工業株式会社製 MEK 分散酸化ジルコニウム（固形分濃

度 30% 一次粒径 4 nm)

O X T - 1 0 1 : 東亜合成株式会社製 3-エチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン

[0078] 実施例 1～3 及び比較例 1～4 の評価結果から明らかなように、特定の組成を有する本発明の樹脂組成物は硬化収縮率が小さく、その硬化物は T_g が高く、水蒸気透過度が低い。そのため例えば各種封止材、特に、有機 EL 素子の封止材として適し、有機 EL 素子の固体封止における封止用透明基板の接着用の接着剤として用いることができる。

産業上の利用可能性

[0079] 本発明の樹脂組成物は硬化収縮率が小さく、その硬化物は、可視光透過率、耐光性に優れ、T_g が高く、水蒸気透過度が低いことから、各種封止材、特に有機 EL 素子の封止材として適し、有機 EL 素子の固体封止における封止用透明基板の接着用の接着剤として用いることができる。

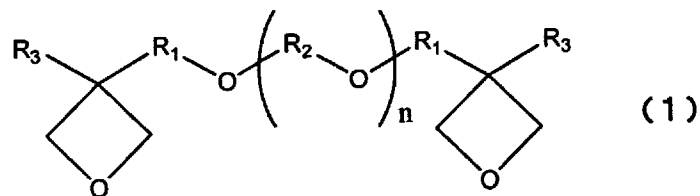
請求の範囲

[請求項1] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）を2種類以上含有する有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項2] エネルギー線硬化型樹脂組成物が、重量平均分子量10,000g/mol以上である反応性基を有さない有機化合物成分を含まないか、又は、含む場合はその含有量が該樹脂組成物の総量に対して1.5重量%未満であることを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

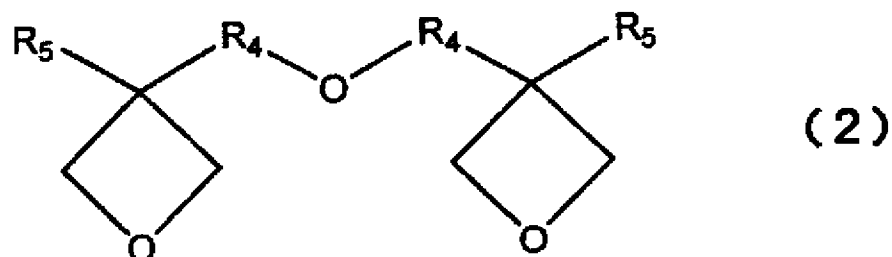
[請求項3] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）が少なくとも下記一般式（1）または下記一般式（2）で表されるオキセタン環を有する化合物、

式（1）



（式中、 R_1 はそれぞれ独立して直接結合または炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状の炭化水素基を示し、 R_2 は炭素数1～15の直鎖若しくは分岐鎖状の炭化水素基、または、脂環、芳香環、複素環若しくは縮合環を含む炭化水素基を示し、 R_3 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を示し、 n は平均値で1～5の整数を表す）、

式（2）



（式中、 R_4 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状

の炭化水素基、及び R_5 はそれぞれ独立して炭素数1～6の直鎖または分岐鎖状炭化水素基を表す）、

である請求項1または請求項2に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項4] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）が少なくとも分子中に脂環または芳香環を有する化合物である請求項1乃至請求項3の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項5] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）として、上記式（1）の化合物及び上記式（2）の化合物を含有する請求項1乃至請求項4のいずれか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項6] 式（1）の化合物1質量部に対して、式（2）の化合物の含有割合が0.6～1.5質量部の範囲である上記請求項5に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項7] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）を2種類以上含有し、該樹脂組成物中に含まれる全有機化合物成分が重量平均分子量10,000g/mol以下で、且つ、20℃～80℃で相互に可溶な成分から構成された請求項1乃至請求項5のいずれか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項8] （メタ）アクリレート化合物を含まないか、又は含んでも、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、15質量部未満である請求項1乃至請求項6の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項9] 更に、エポキシ化合物（B）及び光カチオン重合開始剤（C）の何れか一方若しくは両者を含み、その含量が、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量部に対して、0.1～70質量部であり、上記化合物（A）を、その合計含量で、溶剤を除く樹脂組成物の総量100質量

部に対して、30～99.9質量部含む請求項1乃至請求項8の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項10] 更に、エポキシ化合物（B）を含有する請求項1乃至請求項8の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項11] エポキシ化合物（B）が脂環式エポキシ化合物である請求項9又は請求項10に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項12] エポキシ化合物（B）が分子中に2個以上のエポキシ基を有する化合物である請求項9乃至請求項11の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項13] エポキシ化合物（B）を、上記化合物（A）とエポキシ化合物（B）の総量100質量部に対して、20～70質量部含有する請求項10乃至請求項12の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項14] 分子中に2つ以上のオキセタン環を有する化合物（A）を、該化合物（A）およびエポキシ化合物（B）の総量100質量部に対して、30～90質量部含有する請求項10乃至請求項13の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項15] 更に、光カチオン重合開始剤（C）を含有する請求項1乃至請求項14の何れか一項に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項16] 光カチオン重合開始剤（C）がスルホニウム塩、ヨードニウム塩、ホスホニウム塩、アンモニウム塩及びアンチモン酸塩からなる群から選択される少なくとも一つである請求項15に記載の有機EL素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項17] 更に、微粒子（D）を含有する請求項1乃至請求項16の何れか一

項に記載の有機 E L 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項18] 微粒子 (D) の一次粒径が 100 nm 以下である請求項 17 に記載の有機 E L 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項19] E 型粘度計で測定した 25℃での粘度が 10 mPa・s 以上である請求項 1 乃至請求項 18 の何れか一項に記載の有機 E L 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項20] 該樹脂組成物を硬化したときの硬化収縮率が、5.5%以下である請求項 1 乃至請求項 15 の何れか一項に記載の有機 E L 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物。

[請求項21] 請求項 1 乃至請求項 20 の何れか一項に記載の有機 E L 素子封止材用エネルギー線硬化型樹脂組成物を硬化せしめて得られる硬化物。

[請求項22] 厚み 100 μm での水蒸気透過率が 200 g/m²・day/60℃以下である請求項 21 に記載の硬化物。

[請求項23] 請求項 21 または請求項 22 に記載の硬化物を有する有機 E L ディスプレイ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/004331

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G65/18(2006.01)i, C08G59/18(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C08L71/00(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/04(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)

C08G65/18, C08G59/18, C08K3/00, C08K5/00, C08L71/00, 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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2005-005051 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 06 January 2005 (06.01.2005), paragraphs [0022] to [0035], [0051] (Family: none)	1-4, 7-23 5-6
Y	JP 2010-209126 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 24 September 2010 (24.09.2010), paragraphs [0135], [0152], [0154] & CN 101845286 A & KR 10-2010-0100695 A & TW 201038697 A	5-6
Y	JP 2010-275545 A (Toagosei Co., Ltd.), 09 December 2010 (09.12.2010), paragraphs [0138], [0145] to [0146] (Family: none)	5-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search
20 September, 2013 (20.09.13)

Date of mailing of the international search report
01 October, 2013 (01.10.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/004331

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-320434 A (Nitto Denko Corp.), 17 November 2005 (17.11.2005), paragraph [0031] (Family: none)	1-23
A	JP 2008-101136 A (NOF Corp.), 01 May 2008 (01.05.2008), entire text; all drawings (Family: none)	1-23
A	JP 2005-235467 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 02 September 2005 (02.09.2005), entire text; all drawings (Family: none)	1-23
A	WO 2011/040211 A1 (JSR Corp.), 07 April 2011 (07.04.2011), entire text; all drawings & TW 201119488 A	1-23
A	WO 2011/104997 A1 (JSR Corp.), 01 September 2011 (01.09.2011), entire text; all drawings & TW 201141935 A	1-23

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08G65/18(2006.01)i, C08G59/18(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C08L71/00(2006.01)i, G09F9/30(2006.01)i, H01L27/32(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/04(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（I P C））

Int.Cl. C08G65/18, C08G59/18, C08K3/00, C08K5/00, C08L71/00, G09F9/30, H01L27/32, H01L51/50, H05B33/04

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X — Y	JP 2005-005051 A（積水化学工業株式会社）2005.01.06, 段落【0 0 2 2】—【0 0 3 5】, 【0 0 5 1】（ファミリーなし）	1-4, 7-23 — 5-6
Y	JP 2010-209126 A（住友化学株式会社）2010.09.24, 段落【0 1 3 5】, 【0 1 5 2】, 【0 1 5 4】 & CN 101845286 A & KR 10-2010-0100695 A & TW 201038697 A	5-6

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 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

2 0 . 0 9 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 1 . 1 0 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

大竹 秀紀

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

2 0

4 0 7 4

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2010-275545 A (東亜合成株式会社) 2010.12.09, 段落【0138】, 【0145】－【0146】 (ファミリーなし)	5-6
A	JP 2005-320434 A (日東電工株式会社) 2005.11.17, 段落【0031】 (ファミリーなし)	1-23
A	JP 2008-101136 A (日油株式会社) 2008.05.01, 全文全図 (ファミリーなし)	1-23
A	JP 2005-235467 A (富士写真フイルム株式会社) 2005.09.02, 全文全図 (ファミリーなし)	1-23
A	WO 2011/040211 A1 (J S R株式会社) 2011.04.07, 全文全図 & TW 201119488 A	1-23
A	WO 2011/104997 A1 (J S R株式会社) 2011.09.01, 全文全図 & TW 201141935 A	1-23