(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
2018年4月12日(12.04.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/066548 A1

(51) 国際特許分類:
C09K 3/10 (2006.01)　*C08L 63/00* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01)　*H01L 51/50* (2006.01)
C08K 5/00 (2006.01)　*H05B 33/04* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2017/035942

(22) 国際出願日：　2017年10月3日(03.10.2017)

(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 2016-196395　2016年10月4日(04.10.2016)　JP

(71) 出願人: 味の素株式会社 (**AJINOMOTO CO., INC.**) [JP/JP]; 〒1048315 東京都中央区京橋一丁目１５番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 久保 有希 (**KUBO, Yuki**); 〒2100801 神奈川県川崎市川崎区鈴木町１－２ 味の素ファインテクノ株式会社内 Kanagawa (JP). 馬場 英治 (**BABA, Eiji**); 〒2100801 神奈川県川崎市川崎区鈴木町１－２ 味の素ファインテクノ株式会社内 Kanagawa (JP). 堀次 恒介 (**HORITSUGU, Kosuke**); 〒2100801 神奈川県川崎市川崎区鈴木町１－２ 味の素ファインテクノ株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 高島 一, 外 (**TAKASHIMA, Hajime** et al.); 〒5410044 大阪府大阪市中央区伏見町四丁目１番１号 明治安田生命大阪御堂筋ビル Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2018/066548 A1

(54) **Title:** ENCAPSULATION RESIN COMPOSITION AND ENCAPSULATION SHEET

(54) 発明の名称： 封止用の樹脂組成物および封止用シート

(57) **Abstract:** The present invention provides an encapsulation resin composition which comprises a thermosetting resin (A), a semi-calcined hydrotalcite (B), and a curing agent (C), wherein a cured product of the resin composition has a refractive index of 1.48-1.54.

(57) 要約： 本発明は、（Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイト、および（Ｃ）硬化剤を含む樹脂組成物であって、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４である封止用の樹脂組成物を提供する。

明　細　書

発明の名称 ： 封止用の樹脂組成物および封止用シート

技術分野

[0001] 本発明は封止用の樹脂組成物および封止用シートに関し、特に有機ＥＬ（Electroluminescence）素子等の発光素子や太陽電池等の受光素子等の光電変換素子等の封止に好適な封止用の樹脂組成物および封止用シートに関する。

背景技術

[0002] 有機ＥＬ素子は発光材料に有機物質を使用した発光素子であり、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため近年脚光を浴びている。しかしながら、有機ＥＬ素子は水分に極めて弱く、発光材料（発光層）が水分によって変質して、輝度が低下したり、発光しなくなったり、電極と発光層との界面が水分の影響で剥離したり、金属が酸化して高抵抗化してしまったりする問題がある。このため、素子内部を外気中の水分から遮断するために、例えば、基板上に形成された発光層の全面を覆うように樹脂組成物によって封止層を形成して有機ＥＬ素子を封止することが行われる。このような有機ＥＬ素子の封止層には高い水分遮断性が求められる。更に、ディスプレイやタッチパネル、照明等の用途で、封止面から光を取り出す構造や透過型の構造の場合、封止層にも高い透明性も求められる。このように、高い水分遮断性と透明性を両立する封止層を形成し得る樹脂組成物が求められている。

[0003] 特許文献１では、吸湿性金属酸化物を樹脂組成物に含有させることにより水分遮断性を向上させることが記載されている。また、特許文献２では、焼成ハイドロタルサイトを含有する封止用樹脂組成物が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０１１－８４６６７号公報

特許文献2：国際公開２０１５／０６８７８６号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、水分遮断性および透明性の両方に優れる封止層を形成し得る封止用の樹脂組成物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

[0006] 本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意研究をした結果、熱硬化性樹脂を含む封止用の樹脂組成物に半焼成ハイドロタルサイトを配合し、その樹脂組成物の硬化物の屈折率が特定の数値範囲を満たすように設定することにより、その樹脂組成物の硬化物が高い透明性を示し、かつ水分遮断性が長時間にわたって維持され、封止された素子の水分による劣化を抑制し得ることを見出した。このような知見に基づく本発明は、以下の通りである。

[0007] ［１］ （Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイト、および（Ｃ）硬化剤を含む樹脂組成物であって、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４である封止用の樹脂組成物。

［２］ （Ａ）熱硬化性樹脂が、屈折率が１．４８～１．５４である熱硬化性樹脂を含む前記［１］に記載の樹脂組成物。

［３］ （Ａ）熱硬化性樹脂が、芳香環含有エポキシ樹脂を含む前記［１］または［２］に記載の樹脂組成物。

［４］ （Ａ）熱硬化性樹脂が、屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂（ａ１）、および芳香環含有エポキシ樹脂（ａ２）を含む前記［１］に記載の樹脂組成物。

［５］ 屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂（ａ１）が、水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂およびアルキルフェノール型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である前記［４］に記載の樹脂組成物。

［６］ 芳香環含有エポキシ樹脂（ａ２）が、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、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂およびフッ素含有芳香族型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である前記［

４］または［５］に記載の樹脂組成物。

［７］　（Ａ）熱硬化性樹脂の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり１０～９５質量％である前記［１］～［６］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［８］　（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイトの量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり５～６０質量％である前記［１］～［７］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［９］　（Ｃ）硬化剤が、イオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、およびジメチルウレア化合物から選ばれる１種以上である前記［１］～［８］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１０］　（Ｃ）硬化剤の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．１～４０質量％である前記［１］～［９］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１１］　さらに（Ｄ）硬化促進剤を含む前記［１］～［１０］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１２］　（Ｄ）硬化促進剤が、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物、およびアミンアダクト化合物から選ばれる１種以上である前記［１１］に記載の樹脂組成物。

［１３］　（Ｄ）硬化促進剤の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．０５～１０質量％である前記［１１］または［１２］に記載の樹脂組成物。

［１４］　さらに（Ｅ）熱可塑性樹脂を含む前記［１］～［１３］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１５］　（Ｅ）熱可塑性樹脂が、フェノキシ樹脂である前記［１４］に記載の樹脂組成物。

［１６］　（Ｅ）熱可塑性樹脂の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．１～６０質量％である前記［１４］または［１５］に記載の樹脂組成物。

［１７］　有機ＥＬ素子の封止用である前記［１］～［１６］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１８］　厚さが２０μｍである樹脂組成物の硬化物層のＤ６５光での平行線透過率が８０～１００％である前記［１］～［１７］のいずれか一つに記載の樹脂組成物。

［１９］　前記［１］～［１８］のいずれか一つに記載の樹脂組成物の層が支持体上に形成されている封止用シート。

［２０］　有機ＥＬ素子の封止用である前記［１９］に記載の封止用シート。

［２１］　前記［１］～［１８］のいずれか一つに記載の樹脂組成物の硬化物で有機ＥＬ素子が封止された有機ＥＬデバイス。

発明の効果

[0008]　本発明の封止用の樹脂組成物によれば、水分遮断性および透明性の両方に優れる封止層を形成することができる。

発明を実施するための形態

[0009]＜樹脂組成物＞

本発明の封止用の樹脂組成物は、（Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイトおよび（Ｃ）硬化剤を含む樹脂組成物であって、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４であることを特徴とする。硬化物の屈折率は、１．４９～１．５４が好ましく、１．５０～１．５４がより好ましく、半焼成ハイドロタルサイトの屈折率と同程度である１．５０～１．５３がさらに好ましい。

[0010]＜（Ａ）熱硬化性樹脂＞

本発明では、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４となるような熱硬化性樹脂を使用する。前記屈折率が１．４９～１．５４となるような熱硬化性樹脂が好ましく、前記屈折率が１．５０～１．５４となるような熱硬化性樹脂がより好ましく、前記屈折率が半焼成ハイドロタルサイトの屈折率と同程度である１．５０～１．５３となるような熱硬化性樹脂がさらに

好ましい。

[0011] 樹脂組成物の硬化物の屈折率は、熱硬化性樹脂または他の成分（例えば、熱可塑性樹脂等）によって調整することができる。硬化物の屈折率の調整を容易にするため、（Ａ）熱硬化性樹脂は、好ましくは、屈折率が１．４８～１．５４である熱硬化性樹脂を含む。前記熱硬化性樹脂の屈折率は、より好ましくは１．４９～１．５４、さらに好ましくは１．５０～１．５４である。

[0012] 屈折率が１．４８～１．５４である熱硬化性樹脂の含有量は、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４となる範囲であれば特に限定されないが、（Ａ）熱硬化性樹脂全体あたり、好ましくは５０～１００質量％、より好ましくは６０～１００質量％、さらに好ましくは７０～１００質量％である。

[0013] 本発明で使用する（Ａ）熱硬化性樹脂全体の屈折率は、好ましくは１．４８～１．５４、より好ましくは１．４９～１．５４、さらに好ましくは１．５０～１．５４である。複数の熱硬化性樹脂を用いる場合には、それらの混合物全体の屈折率が上記範囲内であることが好ましい。

[0014] 熱硬化性樹脂としては、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４となるような熱硬化性樹脂であれば特に限定されないが、例えば、エポキシ樹脂、シアネートエステル樹脂、フェノール樹脂、ビスマレイミドートリアジン樹脂、ポリイミド樹脂、アクリル樹脂、ビニルベンジル樹脂等が挙げられ、なかでも低温硬化性等の観点からエポキシ樹脂が好ましい。

[0015] エポキシ樹脂は、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４となるようなエポキシ樹脂であれば特に限定されない。そのようなエポキシ樹脂としては、平均して１分子当り２個以上のエポキシ基を有し、かつ、透過率の高いものが使用できる。例えば、水素添加エポキシ樹脂（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）、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビフェニ

ルアラルキル型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂、ナフトール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、リン含有エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、芳香族グリシジルアミン型エポキシ樹脂（例えば、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、トリグリシジル－ｐ－アミノフェノール、ジグリシジルトルイジン、ジグリシジルアニリン等）、脂環式エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、アルキル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、ビスフェノールＡノボラック型エポキシ樹脂、ブタジエン構造を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールのジグリシジルエーテル化物、ナフタレンジオールのジグリシジルエーテル化物、フェノール類のジグリシジルエーテル化物、およびアルコール類のジグリシジルエーテル化物、並びにこれらのエポキシ樹脂のアルキル置換体等が挙げられる。

[0016] エポキシ樹脂は、１種のみを使用してもよく、２種以上を併用してもよい。エポキシ樹脂のエポキシ当量は、反応性等の観点から、好ましくは５０～５，０００、より好ましくは５０～３，０００、さらに好ましくは８０～２，０００、特に好ましくは１００～１，５００である。なお、「エポキシ当量」とは、１グラム当量のエポキシ基を含む樹脂のグラム数（ｇ／ｅｑ）であり、ＪＩＳ Ｋ ７２３６に規定された方法に従って測定される。エポキシ樹脂の重量平均分子量は、好ましくは５，０００以下である。

[0017] エポキシ樹脂は、液状または固形のいずれでもよく、液状エポキシ樹脂と固形エポキシ樹脂とを併用してもよい。ここで、「液状」および「固形」とは、常温（２５℃）および常圧（１ａｔｍ）でのエポキシ樹脂の状態である。塗工性、加工性、接着性の観点から、使用するエポキシ樹脂全体の１０質量％以上が液状エポキシ樹脂であるのが好ましい。ハイドロタルサイトとの混練性およびワニス粘度の観点から、液状エポキシ樹脂と固形エポキシ樹脂とを併用することが特に好ましい。液状エポキシ樹脂と固形エポキシ樹脂の質量比（液状エポキシ樹脂：固形エポキシ樹脂）は、１：２～１：０が好ましく、１：１．５～１：０がより好ましい。

[0018] 本発明の一態様において、（Ａ）熱硬化性樹脂は、その屈折率を１．４８～１．５４とする上で、好ましくは水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂およびアルキルフェノール型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上であり、より好ましくは水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂および環状脂肪族型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である。前記樹脂を使用することによって、透明性の高い硬化物を得ることができる。

[0019] 「水素添加エポキシ樹脂」とは、芳香環含有エポキシ樹脂を水素添加して得られるエポキシ樹脂を意味する。水素添加エポキシ樹脂の水添化率は、好ましくは５０％以上、より好ましくは７０％以上である。「鎖状脂肪族型エポキシ樹脂」とは、直鎖状または分岐状のアルキル鎖、またはアルキルエーテル鎖を持つエポキシ樹脂を意味し、「環状脂肪族型エポキシ樹脂」とは、分子内に環状脂肪族骨格、例えばシクロアルカン骨格を持つエポキシ樹脂を意味する。「アルキルフェノール型エポキシ樹脂」とは、置換基として１以上のアルキル基および１以上のヒドロキシ基を有するベンゼン環骨格を持ち、前記ヒドロキシ基がグリシジルエーテル基に変換されているエポキシ樹脂を意味する。

[0020] 水素添加エポキシ樹脂としては、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型エポキシ樹脂が好ましい。なお、樹脂組成物の硬化物の屈折率が上記特定の数値範囲を満たすか、熱硬化性樹脂全体としての屈折率が上記特定の数値範囲を満たす限りにおいては、上記好適なエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂が熱硬化性樹脂中に含まれていてもよい。

[0021] 水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂としては、例えば、液状水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（例えば、「ＹＸ８０００」（三菱化学社製、エポキシ当量：約２０５）、「デナコールＥＸ－２５２」（ナガセケムテックス社製、エポキシ当量：約２１３））、固形水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（例えば、「ＹＸ８０４０」（三菱化学社製、エポキシ当量：約１０００））が挙げられる。

[0022] フッ素含有エポキシ樹脂は、例えば、ＷＯ２０１１／０８９９４７に記載のフッ素含有エポキシ樹脂を用いることができる。

[0023] 鎖状脂肪族型エポキシ樹脂としては、例えば、ポリグリセロールポリグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－５１２」、「デナコールＥＸ－５２１」、ナガセケムテックス社製）、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－４１１」、ナガセケムテックス社製）、ジグリセロールポリグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－４２１」、ナガセケムテックス社製）、グリセロールポリグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－３１３」、「デナコールＥＸ－３１４」、ナガセケムテックス社製）、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－３２１」、ナガセケムテックス社製）、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－２１１」、ナガセケムテックス社製）、１，６－ヘキサンジオールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－２１２」、ナガセケムテックス社製）、エチレングリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－８１０」、「デナコールＥＸ－８１１」、ナガセケムテックス社製）、ジエチレングリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－８５０」、「デナコールＥＸ－８５１」、ナガセケムテックス社製）、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－８２１」、「デナコールＥＸ－８３０」、「デナコールＥＸ－８３２」、「デナコールＥＸ－８４１」、「デナコールＥＸ－８６１」、ナガセケムテックス社製）、プロピレングリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－９１１」、ナガセケムテックス社製）、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル（例えば、「デナコールＥＸ－９４１」、「デナコールルＥＸ－９２０」、「デナコールＥＸ－９３１」、ナガセケムテックス社製）等が挙げられる。

[0024] 環状脂肪族型エポキシ樹脂としては、例えば、ダイセル化学工業社製「ＥＨＰＥ－３１５０」等が挙げられる。

[0025] アルキルフェノール型エポキシ樹脂としては、例えば、ＤＩＣ社製「ＨＰ－８２０」；新日鉄住金化学工業社製「ＹＤＣ－１３１２」；ナガセケムテックス社製「ＥＸ－１４６」等が挙げられる。

[0026] 本発明の一態様において、（Ａ）熱硬化性樹脂は、屈折率が１．４８～１．５４であり、かつ分子内に芳香環を含有するエポキシ樹脂（芳香環含有エポキシ樹脂）を含むのが好ましい。分子内に芳香環構造を含むエポキシ樹脂を用いると、樹脂組成物の反応性、硬化物のガラス転移温度、密着性のいずれかまたは全てが向上する傾向となるため好ましい。このような熱硬化性樹脂としては、例えば、アルキルフェノール型エポキシ樹脂、フッ素含有芳香族型エポキシ樹脂等が挙げられる。

[0027] また、本発明の別の一態様では、（Ａ）熱硬化性樹脂は、好ましくは、屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂（ａ１）（以下「樹脂（ａ１）」と略称することがある）、および芳香環含有エポキシ樹脂（ａ２）（以下「樹脂（ａ２）」と略称することがある）を含む。樹脂（ａ１）は、１種のみでもよく、２種以上でもよい。同様に、樹脂（ａ２）は、１種のみでもよく、２種以上でもよい。

[0028] 芳香環含有エポキシ樹脂を使用することによって、樹脂組成物の反応性、並びに硬化物のガラス転移温度および密着性のいずれかまたは全てが向上する傾向となる。しかし、エポキシ樹脂が芳香環を含む場合、屈折率が高くなる傾向がある。そのため、一般に、１．４８～１．５４の屈折率を満たす芳香環含有エポキシ樹脂は少ない。従って、樹脂（ａ１）と樹脂（ａ２）を組み合わせて用いることで、望ましい屈折率と、樹脂組成物の反応性並びに硬化物のガラス転移温度および密着性の向上とを、両立することができる。

[0029] 樹脂（ａ１）および樹脂（ａ２）の合計の含有量は、上記効果が達成される範囲であれば特に限定されないが、（Ａ）熱硬化性樹脂全体あたり、好ましくは６０～１００質量％、より好ましくは７０～１００質量％、さらに好ましくは８０～１００質量％、特に好ましくは９０～１００質量％、最も好ましく１００質量％である。

[0030] 樹脂（ａ１）としては、屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂であれば特に限定されない。上記屈折率を有するエポキシ樹脂は、一般に、芳香環構造を含まないものが多い。樹脂（ａ１）は、好ましくは水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂およびアルキルフェノール型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である。

[0031] 樹脂（ａ２）としては、芳香環を含むエポキシ樹脂であれば特に限定されない。樹脂組成物の反応性、硬化物のガラス転移温度およびまたは密着性の向上の観点から、樹脂（ａ２）は、好ましくは、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、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂およびフッ素含有芳香族型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である。芳香環含有エポキシ樹脂の屈折率は、一般に１．４８～１．５４ではないが、屈折率が１．４８～１．５４である芳香環含有エポキシ樹脂も、樹脂（ａ２）として用いることができる。

[0032] ここで、「ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂」とは、ノボラック構造および２価のビフェニル構造が結合した主鎖を持つエポキシ樹脂を意味する。「フルオレン型エポキシ樹脂」とは、フルオレン骨格を持つエポキシ樹脂を意味する。「フッ素含有芳香族型エポキシ樹脂」とは、芳香環を有するフッ素含有エポキシ樹脂を意味する。例えば、ＷＯ２０１１／０８９９４７に記載のフッ素含有芳香族型エポキシ樹脂を用いることができる。

[0033] 樹脂（ａ１）および樹脂（ａ２）を併用する態様において、樹脂（ａ１）は、より好ましくは水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂およびアルキルフェノール型エポキシ樹脂であり、さらに好ましくは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型エポキシ樹脂およびフッ素含有エポキシ樹脂から選ばれる１種以上であり、特に好ましくは水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂および水添ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上であり、最も好ましくは水

添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂である。また、前記態様において、樹脂（ａ２）は、より好ましくはビスフェノール型エポキシ樹脂およびフッ素含有芳香族型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上であり、さらに好ましくはビスフェノール型エポキシ樹脂であり、さらに好ましくはビスフェノールＡ型エポキシ樹脂およびビスフェノールＦ型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である。

[0034] 樹脂（ａ１）および樹脂（ａ２）を併用する態様において、樹脂（ａ２）の量は、樹脂（ａ１）および樹脂（ａ２）の合計あたり、０．５～４０質量％が好ましく、１～３５質量％がより好ましく、２～３０質量％がさらに好ましい。

[0035] ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂としては、例えば、三菱ケミカル社製「８２８ＥＬ」、「１００１」および「１００４ＡＦ」；ＤＩＣ社製「８４０」および「８５０－Ｓ」；新日鉄住金化学工業社製「ＹＤ－１２８」等が挙げられる。また、液状ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂および液状ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂の混合物としては、例えば、新日鐵化学工業社製「ＺＸ－１０５９」（エポキシ当量：約１６５）が挙げられる。

[0036] ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂としては、例えば、三菱ケミカル社製「８０７」；ＤＩＣ社製「８３０」；新日鉄住金化学工業社製「ＹＤＦ－１７０」等が挙げられる。

[0037] フェノールノボラック型エポキシ樹脂としては、例えば、ＤＩＣ社製「Ｎ－７３０Ａ」、「Ｎ－７４０」、「Ｎ－７７０」および「Ｎ－７７５」；三菱ケミカル社製「１５２」および「１５４」等が挙げられる。

[0038] ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂としては、例えば、日本化薬社製「ＮＣ－３０００」、「ＮＣ－３０００Ｌ」および「ＮＣ－３１００」等が挙げられる。

[0039] フルオレン型エポキシ樹としては、例えば、大阪ガスケミカル社製「ＯＧＳＯＬ ＰＧ－１００」、「ＣＧ－５００ＥＧ－２００」および「ＥＧ－２８０」等が挙げられる。

[0040] 熱硬化性樹脂の量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、１０～９５質量％が好ましく、２０～９０質量％がより好ましく、３０～８５質量％がさらに好ましい。

[0041] エポキシ樹脂の量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、１０～９５質量％が好ましく、２０～９０質量％がより好ましく、３０～８５質量％がさらに好ましい。

[0042] ＜（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイト＞

ハイドロタルサイトは、未焼成ハイドロタルサイト、半焼成ハイドロタルサイト、および焼成ハイドロタルサイトに分類することができる。

[0043] 未焼成ハイドロタルサイトは、例えば、天然ハイドロタルサイト（$Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3\cdot 4H_2O$）に代表されるような層状の結晶構造を有する金属水酸化物であり、例えば、基本骨格となる層$[Mg_{1-X}Al_X(OH)_2]^{x+}$と中間層$[(CO_3)_{X/2}\cdot mH_2O]^{x-}$からなる。本発明における未焼成ハイドロタルサイトは、合成ハイドロタルサイト等のハイドロタルサイト様化合物を含む概念である。ハイドロタルサイト様化合物としては、例えば、下記式（Ｉ）および下記式（ＩＩ）で表されるものが挙げられる。

[0044] $[M^{2+}_{1-x}M^{3+}_x(OH)_2]^{x+}\cdot[(A^{n-})_{x/n}\cdot mH_2O]^{x-}$ （Ｉ）

（式中、M^{2+}はMg_{2+}、Zn^{2+}などの２価の金属イオンを表し、M^{3+}はAl^{3+}、Fe^{3+}などの３価の金属イオンを表し、A^{n-}はCO_3^{2-}、Cl^-、NO_3^-などのｎ価のアニオンを表し、０＜ｘ＜１であり、０≦ｍ＜１であり、ｎは正の数である。）

式（Ｉ）中、M^{2+}は、好ましくはMg^{2+}であり、M^{3+}は、好ましくはAl^{3+}であり、A^{n-}は、好ましくはCO_3^{2-}である。

[0045] $M^{2+}_xAl_2(OH)_{2x+6-nz}(A^{n-})_z\cdot mH_2O$ （ＩＩ）

（式中、M^{2+}はMg^{2+}、Zn^{2+}などの２価の金属イオンを表し、A^{n-}はCO_3^{2-}、Cl^-、NO^{3-}などのｎ価のアニオンを表し、ｘは２以上の正の数であり、ｚは２以下の正の数であり、ｍは正の数であり、ｎは正の数である。）

式（ＩＩ）中、M^{2+}は、好ましくはMg^{2+}であり、A^{n-}は、好ましくはCO_3^{2-}である。

[0046] 半焼成ハイドロタルサイトは、未焼成ハイドロタルサイトを焼成して得られる、層間水の量が減少または消失した層状の結晶構造を有する金属水酸化物をいう。「層間水」とは、組成式を用いて説明すれば、上述した未焼成の天然ハイドロタルサイトおよびハイドロタルサイト様化合物の組成式に記載の「H_2O」を指す。本発明は、この半焼成ハイドロタルサイトを使用することを特徴の一つとする。

[0047] 一方、焼成ハイドロタルサイトは、未焼成ハイドロタルサイトまたは半焼成ハイドロタルサイトを焼成して得られ、層間水だけでなく、水酸基も縮合脱水によって消失した、アモルファス構造を有する金属酸化物をいう。

[0048] 未焼成ハイドロタルサイト、半焼成ハイドロタルサイトおよび焼成ハイドロタルサイトは、飽和吸水率により区別することができる。半焼成ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、１質量％以上２０質量％未満である。一方、未焼成ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、１質量％未満であり、焼成ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、２０質量％以上である。

[0049] 本発明における「飽和吸水率」とは、未焼成ハイドロタルサイト、半焼成ハイドロタルサイトまたは焼成ハイドロタルサイトを天秤にて１．５ｇ量り取り、初期質量を測定した後、大気圧下、６０℃、９０％ＲＨ（相対湿度）に設定した小型環境試験器（エスペック社製ＳＨ－２２２）に２００時間静置した場合の、初期質量に対する質量増加率を言い、下記式（ｉ）：

飽和吸水率（質量％）

＝１００×（吸湿後の質量－初期質量）／初期質量　　（ｉ）

で求めることができる。

[0050] 半焼成ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、好ましくは３質量％以上２０質量％未満、より好ましくは５質量％以上２０質量％未満である。

[0051] また、未焼成ハイドロタルサイト、半焼成ハイドロタルサイトおよび焼成ハイドロタルサイトは、熱重量分析で測定される熱重量減少率により区別す

ることができる。半焼成ハイドロタルサイトの２８０℃における熱重量減少率は１５質量％未満であり、かつその３８０℃における熱重量減少率は１２質量％以上である。一方、未焼成ハイドロタルサイトの２８０℃における熱重量減少率は、１５質量％以上であり、焼成ハイドロタルサイトの３８０℃における熱重量減少率は、１２質量％未満である。

[0052] 熱重量分析は、日立ハイテクサイエンス社製ＴＧ／ＤＴＡ ＥＸＳＴＡＲ６３００を用いて、アルミニウム製のサンプルパンにハイドロタルサイトを５ｍｇ秤量し、蓋をせずオープンの状態で、窒素流量２００ｍＬ／分の雰囲気下、３０℃から５５０℃まで昇温速度１０℃／分の条件で行うことができる。熱重量減少率は、下記式（ｉｉ）：

熱重量減少率（質量％）

＝１００×（加熱前の質量－所定温度に達した時の質量）／加熱前の質量

（ｉｉ）

で求めることができる。

[0053] また、未焼成ハイドロタルサイト、半焼成ハイドロタルサイトおよび焼成ハイドロタルサイトは、粉末Ｘ線回折で測定されるピークおよび相対強度比により区別することができる。半焼成ハイドロタルサイトは、粉末Ｘ線回折により２θが８～１８°付近に二つにスプリットしたピーク、または二つのピークの合成によりショルダーを有するピークを示し、低角側に現れるピークまたはショルダーの回折強度（＝低角側回折強度）と、高角側に現れるピークまたはショルダーの回折強度（＝高角側回折強度）の相対強度比（低角側回折強度／高角側回折強度）は、０．００１～１，０００である。一方、未焼成ハイドロタルサイトは８～１８°付近で一つのピークしか有しないか、または低角側に現れるピークまたはショルダーと高角側に現れるピークまたはショルダーの回折強度の相対強度比が前述の範囲外となる。焼成ハイドロタルサイトは８°～１８°の領域に特徴的ピークを有さず、４３°に特徴的なピークを有する。粉末Ｘ線回折測定は、粉末Ｘ線回折装置（PANalytical社製、Empyrean）により、対陰極ＣｕＫα（１．５４０５Å）、電圧：４５

Ｖ、電流：４０ｍＡ、サンプリング幅：０．０２６０°、走査速度：０．０６５７°／ｓ、測定回折角範囲（２θ）：５．０１３１～７９．９７１１°の条件で行った。ピークサーチは、回折装置付属のソフトウエアのピークサーチ機能を利用し、「最小有意度：０．５０、最小ピークチップ：０．０１°、最大ピークチップ：１．００°、ピークベース幅：２．００°、方法：２次微分の最小値」の条件で行うことができる。

[0054] 半焼成ハイドロタルサイトのＢＥＴ比表面積は、１～２５０ｍ^2／ｇが好ましく、５～２００ｍ^2／ｇがより好ましい。半焼成ハイドロタルサイトのＢＥＴ比表面積は、ＢＥＴ法に従って、比表面積測定装置（Macsorb HM Model 1210、マウンテック社製）を用いて試料表面に窒素ガスを吸着させ、ＢＥＴ多点法を用いて算出することができる。

[0055] 半焼成ハイドロタルサイトの平均粒子径は、１～１，０００ｎｍが好ましく、１０～８００ｎｍがより好ましい。半焼成ハイドロタルサイトの平均粒子径は、レーザー回折散乱式粒度分布測定（ＪＩＳ Ｚ ８８２５）により粒度分布を体積基準で作成したときの該粒度分布のメディアン径である。

[0056] 半焼成ハイドロタルサイトは、表面処理剤で表面処理したものを用いることができる。表面処理に使用する表面処理剤としては、例えば、高級脂肪酸、アルキルシラン類、シランカップリング剤等を使用することができ、なかでも、高級脂肪酸、アルキルシラン類が好適である。表面処理剤は、１種または２種以上を使用できる。

[0057] 高級脂肪酸としては、例えば、ステアリン酸、モンタン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸などの炭素数１８以上の高級脂肪酸が挙げられ、中でも、ステアリン酸が好ましい。これらは、１種または２種以上を使用できる。

[0058] アルキルシラン類としては、例えば、メチルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、ｎ－オクタデシルジメチル（３－（トリメトキシシリル）プロピル）アンモニウムクロライド

等が挙げられる。これら、１種または２種以上を使用できる。

[0059] シランカップリング剤としては、例えば、３－グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシジルオキシプロピルトリエトキシシラン、３－グリシジルオキシプロピル（ジメトキシ）メチルシランおよび２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランなどのエポキシ系シランカップリング剤；３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリエトキシシラン、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランおよび１１－メルカプトウンデシルトリメトキシシランなどのメルカプト系シランカップリング剤；３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルジメトキシメチルシラン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－メチルアミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシランおよびＮ－（２－アミノエチル）－３－アミノプロピルジメトキシメチルシランなどのアミノ系シランカップリング剤；３－ウレイドプロピルトリエトキシシランなどのウレイド系シランカップリング剤、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランおよびビニルメチルジエトキシシランなどのビニル系シランカップリング剤；ｐ－スチリルトリメトキシシランなどのスチリル系シランカップリング剤；３－アクリルオキシプロピルトリメトキシシランおよび３－メタクリルオキシプロピルトリメトキシシランなどのアクリレート系シランカップリング剤；３－イソシアネートプロピルトリメトキシシランなどのイソシアネート系シランカップリング剤、ビス（トリエトキシシリルプロピル）ジスルフィド、ビス（トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィドなどのスルフィド系シランカップリング剤；フェニルトリメトキシシラン、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、イミダゾールシラン、トリアジンシラン等を挙げることができる。これらは、１種または２種以上を使用できる。

[0060] 半焼成ハイドロタルサイトの表面処理は、例えば、未処理の半焼成ハイドロタルサイトを混合機で常温にて攪拌分散させながら、表面処理剤を添加噴

霧して５～６０分間攪拌することによって行なうことができる。混合機としては、公知の混合機を使用することができ、例えば、Ｖブレンダー、リボンブレンダー、バブルコーンブレンダー等のブレンダー、ヘンシェルミキサーおよびコンクリートミキサー等のミキサー、ボールミル、カッターミル等が挙げられる。又、ボールミルなどで半焼成ハイドロタルサイトを粉砕する際に、前記の高級脂肪酸、アルキルシラン類またはシランカップリング剤を添加し、表面処理を行うこともできる。表面処理剤の使用量は、半焼成ハイドロタルサイトの種類または表面処理剤の種類等によっても異なるが、表面処理されていない半焼成ハイドロタルサイト１００質量部に対して１～１０質量部が好ましい。本発明においては、表面処理された半焼成ハイドロタルサイトも、本発明における「半焼成ハイドロタルサイト」に包含される。

[0061] 本発明の樹脂組成物における半焼成ハイドロタルサイトの量は、本発明の効果が発揮されれば特に限定されるものではないが、樹脂組成物の不揮発分全体あたり５～６０質量％が好ましく、１０～５５質量％がより好ましい。半焼成ハイドロタルサイトは吸湿性能に優れるため、その量が増えれば、得られる硬化物の水分遮断性は向上する。しかし、その量が６０質量％を超えると、樹脂組成物の粘度が上昇する、濡れ性の低下により封止対象である基板等と樹脂組成物との密着性が低下する、硬化物の強度が低下して脆くなる等の問題が生じる傾向となる。また、半焼成ハイドロタルサイトの層間水により、封止層（即ち、硬化物）中の水分量が多くなるため、例えば、有機ＥＬデバイスの製造において、封止層中の水分による発光材料（発光層）や電極層への悪影響が顕在化し、初期段階のダークスポット発生が多くなるといった懸念がある。

[0062] 本発明の樹脂組成物は、本発明の効果が発揮される範囲であれば、焼成ハイドロタルサイトを含むことができる。その量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０～２０質量％が好ましく、０～１５質量％がより好ましく、０～１０質量％がさらに好ましく、０が最も好ましい。即ち、本発明の樹脂組成物が、焼成ハイドロタルサイトを含まないことが最も好ましい。焼成ハイ

ドロタルサイトの量が増えると、樹脂組成物の硬化物の屈折率が上昇し、透過率が低下する傾向となる。半焼成ハイドロタルサイト：焼成ハイドロタルサイトの質量比は、好ましくは５０：５０～１００：０、より好ましくは５５：４５～１００：０、さらに好ましくは６０：４０～１００：０である。

[0063] 本発明の樹脂組成物は、本発明の効果が発揮される範囲であれば、未焼成ハイドロタルサイトを含むことができる。その量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０～２０質量％が好ましく、０～１０質量％がより好ましく、０～５質量％がさらに好ましく、０が最も好ましい。即ち、本発明の樹脂組成物が、未焼成ハイドロタルサイトを含まないことが最も好ましい。未焼成ハイドロタルサイトは、樹脂組成物の硬化物の透過率に影響を及ぼさないが、水分含有量が大きいため、増量することにより水分遮蔽性の低下がみられ、例えば、その量が２０質量％を超えると、半焼成ハイドロタルサイトと同様に初期段階のダークスポット発生が多くなるといった懸念がある。半焼成ハイドロタルサイト：未焼成ハイドロタルサイトの質量比は、好ましくは５０：５０～１００：０、より好ましくは５５：４５～１００：０、より一層好ましくは６０：４０～１００：０、さらに好ましくは６５：３５～１００：０、特に好ましくは７０：３０～１００：０である。

[0064] 半焼成ハイドロタルサイトとしては、例えば「ＤＨＴ－４Ｃ」（協和化学工業社製、平均粒子径：４００ｎｍ）、「ＤＨＴ－４Ａ－２」（協和化学工業社製、平均粒子径：４００ｎｍ）等が挙げられる。一方、焼成ハイドロタルサイトとしては、例えば「ＫＷ－２２００」（協和化学工業社製、平均粒子径：４００ｎｍ）等が挙げられ、未焼成ハイドロタルサイトとしては、例えば「ＤＨＴ－４Ａ」（協和化学工業社製、平均粒子径：４００ｎｍ）等が挙げられる。

[0065] ＜（Ｃ）硬化剤および（Ｄ）硬化促進剤＞

本発明の樹脂組成物は、硬化剤を含有する。すなわち、封止層は、樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物である。硬化剤は、熱硬化性樹脂を硬化する機能を有するものであれば特に限定されない。樹脂組成物の硬化処理時に

おける有機ＥＬ素子等の発光素子の熱劣化を抑制する観点から、硬化剤として、１４０℃以下（好ましくは１２０℃以下）の温度下で、熱硬化性樹脂を硬化し得るものが好ましい。硬化剤は、１種のみを使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0066] 硬化剤としては、熱硬化性樹脂として特に好ましいエポキシ樹脂の硬化剤につき、例示する。例えば、イオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物、アミンアダクト化合物、有機酸ジヒドラジド化合物、有機ホスフィン化合物、ジシアンジアミド化合物、１級・２級アミン系化合物等が挙げられる。

[0067] 硬化剤は、好ましくはイオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物およびアミンアダクト化合物から選ばれる１種以上であり、より好ましくはイオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、およびジメチルウレア化合物から選ばれる１種以上である。

[0068] 特に、本発明における硬化剤としては、１４０℃以下（好ましくは１２０℃以下）の温度下で熱硬化性樹脂（特にエポキシ樹脂）を硬化し得るイオン液体、すなわち、１４０℃以下（好ましくは１２０℃以下）の温度領域で融解しうる塩であって、熱硬化性樹脂（特に、エポキシ樹脂）の硬化作用を有する塩が好ましい。イオン液体は、熱硬化性樹脂（特にエポキシ樹脂）に均一に溶解している状態で使用されるのが望ましく、また、イオン液体は、樹脂組成物の硬化物の水分遮断性の向上に有利に作用する。

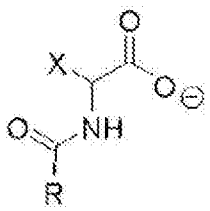
[0069] 本発明の樹脂組成物は、硬化剤に加え、硬化時間を調整する等の目的で硬化促進剤を含有してもよい。硬化促進剤は、１種のみを使用してもよく、２種以上を併用してもよい。硬化促進剤としては、熱硬化性樹脂として特に好ましいエポキシ樹脂の硬化促進剤につき、例示する。例えば、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物、およびアミンアダクト化合物等が挙げられる。硬化促進剤は、好ましくはイミダゾール化合物、３級アミン系化合物、およびジメチルウレア化合物から選ばれる１種以上で

ある。

[0070] 本発明における硬化剤としてのイオン液体を構成するカチオンとしては、イミダゾリウムイオン、ピペリジニウムイオン、ピロリジニウムイオン、ピラゾニウムイオン、グアニジニウムイオン、ピリジニウムイオン等のアンモニウム系カチオン；テトラアルキルホスホニウムカチオン（例えば、テトラブチルホスホニウムイオン、トリブチルヘキシルホスホニウムイオン等）等のホスホニウム系カチオン；トリエチルスルホニウムイオン等のスルホニウム系カチオン等が挙げられる。

[0071] 本発明における硬化剤としてのイオン液体を構成するアニオンとしては、フッ化物イオン、塩化物イオン、臭化物イオン、ヨウ化物イオン等のハロゲン化物系アニオン；メタンスルホン酸イオン等のアルキル硫酸系アニオン；トリフルオロメタンスルホン酸イオン、ヘキサフルオロホスホン酸イオン、トリフルオロトリス（ペンタフルオロエチル）ホスホン酸イオン、ビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミドイオン、トリフルオロ酢酸イオン、テトラフルオロホウ酸イオン等の含フッ素化合物系アニオン；フェノールイオン、２－メトキシフェノールイオン、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノールイオン等のフェノール系アニオン；アスパラギン酸イオン、グルタミン酸イオン等の酸性アミノ酸イオン；グリシンイオン、アラニンイオン、フェニルアラニンイオン等の中性アミノ酸イオン；Ｎ－ベンゾイルアラニンイオン、Ｎ－アセチルフェニルアラニンイオン、Ｎ－アセチルグリシンイオン等の下記一般式（１）で示されるＮ－アシルアミノ酸イオン；ギ酸イオン、酢酸イオン、デカン酸イオン、２－ピロリドン－５－カルボン酸イオン、α－リポ酸イオン、乳酸イオン、酒石酸イオン、馬尿酸イオン、Ｎ－メチル馬尿酸イオン、安息香酸イオン等のカルボン酸系アニオンが挙げられる。

[0072] [化1]



(1)

[0073] （但し、Ｒは炭素数１～５の直鎖または分岐鎖のアルキル基、或いは置換または無置換のフェニル基であり、Ｘはアミノ酸の側鎖を表す。）

[0074] 該式（１）におけるアミノ酸としては、例えば、アスパラギン酸、グルタミン酸、グリシン、アラニン、フェニルアラニン等が挙げられ、中でも、グリシンが好ましい。

[0075] 上述の中でも、カチオンはアンモニウム系カチオン、ホスホニウム系カチオンが好ましく、イミダゾリウムイオン、ホスホニウムイオンがより好ましい。イミダゾリウムイオンは、より詳細には、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムイオン、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムイオン、１－プロピル－３－メチルイミダゾリウムイオン等である。

[0076] また、アニオンはフェノール系アニオン、一般式（１）で示されるＮ－アシルアミノ酸イオンまたはカルボン酸系アニオンが好ましく、Ｎ－アシルアミノ酸イオンまたはカルボン酸系アニオンがより好ましい。

[0077] フェノール系アニオンの具体例としては、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノールイオンが挙げられる。また、カルボン酸系アニオンの具体例としては、酢酸イオン、デカン酸イオン、２－ピロリドン－５－カルボン酸イオン、ギ酸イオン、α－リポ酸イオン、乳酸イオン、酒石酸イオン、馬尿酸イオン、Ｎ－メチル馬尿酸イオン等が挙げられ、中でも、酢酸イオン、２－ピロリドン－５－カルボン酸イオン、ギ酸イオン、乳酸イオン、酒石酸イオン、馬尿酸イオン、Ｎ－メチル馬尿酸イオンが好ましく、酢酸イオン、デカン酸イオン、Ｎ－メチル馬尿酸イオン、ギ酸イオンが殊更好ましい。また、一般式（１）で示されるＮ－アシルアミノ酸イオンの具体例としては、Ｎ－ベンゾイルアラニンイオン、Ｎ－アセチルフェニルアラニンイオン、アスパラギン酸イオン、グリシンイオン、Ｎ－アセチルグリシンイオン等が挙げられ、中でも、Ｎ－ベンゾイルアラニンイオン、Ｎ－アセチルフェニルアラニンイオン、Ｎ－アセチルグリシンイオンが好ましく、Ｎ－アセチルグリシンイオンが殊更好ましい。

[0078] 具体的なイオン液体としては、例えば、１－ブチル－３－メチルイミダゾ

リウムラクテート、テトラブチルホスホニウム－２－ピロリドン－５－カルボキシレート、テトラブチルホスホニウムアセテート、テトラブチルホスホニウムデカノエート、テトラブチルホスホニウムトリフルオロアセテート、テトラブチルホスホニウムα－リポエート、ギ酸テトラブチルホスホニウム塩、テトラブチルホスホニウムラクテート、酒石酸ビス（テトラブチルホスホニウム）塩、馬尿酸テトラブチルホスホニウム塩、Ｎ－メチル馬尿酸テトラブチルホスホニウム塩、ベンゾイル－ＤＬ－アラニンテトラブチルホスホニウム塩、Ｎ－アセチルフェニルアラニンテトラブチルホスホニウム塩、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノールテトラブチルホスホニウム塩、Ｌ－アスパラギン酸モノテトラブチルホスホニウム塩、グリシンテトラブチルホスホニウム塩、Ｎ－アセチルグリシンテトラブチルホスホニウム塩、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムラクテート、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムアセテート、ギ酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩、馬尿酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩、Ｎ－メチル馬尿酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩、酒石酸ビス（１－エチル－３－メチルイミダゾリウム）塩、Ｎ－アセチルグリシン１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩が好ましく、テトラブチルホスホニウムデカノエート、Ｎ－アセチルグリシンテトラブチルホスホニウム塩、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムアセテート、ギ酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩、馬尿酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩、Ｎ－メチル馬尿酸１－エチル－３－メチルイミダゾリウム塩が殊更好ましい。

[0079] 上記イオン液体の合成法としては、アルキルイミダゾリウム、アルキルピリジニウム、アルキルアンモニウムおよびアルキルスルホニウムイオン等のカチオン部位と、ハロゲンを含むアニオン部位から構成される前駆体に、ＮａＢＦ$_4$、ＮａＰＦ$_6$、ＣＦ$_3$ＳＯ$_3$ＮａやＬｉＮ（ＳＯ$_2$ＣＦ$_3$）$_2$等を反応させるアニオン交換法、アミン系物質と酸エステルとを反応させてアルキル基を導入しつつ、有機酸残基が対アニオンになるような酸エステル法、およびアミン類を有機酸で中和して塩を得る中和法等があるが、これらに限定され

ない。アニオンとカチオンと溶媒による中和法では、アニオンとカチオンとを等量使用し、得られた反応液中の溶媒を留去して、そのまま用いることも可能であるし、さらに有機溶媒（メタノール、トルエン、酢酸エチル、アセトン等）を差し液濃縮しても構わない。

[0080] 本発明における硬化剤としての酸無水物化合物としては、例えば、テトラヒドロフタル酸無水物、メチルテトラヒドロフタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルナジック酸無水物、ドデセニルコハク酸無水物等が挙げられる。酸無水物化合物の具体例としては、リカシッドＴＨ、ＴＨ－１Ａ、ＨＨ、ＭＨ、ＭＨ－７００、ＭＨ－７００Ｇ（いずれも新日本理化社製）等が挙げられる。

[0081] 本発明における硬化剤および硬化促進剤としてのイミダゾール化合物としては、例えば、１Ｈ－イミダゾール、２－メチル－イミダゾール、２－フェニル－４－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチル－イミダゾール、２－ウンデシルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾリウムトリメリテイト、２，４－ジアミノ－６－（２’－ウンデシルイミダゾリル－（１’））－エチル－ｓ－トリアジン、２－フェニル－４，５－ビス（ヒドロキシメチル）－イミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－ベンジル－２－フェニルイミダゾール、２－フェニル－イミダゾール、２－ドデシル－イミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、１，２－ジメチル－イミダゾール、２－フェニル－４－メチル－５－ヒドロキシメチルイミダゾール、２，４－ジアミノ－６－（２’－メチルイミダゾリル－（１’））－エチル－ｓ－トリアジン、２，４－ジアミノ－６－（２’－メチルイミダゾリル－（１’））－エチル－ｓ－トリアジンイソシアヌル酸付加物等が挙げられる。イミダゾール化合物の具体例としては、キュアゾール２ＭＺ、２Ｐ４ＭＺ、２Ｅ４ＭＺ、２Ｅ４ＭＺ－ＣＮ、Ｃ１１Ｚ、Ｃ１１Ｚ－ＣＮ、Ｃ１１Ｚ－ＣＮＳ、Ｃ１１Ｚ－Ａ、２ＰＨＺ、１Ｂ２ＭＺ、１Ｂ２ＰＺ、２ＰＺ、Ｃ１７Ｚ、１．２ＤＭ

Ｚ、２Ｐ４ＭＨＺ－ＰＷ、２ＭＺ－Ａ、２ＭＡ－ＯＫ（いずれも四国化成工業社製）等が挙げられる。

[0082] 本発明における硬化剤および硬化促進剤としての３級アミン系化合物の具体例としては、ＤＢＮ（1,5-diazabicyclo[4.3.0]non-5-ene）、ＤＢＵ（1,8-diazabicyclo[5.4.0]undec-7-ene）、ＤＢＵの２－エチルヘキサン酸塩、ＤＢＵのフェノール塩、ＤＢＵのｐ－トルエンスルホン酸塩、Ｕ－ＣＡＴ　ＳＡ１０２（サンアプロ社製：ＤＢＵのオクチル酸塩）、ＤＢＵのギ酸塩等のＤＢＵ－有機酸塩、トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール（ＴＡＰ）などが挙げられる。

[0083] 本発明における硬化剤および硬化促進剤としてのジメチルウレア化合物の具体例としては、ＤＣＭＵ（３－（３，４－ジクロロフェニル）－１，１－ジメチルウレア）、Ｕ－ＣＡＴ３５１２Ｔ（サンアプロ社製）等の芳香族ジメチルウレア、Ｕ－ＣＡＴ３５０３Ｎ（サンアプロ社製）等の脂肪族ジメチルウレア等が挙げられる。中でも硬化性の点から、芳香族ジメチルウレアが好ましく用いられる。

[0084] 本発明における硬化剤および硬化促進剤としてのアミンアダクト化合物としては、例えば、エポキシ樹脂への３級アミンの付加反応を途中で止めることによって得られるエポキシアダクト化合物等が挙げられる。アミンアダクト系化合物の具体例としては、アミキュアＰＮ－２３、アミキュアＭＹ－２４、アミキュアＰＮ－Ｄ、アミキュアＭＹ－Ｄ、アミキュアＰＮ－Ｈ、アミキュアＭＹ－Ｈ、アミキュアＰＮ－３１、アミキュアＰＮ－４０、アミキュアＰＮ－４０Ｊ（いずれも味の素ファインテクノ社製）等が挙げられる。

[0085] 本発明における硬化剤としての有機酸ジヒドラジド化合物の具体例としては、アミキュアＶＤＨ－Ｊ、アミキュアＵＤＨ、アミキュアＬＤＨ（いずれも味の素ファインテクノ社製）等が挙げられる。

[0086] 本発明における硬化剤および硬化促進剤としての有機ホスフィン化合物としては、例えば、トリフェニルホスフィン、テトラフェニルホスホニウムテトラ－ｐ－トリルボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボ

レート、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスホニウムテトラフェニルボレート、（４－メチルフェニル）トリフェニルホスホニウムチオシアネート、テトラフェニルホスホニウムチオシアネート、ブチルトリフェニルホスホニウムチオシアネート、トリフェニルホスフィントリフェニルボラン等が挙げられる。有機ホスフィン化合物の具体例としては、ＴＰＰ、ＴＰＰ－ＭＫ、ＴＰＰ－Ｋ、ＴＴＢｕＰ－Ｋ、ＴＰＰ－ＳＣＮ、ＴＰＰ－Ｓ（北興化学工業社製）等が挙げられる。

[0087] 本発明における硬化剤としてのジシアンジアミド化合物としては、例えば、ジシアンジアミドが挙げられる。ジシアンジアミド化合物の具体例としては、ジシアンジアミド微粉砕品であるＤＩＣＹ７、ＤＩＣＹ１５（いずれも三菱化学社製）等が挙げられる。

[0088] 本発明における硬化剤としての１級・２級アミン系化合物としては、例えば、脂肪族アミンであるジエチレントリアミン、トリエチレンテトラアミン、テトラエチレンペンタミン、トリメチルヘキサメチレンジアミン、２－メチルペンタメチレンジアミン、１，３－ビスアミノメチルシクロヘキサン、ジプロプレンジアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ビス（４－アミノシクロヘキシル）メタン、ノルボルネンジアミン、１，２－ジアミノシクロヘキサン等、脂環式アミンであるＮ－アミノエチルピペラジン、１，４－ビス（３－アミノプロピル）ピペラジン等、芳香族アミンである、ジアミノジフェニルメタン、ｍ－フェニレンジアミン、ｍ－キシレンジアミン、メタフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、ジエチルトルエンジアミン等が挙げられる。１級・２級アミン系化合物の具体例としては、カヤハードＡ－Ａ（日本化薬社製：４，４’－ジアミノ－３，３’－ジメチルジフェニルメタン）等が挙げられる。

[0089] 本発明の樹脂組成物において、硬化剤の量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０．１～４０質量％が好ましく、０．５～３８質量部がより好ましく、１～３５質量部がさらに好ましい。この量が０．１質量％よりも少ないと、十分な硬化性が得られないおそれがあり、この量が４０質量％より多い

と、樹脂組成物の保存安定性が損なわれることがある。なお、硬化剤としてイオン液体を使用する場合、樹脂組成物の硬化物の水分遮断性等の点からは、イオン液体の量は、樹脂組成物不揮発分全体あたり、０．１～２０質量％が好ましく、０．５～１８質量％がより好ましく、１～１５質量％がさらに好ましい。

[0090] 本発明の樹脂組成物が硬化促進剤を含む場合には、その量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０．０５～１０質量％が好ましく、０．１～８質量％がより好ましく、０．５～５質量％がさらに好ましい。この量が０．０５質量％未満であると、硬化が遅くなり熱硬化時間が長くなる傾向にあり、１０質量％を超えると樹脂組成物の保存安定性が低下する傾向となる。

[0091] 本発明における熱硬化性樹脂組成物は、硬化剤と硬化促進剤を組み合わせて使用するのが好ましい。硬化剤および硬化促進剤の組み合わせとして、イオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物、およびアミンアダクト化合物から選ばれる２種以上が好ましい。

[0092] ＜（Ｅ）熱可塑性樹脂＞

封止層（即ち、樹脂組成物の硬化物）への可撓性の付与、封止用シートを調製する際の樹脂組成物ワニスの塗工性（はじき防止）等の観点から、本発明の樹脂組成物に熱可塑性樹脂を含有させてもよい。熱可塑性樹脂としては、例えば、フェノキシ樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエステル樹脂、（メタ）アクリル系ポリマー等を挙げることができる。これらの熱可塑性樹脂は、１種のみを使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0093] 樹脂組成物を硬化して得られる封止層への可撓性の付与、封止用シートを調製する際の樹脂組成物ワニスの塗工性（はじき防止）等の点から、熱可塑性樹脂の重量平均分子量は、１５，０００以上であるのが好ましく、２０，０００以上がより好ましい。しかし、この重量平均分子量が大きすぎると、

熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂（特に、エポキシ樹脂）との相溶性が低下する等の傾向がある。そのため、この重量平均分子量は、１，０００，０００以下であるのが好ましく、８００，０００以下がより好ましい。

[0094] 本発明における重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法（ポリスチレン換算）で測定される。ＧＰＣ法による重量平均分子量は、具体的には、測定装置として島津製作所製ＬＣ－９Ａ／ＲＩＤ－６Ａを、カラムとして昭和電工社製Ｓｈｏｄｅｘ Ｋ－８００Ｐ／Ｋ－８０４Ｌ／Ｋ－８０４Ｌを、移動相としてクロロホルム等を用いて、カラム温度４０℃にて測定し、標準ポリスチレンの検量線を用いて算出することができる。

[0095] 熱可塑性樹脂は、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４となるような熱可塑性樹脂であれば特に限定されない。熱硬化性樹脂の屈折率が低い場合には、上記樹脂組成物の硬化物の屈折率よりも高い樹脂組成物の硬化物の屈折率の熱可塑性樹脂でもよい。熱可塑性樹脂の屈折率は、好ましくは１．４０～１．７０、より好ましくは１．４０～１．６５である。複数の熱可塑性樹脂を用いる場合には、熱可塑性樹脂の混合物全体の屈折率が上記範囲内であることが好ましい。

[0096] 熱可塑性樹脂としては、熱硬化性樹脂（特にエポキシ樹脂）との相溶性がよく、樹脂組成物の硬化物の水分遮断性の向上に有利に作用し得る、フェノキシ樹脂が好ましい。

[0097] フェノキシ樹脂も、エポキシ樹脂と同様に、エポキシ基を有し得る。フェノキシ樹脂の重量平均分子量は、好ましくは１０，０００～５００，０００であり、より好ましくは２０，０００～３００，０００である。

[0098] 好適なフェノキシ樹脂としては、ビスフェノールＡ骨格、ビスフェノールＦ骨格、ビスフェノールＳ骨格、ビスフェノールアセトフェノン骨格、ノボラック骨格、ビフェニル骨格、フルオレン骨格、ジシクロペンタジエン骨格、およびノルボルネン骨格から選択される１種以上の骨格を有するものが挙げられる。フェノキシ樹脂は１種または２種以上を使用できる。

[0099] フェノキシ樹脂の市販品としては、例えば、ＹＸ７２００Ｂ３５（三菱化学社製：ビフェニル骨格含有フェノキシ樹脂）、１２５６（三菱化学社製：ビスフェノールＡ骨格含有フェノキシ樹脂）、ＹＸ６９５４ＢＨ３５（三菱化学社製：ビスフェノールアセトフェノン骨格含有フェノキシ樹脂）等が挙げられる。

[0100] 本発明の樹脂組成物が熱可塑性樹脂を含有する場合、その量は、樹脂組成物不揮発分全体あたり、０．１～６０質量％であり、３～６０質量％が好ましく、５～５０質量％がより好ましい。

[0101] ＜カップリング剤＞

本発明の樹脂組成物はカップリング剤を含有していてもよい。カップリング剤としては、シランカップリング剤、アルミネートカップリング剤、チタネートカップリング剤が挙げられる。シランカップリング剤としては、例えば、３－グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシジルオキシプロピルトリエトキシシラン、３－グリシジルオキシプロピル（ジメトキシ）メチルシランおよび２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランなどのエポキシ系シランカップリング剤；３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリエトキシシラン、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランおよび１１－メルカプトウンデシルトリメトキシシランなどのメルカプト系シランカップリング剤；３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルジメトキシメチルシラン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－メチルアミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシランおよびＮ－（２－アミノエチル）－３－アミノプロピルジメトキシメチルシランなどのアミノ系シランカップリング剤；３－ウレイドプロピルトリエトキシシランなどのウレイド系シランカップリング剤；ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランおよびビニルメチルジエトキシシランなどのビニル系シランカップリング剤；ｐ－スチリルトリメトキシシラン

などのスチリル系シランカップリング剤；３－アクリルオキシプロピルトリメトキシシランおよび３－メタクリルオキシプロピルトリメトキシシランなどのアクリレート系シランカップリング剤；３－イソシアネートプロピルトリメトキシシランなどのイソシアネート系シランカップリング剤；ビス（トリエトキシシリルプロピル）ジスルフィド、ビス（トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィドなどのスルフィド系シランカップリング剤；フェニルトリメトキシシラン、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、イミダゾールシラン、トリアジンシラン等を挙げることができる。これらの中でも、ビニル系シランカップリング剤、エポキシ系シランカップリング剤が好ましく、エポキシ系シランカップリング剤が特に好ましい。アルミネートカップリング剤としては、例えば、アルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート（例えば、「プレンアクトＡＬ－Ｍ」味の素ファインテクノ社製）が挙げられる。チタネート系カップリング剤の具体例としては、プレンアクトＴＴＳ、プレンアクト４６Ｂ、プレンアクト５５、プレンアクト４１Ｂ、プレンアクト３８Ｓ、プレンアクト１３８Ｓ、プレンアクト２３８Ｓ、プレンアクト３３８Ｘ、プレンアクト４４、プレンアクト９ＳＡ（いずれも味の素ファインテクノ社製）等が挙げられる。カップリング剤は１種または２種以上を使用することができる。

[0102] 本発明の樹脂組成物におけるカップリング剤の量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０～１５質量％が好ましく、０．５～１０質量％がより好ましい。

[0103] ＜無機充填材＞

本発明の樹脂組成物には、樹脂組成物の硬化物の水分遮断性、封止用シートを調製する際の樹脂組成物ワニスの塗工性（はじき防止）等の観点から、本発明の効果が発揮される範囲で、半焼成ハイドロタルサイト以外の無機充填材をさらに含有させることができる。そのような無機充填材としては、上述した未焼成ハイドロタルサイトおよび焼成ハイドロタルサイトの他に、例えば、タルク、シリカ、アルミナ、硫酸バリウム、クレー、マイカ、水酸化

アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、窒化ホウ素、ホウ酸アルミニウム、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸カルシウム、チタン酸マグネシウム、チタン酸ビスマス、酸化チタン、酸化ジルコニウム、ジルコン酸バリウム、ジルコン酸カルシウム、ケイ酸塩等が挙げられる。無機充填材は１種または２種以上を使用できる。なお、無機充填材の一次粒子の粒経は、５μｍ以下が好ましく、さらには３μｍ以下が好ましい。例えば、一次粒子の粒経が０．００１～３μｍのもの、より好ましくは０．００５～２μｍのものを用いることができる。

[0104] 無機充填材の粒子形態は特に限定されず、略球状、直方体状、板状、繊維のような直線形状、分岐形状のものを用いることができる。無機充填材は、タルク、シリカ、ゼオライト、酸化チタン、アルミナ、酸化ジルコニウム、ケイ酸塩、マイカ、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム等が好ましく、タルク、シリカがより好ましく、タルクが特に好ましい。シリカとしては、無定形シリカ、溶融シリカ、結晶シリカ、合成シリカ湿式シリカ、乾式シリカ、コロイダルシリカ（水分散型、有機溶剤分散型、気相シリカ等）が好ましく、沈殿、沈降しにくく、樹脂との複合化がしやすいという観点から、有機溶剤分散型コロイダルシリカ（オルガノシリカゾル）が特に好ましい。

[0105] 無機充填材は、市販品を使用できる。タルクの例として、日本タルク社製「ＦＧ－１５」（平均粒径１．４μｍ）、「Ｄ－１０００」（平均粒径１．０μｍ）、「Ｄ－６００」（平均粒径０．６μｍ）等が挙げられる。市販されている球状溶融シリカの例として、アドマテックス社製の真球シリカ「アドマファインシリーズ」（「ＳＯ－Ｃ２；平均粒径０．５μｍ」、「ＳＣ２５００－ＳＱ；平均粒子径０．５μｍ、シランカップリング処理」など）等が挙げられる。フュームドシリカの例として、日本アエロジル(株)製の「アエロジルシリーズ」（「Ａ－２００：一次粒子径５～４０ｎｍ」など）等が挙げられる。有機溶剤分散型コロイダルシリカの例として、日産化学工業社製「ＭＥＫ－ＥＣ－２１３０Ｙ」（アモルファスシリカ粒径１０～１５ｎｍ、不揮発分３０質量%、ＭＥＫ溶剤）、日産化学工業社製「ＰＧＭ－ＡＣ－

２１４０Ｙ」（シリカ粒径１０～１５ｎｍ、不揮発分４０質量％、ＰＧＭ（プロピレングリコールモノメチルエーテル）溶剤）、日産化学工業社製「ＭＩＢＫ－ＳＴ」（シリカ粒径１０～１５ｎｍ、不揮発分３０質量％、ＭＩＢＫ（メチルイソブチルケトン）溶剤）、扶桑化学工業社製コロイド状シリカゾル「ＰＬ－２Ｌ－ＭＥＫ」（シリカ粒径１５～２０ｎｍ、不揮発分２０質量％、ＭＥＫ（メチルエチルケトン）溶剤）等が挙げられる。

[0106] 半焼成ハイドロタルサイト以外の無機充填材の量は、樹脂組成物の硬化物の水分遮蔽性等の観点から、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０～３０質量％が好ましく、０～２５質量％が更に好ましい。

[0107] 樹脂組成物の硬化物の水分遮蔽性および透過率向上等のため、本発明の樹脂組成物にシリカを配合してもよい。シリカを配合する場合、その量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．１～１０質量％が好ましい。シリカの量が多すぎると、密着性が低下する傾向となる。

[0108] 樹脂組成物の硬化物の耐湿性および密着性の向上等のため、本発明の樹脂組成物にタルクを配合してもよい。タルクを配合する場合、その量は、樹脂組成物の不揮発分全体あたり、０．０１～３０質量％が好ましく、０．１～２０質量％がより好ましく、０．５～１０質量％がさらに好ましい。タルクの量が少なすぎると、タルクによる耐湿性および密着性向上の効果が発揮されにくい傾向となり、タルクの量が多すぎると、透明性が悪化する傾向となる。

[0109] ＜その他の添加剤＞

本発明の樹脂組成物は、本発明の効果が発揮される範囲であれば、上述の成分とは異なるその他の添加剤をさらに含有していてもよい。このような添加剤としては、例えば、ゴム粒子、シリコーンパウダー、ナイロンパウダー、フッ素樹脂パウダー等の有機充填材；オルベン、ベントン等の増粘剤；シリコーン系、フッ素系、高分子系の消泡剤またはレベリング剤；トリアゾール化合物、チアゾール化合物、トリアジン化合物、ポルフィリン化合物等の密着性付与剤；等を挙げることができる。

[0110] ＜屈折率＞

本発明において、固形樹脂（例えば、固形エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂等）の屈折率および樹脂組成物の硬化物の屈折率は、いずれも、２５℃での波長５９４ｎｍの光の屈折率であり、プリズムカプラ法に基づく測定値である。詳しくは、プリズムカプラ法により、屈折率が分かっているプリズムと、それに接触した試料との界面における臨界角を測定することで、試料の屈折率を測定することができる。プリズムカプラ法の測定装置としては、例えば、メトリコン社製プリズムカプラー（モデル２０１０／Ｍ）を使用することができる。溶剤を含む溶液状の固形樹脂やフェノキシ樹脂等の屈折率を測定する場合は、ガラス支持体の上に均一な膜厚で塗工し、熱循環式オーブン等にて十分溶剤分を揮発させたものを測定に用いる。液状樹脂（例えば、液状エポキシ樹脂等）の屈折率は、２５℃での多波長アッベ屈折率計を使用した測定法に基づく測定値である。多波長アッベ屈折率計としては、例えば、アタゴ社製ＤＲ－Ｍ２を使用することができる。

[0111] ＜硬化物層の平行線透過率＞

本発明において、厚さが２０μｍである樹脂組成物の硬化物層のＤ６５光での平行線透過率は８０～１００％であることが好ましい。このような硬化物層は、目視において透明であると認識できる。

[0112] 本発明の樹脂組成物は、上記の好ましい条件を適宜採用することにより、容易に、平行線透過率に優れる樹脂組成物の硬化物（封止層）を形成することができる。厚さが２０μｍである樹脂組成物の硬化物層（封止層）のＤ６５光での平行線透過率は、８０～１００％であるのが好ましく、８５～１００％であるのがより好ましい。硬化物のＤ６５光での平行線透過率は、後述する実施例に記載するようにして、ガラス板の間に樹脂組成物の硬化物が挟まれた積層体を形成し、空気をリファレンスとすることによって算出される。なお、上述したＤ６５光での平行線透過率の値は、厚さが２０μｍである樹脂組成物の硬化物層の測定値であるが、硬化物層の厚さは、一般には３～２００μｍである。

[0113] ＜樹脂組成物の製造方法＞

硬化物の屈折率が１．４８～１．５４である本発明の樹脂組成物は、前記屈折率と同程度である屈折率を有する成分を使用すること、または、より低屈折率の樹脂と高屈折率の樹脂を配合して樹脂全体の屈折率を上記範囲に調整することによって製造することができる。そのような成分、および必要により有機溶剤等を、混練ローラーや回転ミキサーなどを用いて混合することで、本発明の樹脂組成物を製造することができる。

[0114] ＜用途＞

本発明の樹脂組成物および後述する封止用シートは、例えば、半導体、太陽電池、高輝度ＬＥＤ、ＬＣＤ、ＥＬ素子等の電子部品、好ましくは有機ＥＬ素子、太陽電池等の光学半導体の封止に使用される。本発明の樹脂組成物および封止用シートは、特に有機ＥＬ素子の封止に好適に使用される。具体的には、有機ＥＬ素子の発光部の上部および／または周囲（側部）に適用して有機ＥＬ素子の発光部を外部から保護するために、本発明の樹脂組成物および封止用シートを用いることができる。

[0115] 本発明の樹脂組成物を、封止対象物に直接塗布し、その塗膜を硬化することで封止層を形成することができる。また、支持体上に本発明の樹脂組成物の層を形成した封止用シートを作製し、封止用シートを封止対象物の必要箇所にラミネートして樹脂組成物層を被覆対象物に転写し、硬化することで封止層を形成するようにしてもよい。

[0116] ＜封止用シート＞

本発明の樹脂組成物の層が支持体上に形成されている封止用シートは、当業者に公知の方法、例えば、樹脂組成物が有機溶剤に溶解した樹脂組成物ワニスを調製し、該ワニスを支持体上に塗布し、さらに加熱、あるいは熱風吹きつけ等によって塗布された該ワニスを乾燥させて樹脂組成物層を形成させることによって製造することができる。

[0117] 封止用シートに使用する支持体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等のポリオレフィン、シクロオレフィンポリマー、ポリエ

チレンテレフタレート（以下「ＰＥＴ」と略称することがある。）、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリカーボネート、ポリイミドなどのプラスチックフィルムが挙げられる。プラスチックフィルムとしては、特にＰＥＴが好ましい。また支持体はアルミ箔、ステンレス箔、銅箔等の金属箔であってもよい。支持体はマット処理、コロナ処理の他、離型処理を施してあってもよい。離型処理としては、例えば、シリコーン樹脂系離型剤、アルキッド樹脂系離型剤、フッ素樹脂系離型剤等の離型剤による離型処理が挙げられる。

[0118] 封止用シートの防湿性を向上させるために、バリア層を有するプラスチックフィルムを支持体として用いてもよい。このバリア層としては、例えば、窒化ケイ素等の窒化物、酸化アルミニウム等の酸化物、ステンレス箔、アルミ箔の金属箔等が挙げられる。プラスチックフィルムとしては、上述のプラスチックフィルムが挙げられる。バリア層を有するプラスチックフィルムは市販品を使用してもよい。また、金属箔とプラスチックフィルムを複合ラミネートしたフィルムであってもよい。例えば、アルミ箔付きポリエチレンテレフタレートフィルムの市販品としては、東海東洋アルミ販売社製「ＰＥＴツキＡＬ１Ｎ３０」、福田金属社製「ＰＥＴツキＡＬ３０２５」、パナック社製「アルペット」等が挙げられる。

[0119] 支持体には、シリコーン樹脂系離型剤、アルキッド樹脂系離型剤、フッ素樹脂系離型剤等による離型処理、マット処理、コロナ処理等が施されていてもよい。本発明において支持体が離型層を有する場合、該離型層も支持体の一部とみなす。支持体の厚さは、特に限定されないが、取扱い性等の観点から、好ましくは２０～２００μｍ、より好ましくは２０～１２５μｍである。

[0120] 有機溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン（以下、「ＭＥＫ」とも略称する）、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸ブチル、セロソルブアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、カルビトールアセテート等の酢酸エステル類、セロソルブ、ブ

チルカルビトール等のカルビトール類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリドン等を挙げることができる。有機溶剤はいずれか１種を単独で使用してもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0121] 乾燥条件は特に制限はないが、通常５０～１００℃程度で３～１５分程度が好適である。

[0122] 乾燥後の樹脂組成物層の厚さは、通常３μｍ～２００μｍ、好ましくは５μｍ～１００μｍ、さらに好ましくは５μｍ～５０μｍの範囲である。

[0123] 樹脂組成物層は、保護フィルムで保護されていてもよい。保護フィルムで保護することにより、樹脂組成物層表面へのゴミ等の付着やキズを防止することができる。保護フィルムは、支持体と同様のプラスチックフィルムを用いるのが好ましい。また、保護フィルムもマット処理、コロナ処理の他、離型処理を施してあってもよい。保護フィルムの厚さは特に制限されないが、通常１～１５０μｍ、好ましくは１０～１００μｍの範囲である。

[0124] 封止用シートは、支持体に、防湿性を有し、かつ、透過率の高い支持体を使用すれば、封止用シートを封止対象物の必要箇所にラミネートし、そのまま、樹脂組成物層を硬化して封止層を形成することで、高い耐湿性を備えた封止構造を形成することができる。このような、防湿性を有し、かつ、透過率の高い支持体としては、表面に酸化ケイ素（シリカ）、窒化ケイ素、ＳｉＣＮ、アモルファスシリコン等の無機物を蒸着させたプラスチックフィルム等が挙げられる。プラスチックフィルムとしては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等のポリオレフィン、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリカーボネート、ポリイミド等が挙げられる。プラスチックフィルムとしては、特にＰＥＴが好ましい。市販されている防湿性を有するプラスチックフィルムの例としては、テックバリアＨＸ、ＡＸ、ＬＸ、Ｌシリーズ（三菱樹脂社製）やさらに防湿効果を高めたＸ－ＢＡＲＲＩＥＲ（三菱樹脂社製）等が挙げられる。支持体として、２層以上の複層構造を有するものを使用しても良い。

[0125] ＜有機ＥＬデバイス＞

本発明の樹脂組成物の硬化物で有機ＥＬ素子が封止された有機ＥＬデバイス等を製造する場合は、上記封止用シートを用いて封止を行うのが好適である。すなわち、封止用シートは、樹脂組成物層が保護フィルムで保護されている場合はこれを剥離した後、封止用シートをその樹脂組成物層が封止対象物（例えば、有機ＥＬ素子形成基板上の有機ＥＬ素子等）に直接接するようにラミネートする。ラミネートの方法はバッチ式であってもロールでの連続式であってもよい。ラミネート後、支持体を剥離し、後述の樹脂組成物層の熱硬化作業を行なう。封止用シートの支持体が防湿性を有する支持体である場合、封止用シートをラミネートした後、支持体を剥離せず、そのまま後述の樹脂組成物層の熱硬化作業を行なう。

[0126] 樹脂組成物層の硬化は通常熱硬化によって行われる。その手段としては、例えば、熱風循環式オーブン、赤外線ヒーター、ヒートガン、高周波誘導加熱装置、ヒートツールの圧着による加熱等が挙げられる。硬化した樹脂組成物層（封止層）を封止対象物に十分に満足できる接着強度で接着させる観点から、硬化温度は、５０℃以上が好ましく、５５℃以上がより好ましく、硬化時間は、１０分以上が好ましく、２０分以上がより好ましい。

実施例

[0127] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、以下の記載において、特に断りがない限り、透過率以外の濃度、吸水率等の単位である「％」、および配合量の単位である「部」は、それぞれ「質量％」および「質量部」を意味する。なお、ハイドロタルサイトとしては、全て市販されているハイドロタルサイトを使用した。

[0128] ＜合成例１＞イオン液体硬化剤の合成

イオン液体硬化剤であるＮ－アセチルグリシンテトラブチルホスホニウム塩を以下の手順にて合成した。４１．４％のテトラブチルホスホニウムハイドロキサイド水溶液（北興化学工業社製）２０．０ｇに対し、０℃にてＮ－

アセチルグリシン（東京化成工業社製）３．５４ｇを加え、１０分間攪拌した。撹拌後に、エバポレーターを用いて４０～５０ｍｍＨｇの圧力で、６０～８０℃にて２時間、９０℃にて５時間、反応溶液を濃縮した。得られた濃縮物を、室温にて酢酸エチル（純正化学社製）１４．２ｍｌに溶解して溶液を調製し、得られた溶液を、エバポレーターを用いて４０～５０ｍｍＨｇの圧力で、７０～９０℃にて３時間濃縮して、Ｎ－アセチルグリシンテトラブチルホスホニウム塩１１．７ｇ（純度：９６．９％）をオイル状化合物として得た。

[0129] ＜実施例１＞

液状水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ８０００」、エポキシ当量：約２０５）６０部と、市販のハイドロタルサイトＡ（半焼成ハイドロタルサイト、ＢＥＴ比表面積：１３ｍ^2／ｇ、平均粒子径：４００ｎｍ）４０部とを混練後、３本ロールミルにて分散を行い、混合物を得た。硬化促進剤（サンアプロ社製「Ｕ－ＣＡＴ３５１２Ｔ」）１．５部を、フェノキシ樹脂溶液（三菱化学社製「ＹＸ７２００Ｂ３５」、溶媒：ＭＥＫ、不揮発分：３５％）１１４．３部（樹脂４０部）に溶解させた混合物に、先に調製した混合物と、イオン液体硬化剤（Ｎ－アセチルグリシンテトラブチルホスホニウム塩）３部とを配合し、高速回転ミキサーで均一に分散して、樹脂組成物ワニスを得た。

[0130] 次いで、樹脂組成物ワニスを、支持体（シリコーン系離型剤で処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム、厚さ３８μｍ、以下「離型ＰＥＴフィルム」と略す）上に、乾燥後の樹脂組成物層の厚さが２０μｍとなるようにダイコーターにて均一に塗布し、８０℃で５分間乾燥した後、樹脂組成物層の表面に、保護フィルムとして離型ＰＥＴフィルムを載せ、封止用シートを得た。

[0131] ＜実施例２＞

ハイドロタルサイトＡの代わりに市販のハイドロタルサイトＢ（半焼成ハイドロタルサイト、ＢＥＴ比表面積：１５ｍ^2／ｇ、平均粒子径：４００ｎｍ

）を使用したこと以外は実施例１と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、封止用シートを得た。

[0132] ＜実施例３＞

フェノキシ樹脂溶液（１１４．３部）の代わりに固形水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ８０４０」、エポキシ当量：約１０００）の溶液（溶媒：ＭＥＫ、不揮発分：４０％）１００部（樹脂４０部）を使用したこと以外は実施例２と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、実施例１と同様にして封止用シートを得た。

[0133] ＜実施例４＞

硬化促進剤（サンアプロ社製「Ｕ－ＣＡＴ３５１２Ｔ」）１．５部の代わりにイミダゾール硬化剤（四国化成社製「１Ｂ２ＭＺ」）２部を使用したこと以外は実施例２と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、実施例１と同様にして封止用シートを得た。

[0134] ＜実施例５＞

液状水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ８０００」、エポキシ当量：約２０５）３０部と、酸無水物硬化剤（新日本理化社製「ＭＨ－７００」）３０部、市販のハイドロタルサイトＢ（ＢＥＴ比表面積：１３m^2／ｇ、平均粒子径：４００ｎｍ）４０部とを混練後、３本ロールミルにて分散を行い、混合物を得た。固形水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ８０４０」、エポキシ当量：約１０００）の溶液（溶媒：ＭＥＫ、不揮発分：４０％）１００部（樹脂４０部）中に、先に調製した３本ロールミルにより分散した混合物と、ＤＢＵ－オクチル酸塩硬化促進剤（サンアプロ社製「Ｕ－ＣＡＴ　ＳＡ１０２」）２部とを高速回転ミキサーで均一に分散して、樹脂組成物ワニスを得た。

得られた樹脂組成物ワニスを使用したこと以外は実施例１と同様にして、封止用シートを得た。

[0135] ＜実施例６＞

フェノキシ樹脂溶液（三菱化学社製「ＹＸ７２００Ｂ３５」、溶媒：ＭＥ

Ｋ、不揮発分：３５％）の使用量を５７．２部（樹脂２０部）とし、さらに固形水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ８０４０」）の溶液（溶媒：ＭＥＫ、不揮発分：４０％）５０部（樹脂２０部）を使用したこと以外は実施例２と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、実施例１と同様にして封止用シートを得た。

[0136] ＜実施例７＞

フェノキシ樹脂溶液（三菱化学社製「ＹＸ７２００Ｂ３５」、溶媒：ＭＥＫ、不揮発分：３５％）の使用量を８５．７部（樹脂３０部）とし、さらに液状ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂および液状ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂の混合物（新日鐵化学工業社製「ＺＸ－１０５９」、エポキシ当量：約１６５）１０部を使用したこと以外は実施例２と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、実施例１と同様にして封止用シートを得た。

[0137] ＜比較例１＞

液状水添ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂の代わりに液状ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂および液状ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂の混合物（新日鐵化学工業社製「ＺＸ－１０５９」）６０部を使用したこと以外は実施例２と同様にして樹脂組成物ワニスを製造し、実施例１と同様にして封止用シートを得た。

[0138] ＜比較例２＞

ハイドロタルサイトＡの代わりに市販のハイドロタルサイトＣ（焼成ハイドロタルサイト、平均粒子径：４００ｎｍ）４０部を使用したこと以外は実施例１と同様にして、樹脂組成物ワニスを製造し、封止用シートを得た。

[0139] ＜比較例３＞

ハイドロタルサイトＡの代わりに市販のハイドロタルサイトＤ（未焼成ハイドロタルサイト、平均粒子径：４００ｎｍ）４０部を使用したこと以外は実施例１と同様にして、樹脂組成物ワニスを製造し、封止用シートを得た。

[0140] ＜ハイドロタルサイトの吸水率＞

各ハイドロタルサイトを天秤にて１．５ｇ量りとり、初期質量を測定した

。大気圧下、６０℃、９０％ＲＨ（相対湿度）に設定した小型環境試験器（エスペック社製 ＳＨ－２２２）に２００時間静置して、吸湿後の質量を測定し、上記式（ｉ）を用いて飽和吸水率を求めた。結果を表１に示す。

[0141] ＜ハイドロタルサイトの熱重量減少率＞

日立ハイテクサイエンス社製ＴＧ／ＤＴＡ ＥＸＳＴＡＲ６３００を用いて、各ハイドロタルサイトの熱重量分析を行った。アルミニウム製のサンプルパンにハイドロタルサイトを１０ｍｇ秤量し、蓋をせずオープンの状態で、窒素流量２００ｍＬ／分の雰囲気下で、３０℃から５５０℃まで１０℃／分で昇温した。上記式（ｉｉ）を用いて、２８０℃および３８０℃における熱重量減少率を求めた。結果を表１に表す。

[0142] ＜粉末Ｘ線回折＞

粉末Ｘ線回折の測定は、粉末Ｘ線回折装置（ＰＡＮａｌｙｔｉｃａｌ社製，Ｅｍｐｙｒｅａｎ）により、対陰極ＣｕＫα（１．５４０５Å）、電圧：４５Ｖ、電流：４０ｍＡ、サンプリング幅：０．０２６０°、走査速度：０．０６５７°／ｓ、測定回折角範囲（２θ）：５．０１３１～７９．９７１１°の条件で行った。ピークサーチは、回折装置付属のソフトウエアのピークサーチ機能を利用し、「最小有意度：０．５０、最小ピークチップ：０．０１°、最大ピークチップ：１．００°、ピークベース幅：２．００°、方法：２次微分の最小値」の条件で行った。２θが８～１８°の範囲内で現れたスプリットした二つのピーク、または二つのピークの合成によりショルダーを有するピークを検出し、低角側に現れたピークまたはショルダーの回折強度（＝低角側回折強度）と、高角側に現れるピークまたはショルダーの回折強度（＝高角側回折強度）を測定し、相対強度比（＝低角側回折強度／高角側回折強度）を算出した。結果を表１に表す。

[0143]

[表1]

	種類	飽和吸水率（%）	熱重量減少率（%）		粉末X線回折
			280℃	380℃	
ハイドロタルサイトA	半焼成ハイドロタルサイト	11	6.7	18.7	相対強度比＝1.3
ハイドロタルサイトB	半焼成ハイドロタルサイト	17	3.6	14.4	相対強度比＝0.6
ハイドロタルサイトC	焼成ハイドロタルサイト	58	4.5	5.1	ピーク無し
ハイドロタルサイトD	未焼成ハイドロタルサイト	0	15.3	27.1	ショルダーの無い一つのピークのみ
ハイドロタルサイトE	半焼成ハイドロタルサイト	13	8.6	23.2	相対強度比＝0.066
ハイドロタルサイトF	半焼成ハイドロタルサイト	10	13.3	25.6	相対強度比＝0.46

[0144] 飽和吸水率、熱重量減少率および粉末Ｘ線回折の結果より、ハイドロタルサイトＡ、ハイドロタルサイトＢ、ハイドロタルサイトＥおよびハイドロタルサイトＦは「半焼成ハイドロタルサイト」であり、ハイドロタルサイトＣは「焼成ハイドロタルサイト」であり、ハイドロタルサイトＤは「未焼成ハイドロタルサイト」である。

[0145] ＜樹脂組成物の硬化物の屈折率＞

実施例および比較例で作製した封止用シートを長さ７０ｍｍおよび幅２５ｍｍにカットし、カットした封止用シートから保護フィルム（離型ＰＥＴフィルム）を剥離し、該封止用シートをガラス板（長さ７６ｍｍ、幅２６ｍｍおよび厚さ１．２ｍｍのマイクロスライドガラス、松浪ガラス工業社製白スライドグラスＳ１１１２　縁磨Ｎｏ．２）にバッチ式真空ラミネーター（ニチゴー・モートン社製、Ｖ－１６０）を用いてラミネートした。ラミネート条件は、温度８０℃、減圧時間３０秒の後、圧力０．３ＭＰａにて３０秒加圧であった。その後、封止用シートの支持体（離型ＰＥＴフィルム）を剥離し、熱循環式オーブンで１３０℃６０分間熱硬化し、樹脂組成物の硬化物層とガラスとの積層体である評価用サンプルを得た。

[0146] メトリコン社製プリズムカプラー（モデル２０１０／Ｍ）を用いて、波長

５９４ｎｍのレーザー光を用いて、屈折率測定を行った。空気圧作動式カップリングヘッドにより装置内のプリズムに、前記評価用サンプルの硬化物層の表面を接触させて、評価用サンプルを設置した。レーザーを照射しながらプリズムとサンプルの角度を変化させ、全反射して光検出器に導入されていたレーザー光が、モード角度と呼ばれる値にて、空気相からサンプル内部へ伝搬し、検出器に到達するレーザー光の光強度が最初に急激に低下して光伝搬モードに入る位置（ｄｉｐ）を確認し、これにより屈折率を決定した。結果を表２に示す。

[0147] ＜樹脂組成物の硬化物の平行線透過率＞

実施例および比較例で作製した封止用シートを長さ７０ｍｍおよび幅２５ｍｍにカットし、カットした封止用シートから保護フィルム（離型ＰＥＴフィルム）を剥離し、該封止用シートをガラス板（長さ７６ｍｍ、幅２６ｍｍおよび厚さ１．２ｍｍのマイクロスライドガラス、松浪ガラス工業社製白スライドグラスＳ１１１２　縁磨Ｎｏ．２）にバッチ式真空ラミネーター（ニチゴー・モートン社製、Ｖ－１６０）を用いてラミネートした。ラミネート条件は、温度８０℃、減圧時間３０秒の後、圧力０．３ＭＰａにて３０秒加圧であった。その後、封止用シートの支持体（ＰＥＴフィルム）を剥離し、露出した樹脂組成物層上にさらに上記と同じガラス板をラミネートして、積層体を作製した。得られた積層体を熱循環式オーブンで１３０℃６０分間加熱し、ガラス板の間に樹脂組成物の硬化物を有する積層体（評価用サンプル、硬化物の厚さ：２０μｍ）を得た。

[0148] スガ試験機社製ヘーズメーター　ＨＺ－Ｖ３（ハロゲンランプ）を用いて、空気をリファレンスとして、Ｄ６５光にて、評価用サンプルの平行線透過率Ｔｐ（％）を測定し、以下の基準で評価した。結果を表２に示す。

（平行線透過率の基準）

良好（○）：８５％以上

可（△）：８５％未満、８０％以上

不良（×）：８０％未満

[0149] ＜発光面積減少開始時間＞

支持体としてアルミ箔/ＰＥＴ複合フィルム「ＰＥＴツキＡＬ１Ｎ３０」（アルミ箔：３０μｍ、ＰＥＴ：２５μｍ、：東海東洋アルミ販売社製）を用いたこと以外は各実施例および比較例と同様にして、各実施例および比較例と同じ樹脂組成物層を有する封止用シート得た。

[0150] 無アルカリガラス５０ｍｍ×５０ｍｍ角を、煮沸したイソプロピールアルコールで５分間洗浄し、１５０℃において３０分以上乾燥した。当該ガラスを用い、端部からの距離を３ｍｍとしたマスクを使用し、カルシウム膜（純度９９．８％）を蒸着した（厚さ３００ｎｍ）。グローブボックス内で、カルシウム膜を蒸着した無アルカリガラスと、各実施例および比較例と同じ樹脂組成物層を有する封止用シートとを熱ラミネーター（フジプラ社製　ラミパッカーＤＡｉＳＹ　Ａ４（ＬＰＤ２３２５））で貼りあわせて、積層体を調製した。得られた積層体を温度１３０℃で６０分間加熱し、樹脂組成物層を硬化して、評価用サンプルを得た。

[0151] カルシウムが水と接触して酸化カルシウムになると、透明になる。そのため、評価用サンプルへの水分侵入は、評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの距離（ｍｍ）を測定することによって評価できる。そのため、カルシウム膜を含む評価用サンプルを、有機ＥＬ素子を含む有機ＥＬデバイスのモデルとして使用した。

[0152] まず、評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの距離をミツトヨ社製Ｍｅａｓｕｒｉｎｇ　Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ　ＭＦ－Ｕにより測定し、この値をＸ２とした。

[0153] 次いで、温度８５℃および湿度８５％ＲＨに設定した恒温恒湿槽に評価用サンプルを投入した。恒温恒湿槽への投入後の評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの封止距離Ｘ１（ｍｍ）が、恒温恒湿槽への投入前の評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの封止距離Ｘ２（ｍｍ）よりも０．１ｍｍ増加した時間で評価用サンプルを恒温恒湿槽から取り出し、その時間を減少開始時間ｔ（時間）とした。

[0154] 以下のフィックの拡散式：

$$X1 = K\sqrt{t}$$

（式中、Ｘ１は、恒温恒湿槽への投入後の評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの封止距離（ｍｍ）であり、ｔは、Ｘ１＝Ｘ２＋０．１となる減少開始時間（時間）であり、Ｘ２は恒温恒湿槽への投入前の評価用サンプルの端部からカルシウム膜までの封止距離（ｍｍ）である。）

に基づき、定数Ｋを算出した。

[0155] 得られたＫを用いて、Ｘ１が５ｍｍの値となる時間を、発光面積減少開始時間として算出し、下記基準で評価した。水分遮断性が高いほど水分の侵入速度を遅らせることができ、この発光面積減少開始時間は長くなる。結果を表２に示す。なお、表２に記載する単位の「ｈ」は「時間」を意味する。

（発光面積減少開始時間の基準）

良好（〇）：３００時間以上

可（△）：３００時間未満、２００時間以上

不良（×）：２００時間未満

[0156] 表２に、実施例および比較例で得られた硬化物の屈折率等の結果に加えて、使用した成分の種類および量を記載する。

[0157]

[表2]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例1	比較例2	比較例3
液状水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂 YX8000（部）	60	60	60	60	30	60	60	—	60	60
固形水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂 （YX8040）の溶液（部）	—	—	100 （樹脂40）	—	100 （樹脂40）	50 （樹脂20）	—	—	—	—
液状ビスフェノールA型エポキシ樹脂および 液状ビスフェノールF型エポキシ樹脂の混合物 ZX1059（部）	—	—	—	—	—	—	10	60	—	—
フェノキシ樹脂溶液 YX7200B35（部）	114.3 （樹脂40）	114.3 （樹脂40）	— （樹脂40）	114.3 （樹脂40）	—	57.2 （樹脂20）	85.7 （樹脂30）	114.3 （樹脂40）	114.3 （樹脂40）	114.3 （樹脂40）
ハイドロタルサイトA（半焼成ハイドロタルサイト）（部）	40	—	—	—	—	—	—	—	—	—
ハイドロタルサイトB（半焼成ハイドロタルサイト）（部）	—	40	40	40	40	40	40	40	—	—
ハイドロタルサイトC（焼成ハイドロタルサイト）（部）	—	—	—	—	—	—	—	—	40	—
ハイドロタルサイトD（未焼成ハイドロタルサイト）（部）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	40
イオン液体硬化剤（部） N-アセチルグリシントラブチルホスホニウム塩	3	3	3	3	—	3	3	3	3	3
硬化促進剤 U-CAT3512T（部）	1.5	1.5	1.5	—	—	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
DBU-オクチル酸塩硬化促進剤 U-CAT SA102（部）	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—
イミダゾール硬化剤 1B2MZ（部）	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—
酸無水物硬化剤 MH-700（部）	—	—	—	—	30	—	—	—	—	—
硬化物の屈折率	1.54	1.54	1.51	1.54	1.51	1.53	1.54	1.57	1.57	1.54
硬化物の平行線透過率	○(85%)	△(82%)	○(90%)	△(82%)	○(90%)	○(86%)	○(86%)	×(62%)	×(73%)	○(88%)
発光面積減少開始時間	○(363h)	○(407h)	△(265h)	○(360h)	△(203h)	○(380h)	○(308h)	○(340h)	○(330h)	×(186h)

産業上の利用可能性

[0158] 本発明の封止用の樹脂組成物によれば、水分遮断性および透明性の両方に優れる封止層を形成することができる。そのため、本発明の封止用の樹脂組成物および封止用シートは、有機ＥＬ素子等の水分に弱い素子の封止に好適に用いることができる。

[0159] 本願は、日本で出願された特願２０１６－１９６３９５号を基礎としており、その内容は本願明細書に全て包含される。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）半焼成ハイドロタルサイト、および（Ｃ）硬化剤を含む樹脂組成物であって、樹脂組成物の硬化物の屈折率が１．４８～１．５４である封止用の樹脂組成物。

[請求項2] （Ａ）熱硬化性樹脂が、屈折率が１．４８～１．５４である熱硬化性樹脂を含む請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項3] （Ａ）熱硬化性樹脂が、芳香環含有エポキシ樹脂を含む請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項4] （Ａ）熱硬化性樹脂が、屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂（ａ１）、および芳香環含有エポキシ樹脂（ａ２）を含む請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項5] 屈折率が１．４８～１．５４であるエポキシ樹脂（ａ１）が、水素添加エポキシ樹脂、フッ素含有エポキシ樹脂、鎖状脂肪族型エポキシ樹脂、環状脂肪族型エポキシ樹脂およびアルキルフェノール型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である請求項４に記載の樹脂組成物。

[請求項6] 芳香環含有エポキシ樹脂（ａ２）が、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、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂およびフッ素含有芳香族型エポキシ樹脂から選ばれる１種以上である請求項４または５に記載の樹脂組成物。

[請求項7] （Ａ）熱硬化性樹脂の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり１０～９５質量％である請求項１～６のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項8] （Ｂ）半焼成ハイドロタルサイトの量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり５～６０質量％である請求項１～７のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項9] （Ｃ）硬化剤が、イオン液体、酸無水物化合物、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、およびジメチルウレア化合物から選ばれる

１種以上である請求項１～８のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項10] （Ｃ）硬化剤の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．１～４０質量％である請求項１～９のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項11] さらに（Ｄ）硬化促進剤を含む請求項１～１０のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項12] （Ｄ）硬化促進剤が、イミダゾール化合物、３級アミン系化合物、ジメチルウレア化合物、およびアミンアダクト化合物から選ばれる１種以上である請求項１１に記載の樹脂組成物。

[請求項13] （Ｄ）硬化促進剤の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．０５～１０質量％である請求項１１または１２に記載の樹脂組成物。

[請求項14] さらに（Ｅ）熱可塑性樹脂を含む請求項１～１３のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項15] （Ｅ）熱可塑性樹脂が、フェノキシ樹脂である請求項１４に記載の樹脂組成物。

[請求項16] （Ｅ）熱可塑性樹脂の量が、樹脂組成物の不揮発分全体あたり０．１～６０質量％である請求項１４または１５に記載の樹脂組成物。

[請求項17] 有機ＥＬ素子の封止用である請求項１～１６のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項18] 厚さが２０μｍである樹脂組成物の硬化物層のＤ６５光での平行線透過率が８０～１００％である請求項１～１７のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項19] 請求項１～１８のいずれか一項に記載の樹脂組成物の層が支持体上に形成されている封止用シート。

[請求項20] 有機ＥＬ素子の封止用である請求項１９に記載の封止用シート。

[請求項21] 請求項１～１８のいずれか一項に記載の樹脂組成物の硬化物で有機ＥＬ素子が封止された有機ＥＬデバイス。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/035942

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C09K3/10(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C08L63/00(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)
Int.Cl. C09K3/10, C08K3/22, C08K5/00, C08L63/00, 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	1971-2017
Registered utility model specifications of Japan	1996-2017
Published registered utility model specifications of Japan	1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2015/068787 A1 (AJINOMOTO COMPANY, INCORPORATED) 14 May 2015, paragraphs [0001]-[0004], [0009], [0012]-[0030], [0036]-[0041], [0049]-[0067], claims, examples, etc. & US 2016/0251493 A1, paragraphs [0001]-[0003], [0012]-[0013], [0019]-[0033], [0040]-[0045], [0053]-[0069], claims, examples & EP 3067391 A1 & KR 10-2016-0084852 A & CN 105683283 A & TW 201522491 A	1-21

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

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
24 November 2017 (24.11.2017)	05 December 2017 (05.12.2017)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/035942

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-088222 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 27 March 2002, paragraphs [0003], [0011], etc. & US 2002/0058742 A1, paragraphs [0003], [0011]	1-21
Y	JP 2002-088223 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 27 March 2002, claims, paragraph [0023], etc. & US 2002/0058145 A1, paragraph [0036], claims	1-21
Y	JP 2016-139757 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 04 August 2016, paragraph [0081], etc. (Family: none)	1-21
A	JP 2009-029919 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 12 February 2009, (Family: none)	1-21
A	WO 2008/044579 A1 (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 17 April 2008, & US 2008/0085969 A1 & KR 10-2009-0074753 A & CN 101522793 A & TW 200831599 A	1-21
P, A	WO 2017/057708 A1 (AJINOMOTO COMPANY, INCORPORATED) 06 April 2017, (Family: none)	1-21
P, A	WO 2017 /135112 A1 (AJINOMOTO COMPANY, INCORPORATED) 10 August 2017, (Family: none)	1-21
P, A	WO 2016/175271 A1 (AJINOMOTO COMPANY, INCORPORATED) 03 November 2016, & TW 201702297 A	1-21

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０３５９４２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K3/10(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C08L63/00(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K3/10, C08K3/22, C08K5/00, C08L63/00, 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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７年

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

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	WO 2015/068787 A1 (味の素株式会社) 2015.05.14, ［０００１］－［０００４］、［０００９］、［００１２］－［００３０］、［００３６］－［００４１］、［００４９］－［００６７］、請求の範囲、実施例等 & US 2016/0251493 A1 [0001]-[0003],[0012]-[0013],[0019]-[0033],[0040]-[0045],[0053]-[0069],Claims,Examples & EP 3067391 A1 & KR 10-2016-0084852 A & CN 105683283 A & TW 201522491 A	1-21

☑　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	国際調査報告の発送日
２４．１１．２０１７	０５．１２．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｖ　３４０８
古妻　泰一
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８３

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 2002-088222 A (信越化学工業株式会社) 2002.03.27, 【０００３】、【００１１】等 & US 2002/0058742 A1 [0003],[0011]	1-21
Y	JP 2002-088223 A (信越化学工業株式会社) 2002.03.27, 【特許請求の範囲】、【００２３】等 & US 2002/0058145 A1 [0036],Claims	1-21
Y	JP 2016-139757 A (日立化成株式会社) 2016.08.04, 【００８１】等 (ファミリーなし)	1-21
A	JP 2009-029919 A (住友ベークライト株式会社) 2009.02.12, (ファミリーなし)	1-21
A	WO 2008/044579 A1 (住友ベークライト株式会社) 2008.04.17, & US 2008/0085969 A1 & KR 10-2009-0074753 A & CN 101522793 A & TW 200831599 A	1-21
P, A	WO 2017/057708 A1 (味の素株式会社) 2017.04.06, (ファミリーなし)	1-21
P, A	WO 2017/135112 A1 (味の素株式会社) 2017.08.10, (ファミリーなし)	1-21
P, A	WO 2016/175271 A1 (味の素株式会社) 2016.11.03, & TW 201702297 A	1-21