(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
2020年7月23日(23.07.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/149359 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 23/00 (2006.01)　*H05B 33/04* (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01)　*H01L 51/50* (2006.01)
C09K 3/10 (2006.01)　*G09F 9/30* (2006.01)
C08L 71/02 (2006.01)　*H01L 27/32* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2020/001253

(22) 国際出願日：　2020年1月16日(16.01.2020)

(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 2019-007081　2019年1月18日(18.01.2019)　JP

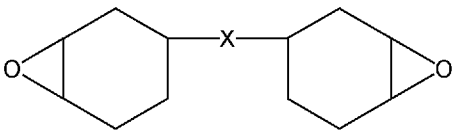
(71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (**SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満２丁目４番４号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 吉武 俊隆 (**YOSHITAKE, Toshitaka**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 末▲崎▼ 穣 (**SUEZAKI, Minoru**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 安部 真理子 (**ABE, Mariko**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).

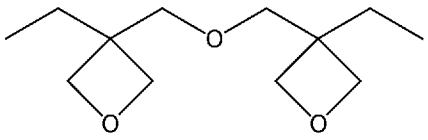
(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (**YASUTOMI & ASSOCIATES**); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原３丁目５番３６号 Osaka (JP).

(54) **Title:** SEALING AGENT SET FOR ORGANIC EL DISPLAY ELEMENT, AND ORGANIC EL DISPLAY ELEMENT

(54) 発明の名称： 有機ＥＬ表示素子用封止剤セット及び有機ＥＬ表示素子



（１）



（２）

(57) **Abstract:** The purpose of the present invention is to provide a sealing agent set for an organic EL display element with which it is possible to obtain an organic EL display element having excellent display performance. Another purpose of the present invention is to provide an organic EL display element having a cured product of the sealing agent set for the organic EL display element. The present invention is a sealing agent set that is for an organic EL display element and is obtained by combining a periphery sealing agent surrounding and sealing a peripheral edge part of an organic EL display element, and an in-plane sealing agent covering and sealing a laminate having an organic light-emitting material layer inside of the periphery sealing agent, wherein: the periphery sealing agent contains a polyolefin, a curing resin A, and a polymerization initiator and/or a thermal curing agent; the in-plane sealing agent contains a curing resin B, a cationic polymerization initiator, and a stabilizing agent; the curing resin B includes the epoxy compound represented by formula (1) and the oxetane compound represented by formula (2); the content of the epoxy compound represented by formula (1) is 10-90 parts by weight and the content of the oxetane compound represented by formula (2) is 10-90 parts by weight per 100 parts by weight of the curing resin B; and the content

WO 2020/149359 A1

［続葉有］

(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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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))

---

of the stabilizing agent is 0.001-5 parts by weight relative to 100 parts by weight of the curing resin B. In formula (1), X represents a C1-6 linear or branched hydrocarbon group that may be interrupted by -C(=O)O- or -C(=O)- or be directly connected, or a bond.

(57) 要約:本発明は、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを提供することを目的とする。また、本発明は、該有機ＥＬ表示素子用封止剤セットの硬化物を有する有機ＥＬ表示素子を提供することを目的とする。 本発明は、有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲んで封止する周辺封止剤と、該周辺封止剤の内側において有機発光材料層を有する積層体を被覆して封止する面内封止剤とを組み合わせてなる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットであって、前記周辺封止剤は、ポリオレフィンと、硬化性樹脂Ａと、重合開始剤及び／又は熱硬化剤とを含有し、前記面内封止剤は、硬化性樹脂Ｂと、カチオン重合開始剤と、安定剤とを含有し、前記硬化性樹脂Ｂは、下記式（１）で表されるエポキシ化合物と下記式（２）で表されるオキセタン化合物とを含み、前記硬化性樹脂Ｂ１００重量部中における、下記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、かつ、下記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、前記安定剤の含有量が、前記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して０．００１重量部以上５重量部以下である有機ＥＬ表示素子用封止剤セットである。 式（１）中、Ｘは、－Ｃ（＝Ｏ）Ｏ－若しくは－Ｃ（＝Ｏ）－で中断又は直結されていてもよい炭素数１～６の直鎖状又は分岐鎖状の炭化水素基、或いは、結合手を表す。

明　細　書

発明の名称 ：

有機ＥＬ表示素子用封止剤セット及び有機ＥＬ表示素子

技術分野

[0001] 本発明は、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットに関する。また、本発明は、該有機ＥＬ表示素子用封止剤セットの硬化物を有する有機ＥＬ表示素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス表示素子（有機ＥＬ表示素子）は、互いに対向する一対の電極間に有機発光材料層が挟持された薄膜構造体を有する。この有機発光材料層に一方の電極から電子が注入されるとともに他方の電極から正孔が注入されることにより有機発光材料層内で電子と正孔とが結合して自己発光を行う。バックライトを必要とする液晶表示素子等と比較して視認性がよく、より薄型化が可能であり、かつ、直流低電圧駆動が可能であるという利点を有する。

[0003] ところが、このような有機ＥＬ表示素子は、有機発光材料層や電極が外気に曝されるとその発光特性が急激に劣化し寿命が短くなるという問題がある。従って、有機ＥＬ表示素子の安定性及び耐久性を高めることを目的として、有機ＥＬ表示素子においては、有機発光材料層や電極を大気中の水分や酸素から遮断する封止技術が不可欠となっている。

[0004] 特許文献１には、有機発光材料層を有する積層体を被覆して封止する有機充填層と、該有機充填層の側面を覆う吸湿シール層（封止壁）とを有する構成により、有機ＥＬ表示素子を封止する方法が開示されている。通常、有機ＥＬ表示素子用封止剤として、上記有機充填層には面内封止剤が用いられ、上記封止壁には面内封止剤とは構成成分の異なる周辺封止剤が用いられている。しかしながら、このような面内封止剤と周辺封止剤とを用いて有機ＥＬ表示素子を封止した場合、周辺封止剤として透湿防止性に優れるものを用い、

面内封止剤として塗布性や低アウトガス性に優れるものを用いても、それらの性能が充分に発揮されずに有機ＥＬ表示素子に表示不良が生じることがあるという問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２０１４－６７５９８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

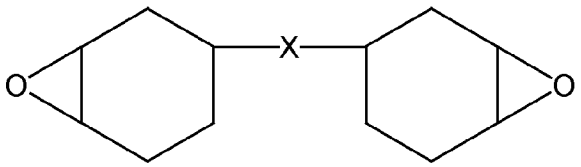
[0006] 本発明は、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを提供することを目的とする。また、本発明は、該有機ＥＬ表示素子用封止剤セットの硬化物を有する有機ＥＬ表示素子を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲んで封止する周辺封止剤と、該周辺封止剤の内側において有機発光材料層を有する積層体を被覆して封止する面内封止剤とを組み合わせてなる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットであって、上記周辺封止剤は、ポリオレフィンと、硬化性樹脂Ａと、重合開始剤及び／又は熱硬化剤とを含有し、上記面内封止剤は、硬化性樹脂Ｂと、カチオン重合開始剤と、安定剤とを含有し、上記硬化性樹脂Ｂは、下記式（１）で表されるエポキシ化合物と下記式（２）で表されるオキセタン化合物とを含み、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部中における、下記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、かつ、下記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、上記安定剤の含有量が、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して０．００１重量部以上５重量部以下である有機ＥＬ表示素子用封止剤セットである。

[0008]

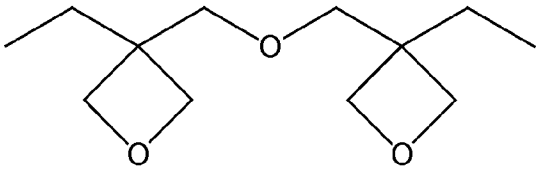
[化1]



（１）

[0009] 式（１）中、Ｘは、－Ｃ（＝Ｏ）Ｏ－若しくは－Ｃ（＝Ｏ）－で中断又は直結されていてもよい炭素数１～６の直鎖状又は分岐鎖状の炭化水素基、或いは、結合手を表す。

[0010] [化2]



（２）

[0011] 以下に本発明を詳述する。

本発明者らは、特定の成分で構成される周辺封止剤と、特定の成分で構成される面内封止剤とを組み合わせた有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを用いることにより、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0012] 本発明の有機ＥＬ表示素子用封止剤セットは、有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲んで封止する周辺封止剤と、該周辺封止剤の内側において有機発光材料層を有する積層体を被覆して封止する面内封止剤とを組み合わせてなる。

[0013] （周辺封止剤）

上記周辺封止剤は、ポリオレフィンを含有する。

上記ポリオレフィンを含有することにより、上記周辺封止剤は、硬化物が透湿防止性に優れるものとなり、かつ、後述する面内封止剤と相溶し難いものとなる。

[0014] 硬化物の透湿防止性を更に向上させる観点から、上記ポリオレフィンとしては、ポリイソブチレン、ポリブテン、及び、ポリブタジエンからなる群より選択される少なくとも１種を含むことが好ましく、ポリイソブチレンを含むことがより好ましい。

上記ポリオレフィンは、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0015] 上記ポリオレフィンの重量平均分子量の好ましい下限は１万、好ましい上限は４０万である。上記ポリオレフィンの重量平均分子量がこの範囲であることにより、得られる周辺封止剤が塗布性、接着性、及び、硬化物の透湿防止性により優れるものとなる。

なお、本明細書において上記「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）で溶媒としてテトラヒドロフランを用いて測定を行い、ポリスチレン換算により求められる値である。ＧＰＣによってポリスチレン換算による重量平均分子量を測定する際に用いるカラムとしては、例えば、Ｓｈｏｄｅｘ　ＬＦ－８０４（昭和電工社製）等が挙げられる。

[0016] 上記ポリオレフィンと後述する硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部中における上記ポリオレフィンの含有量の好ましい下限は１０重量部、好ましい上限は８０重量部である。上記ポリオレフィンの含有量が１０重量部以上であることにより、得られる周辺封止剤が硬化物の透湿防止性により優れるものとなる。上記ポリオレフィンの含有量が８０重量部以下であることにより、得られる周辺封止剤が塗布性や接着性により優れるものとなる。上記ポリオレフィンの含有量のより好ましい下限は２０重量部、より好ましい上限は６０重量部である。

[0017] 上記周辺封止剤は、硬化性樹脂Ａを含有する。

硬化性の観点から、上記硬化性樹脂Ａとしては、エポキシ化合物、オキセタン化合物、（メタ）アクリル化合物、及び、ウレタン化合物からなる群より選択される少なくとも１種を含むことが好ましく、エポキシ化合物及び／又は（メタ）アクリル化合物を含むことがより好ましい。

なお、本明細書において、上記「（メタ）アクリル」は、アクリル又はメタクリルを意味し、上記「（メタ）アクリル化合物」は、（メタ）アクリロイル基を有する化合物を意味し、上記「（メタ）アクリロイル」は、アクリロイル又はメタクリロイルを意味する。

[0018] 上記エポキシ化合物としては、例えば、グリシジルエーテル化合物、脂環式エポキシ化合物等が挙げられる。

上記グリシジルエーテル化合物としては、例えば、ジエチレングリコールジグリシジルエーテル等が挙げられる。

上記脂環式エポキシ化合物としては、例えば、３，４，３’，４’－ジエポキシビシクロヘキシル、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、２，２－ビス（ヒドロキシメチル）－１－ブタノールの１，２－エポキシ－４－（２－オキシラニル）シクロヘキサン付加物等が挙げられる。

なかでも、後述する面内封止剤と相溶し難いものとする観点から、ジエチレングリコールジグリシジルエーテルが好ましい。

[0019] 上記オキセタン化合物としては、例えば、１，４－ビス｛［（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシ］メチル｝ベンゼン、ジ［２－（３－オキセタニル）ブチル］エーテル、３－エチル－３－ヒドロキシメチルオキセタン等が挙げられる。

[0020] 上記（メタ）アクリル化合物としては、後述する面内封止剤と相溶し難いものとする観点から、（メタ）アクリル酸エステル化合物が好適に用いられる。

上記（メタ）アクリル酸エステル化合物としては、例えば、イソボルニル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリル酸アダマンチル、（メタ）アクリル酸メチルシクロヘキシル、（メタ）アクリル酸ノルボルニルメチル、（メタ）アクリル酸ジシクロペンタニル、（メタ）アクリル酸ジシクロペンテニル、（メタ）アクリル酸ジシクロペンテニルオキシエチル、（メタ）アクリル酸シクロデシル、（メタ）アクリル酸４－ｔ－ブチルシクロヘキシル、（メタ）アクリル酸トリメチルシクロヘキシル等が挙げられる。

なお、本明細書において、上記「（メタ）アクリレート」は、アクリレート又はメタクリレートを意味する。

[0021] 上記ウレタン化合物としては、例えば、イソシアネート化合物と任意のポリ

オール化合物の反応物等が挙げられる。

上記イソシアネート化合物としては、例えば、トルエンジイソシアネート化合物、ジフェニルメタンジイソシアネート化合物等が挙げられる。

上記トルエンジイソシアネート化合物としては、例えば、２，４－トリレンジイソシアネート（２，４－ＴＤＩ）、２，６－トリレンジイソシアネート、又は、これらの混合物等が挙げられる。

上記ジフェニルメタンジイソシアネート化合物としては、例えば、４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート（４，４’－ＭＤＩ）、２，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート（２，４’－ＭＤＩ）、又は、これらの混合物等が挙げられる。

[0022] 上記周辺封止剤は、接着性を更に向上させること等を目的として、粘着付与樹脂を含有することが好ましい。

上記粘着付与樹脂としては、例えば、テルペン樹脂、変性テルペン樹脂、クマロン樹脂、インデン樹脂、石油樹脂等が挙げられる。

上記変性テルペン樹脂としては、例えば、水素添加テルペン樹脂、テルペンフェノール共重合樹脂、芳香族変性テルペン樹脂等が挙げられる。

上記石油樹脂としては、例えば、脂肪族系石油樹脂、水添脂環式石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂、脂環族系石油樹脂、ジシクロペンタジエン系石油樹脂及びその水素化物等が挙げられる。

なかでも、上記粘着付与樹脂としては、樹脂組成物の接着性、耐透湿性、相溶性等の観点から、テルペン樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、テルペンフェノール共重合樹脂、水添脂環式石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂、脂環族系石油樹脂が好ましく、脂環族系石油樹脂がより好ましく、脂環族飽和炭化水素樹脂、脂環族不飽和炭化水素樹脂が更に好ましく、シクロヘキシル環含有飽和炭化水素樹脂、ジシクロペンタジエン変性炭化水素樹脂が特に好ましい。

これらの粘着付与樹脂は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0023] 上記粘着付与樹脂の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．０１重量部、好ましい上限が１００重量部である。上記粘着付与樹脂の含有量がこの範囲であることにより、透湿防止性を維持しつつ、接着性を向上させる効果をより発揮することができる。上記粘着付与樹脂の含有量のより好ましい下限は０．２重量部、より好ましい上限は２０重量部である。

[0024] 上記周辺封止剤は、重合開始剤及び／又は熱硬化剤を含有する。

上記周辺封止剤は、なかでも、ラジカル重合開始剤、カチオン重合開始剤、及び、熱硬化剤からなる群より選択される少なくとも１種を含有することが好ましい。

[0025] 上記ラジカル重合開始剤としては、光ラジカル重合開始剤や熱ラジカル重合開始剤が挙げられる。

[0026] 上記光ラジカル重合開始剤としては、例えば、ベンゾフェノン化合物、アセトフェノン化合物、アシルフォスフィンオキサイド化合物、チタノセン化合物、オキシムエステル化合物、ベンゾインエーテル化合物、チオキサントン化合物等が挙げられる。

上記光ラジカル重合開始剤としては、具体的には例えば、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、２－ベンジル－２－ジメチルアミノ－１－（４－モルフォリノフェニル）ブタノン、１，２－（ジメチルアミノ）－２－（（４－メチルフェニル）メチル）－１－（４－（４－モルホリニル）フェニル）－１－ブタノン、２，２－ジメトキシ－２－フェニルアセトフェノン、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、２－メチル－１－（４－メチルチオフェニル）－２－モルフォリノプロパン－１－オン、１－（４－（２－ヒドロキシエトキシ）－フェニル）－２－ヒドロキシ－２－メチル－１－プロパン－１－オン、１－（４－（フェニルチオ）フェニル）－１，２－オクタンジオン２－（Ｏ－ベンゾイルオキシム）、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、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソ

プロピルエーテル等が挙げられる。

[0027] 上記熱ラジカル重合開始剤としては、例えば、アゾ化合物、有機過酸化物等が挙げられる。

上記アゾ化合物としては、例えば、２，２’－アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）、アゾビスイソブチロニトリル等が挙げられる。

上記有機過酸化物としては、例えば、過酸化ベンゾイル、ケトンパーオキサイド、パーオキシケタール、ハイドロパーオキサイド、ジアルキルパーオキサイド、パーオキシエステル、ジアシルパーオキサイド、パーオキシジカーボネート等が挙げられる。

[0028] 上記熱ラジカル重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、ＶＰＥ－０２０１、ＶＰＥ－０４０１、ＶＰＥ－０６０１、ＶＰＳ－０５０１、ＶＰＳ－１００１、Ｖ－５０１（いずれも富士フイルム和光純薬社製）等が挙げられる。

[0029] 上記カチオン重合開始剤としては、光カチオン重合開始剤や熱カチオン重合開始剤が挙げられる。

[0030] 上記光カチオン重合開始剤は、光照射によりプロトン酸又はルイス酸を発生するものであれば特に限定されず、イオン性光酸発生型であってもよいし、非イオン性光酸発生型であってもよい。

[0031] 上記イオン性光酸発生型の光カチオン重合開始剤のアニオン部分としては、例えば、BF_4^-、PF_6^-、SbF_6^-、又は、$(BX_4)^-$（但し、Ｘは、少なくとも２つ以上のフッ素又はトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基を表す）等が挙げられる。

上記イオン性光酸発生型の光カチオン重合開始剤としては、例えば、上記アニオン部分を有する、芳香族スルホニウム塩、芳香族ヨードニウム塩、芳香族ジアゾニウム塩、芳香族アンモニウム塩、（２，４－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ塩等が挙げられる。

[0032] 上記芳香族スルホニウム塩としては、例えば、ビス（４－（ジフェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビスヘキサフルオロホスフェート、ビス（４

－（ジフェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビスヘキサフルオロアンチモネート、ビス（４－（ジフェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビステトラフルオロボレート、ビス（４－（ジフェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジフェニル－４－（フェニルチオ）フェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニル－４－（フェニルチオ）フェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニル－４－（フェニルチオ）フェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、ジフェニル－４－（フェニルチオ）フェニルスルホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、トリフェニルスルホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリアリールスルホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ビス（４－（ジ（４－（２－ヒドロキシエトキシ））フェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビスヘキサフルオロホスフェート、ビス（４－（ジ（４－（２－ヒドロキシエトキシ））フェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビスヘキサフルオロアンチモネート、ビス（４－（ジ（４－（２－ヒドロキシエトキシ））フェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドビステトラフルオロボレート、ビス（４－（ジ（４－（２－ヒドロキシエトキシ））フェニルスルホニオ）フェニル）スルフィドテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリス（４－（４－アセチルフェニル）チオフェニル）スルホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

[0033] 上記芳香族ヨードニウム塩としては、例えば、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニルヨードニウムテトラフルオロボレート、ジフェニルヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ビス（ドデシルフェ

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

[0034] 上記芳香族ジアゾニウム塩としては、例えば、フェニルジアゾニウムヘキサフルオロホスフェート、フェニルジアゾニウムヘキサフルオロアンチモネート、フェニルジアゾニウムテトラフルオロボレート、フェニルジアゾニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

[0035] 上記芳香族アンモニウム塩としては、例えば、１－ベンジル－２－シアノピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、１－ベンジル－２－シアノピリジニウムヘキサフルオロアンチモネート、１－ベンジル－２－シアノピリジニウムテトラフルオロボレート、１－ベンジル－２－シアノピリジニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、１－（ナフチルメチル）－２－シアノピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、１－（ナフチルメチル）－２－シアノピリジニウムヘキサフルオロアンチモネート、１－（ナフチルメチル）－２－シアノピリジニウムテトラフルオロボレート、１－（ナフチルメチル）－２－シアノピリジニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

[0036] 上記（２，４－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ塩としては、例えば、（２，４－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ（ＩＩ）ヘキサフルオロホスフェート、（２，４－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ（ＩＩ）ヘキサフルオロアンチモネート、（２，４

－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ（ＩＩ）テトラフルオロボレート、（２，４－シクロペンタジエン－１－イル）（（１－メチルエチル）ベンゼン）－Ｆｅ（ＩＩ）テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

[0037] 上記非イオン性光酸発生型の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ニトロベンジルエステル、スルホン酸誘導体、リン酸エステル、フェノールスルホン酸エステル、ジアゾナフトキノン、Ｎ－ヒドロキシイミドスルホネート等が挙げられる。

[0038] 上記光カチオン重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、みどり化学社製の光カチオン重合開始剤、ユニオンカーバイド社製の光カチオン重合開始剤ＤＥＫＡ社製の光カチオン重合開始剤、３Ｍ社製の光カチオン重合開始剤、ＢＡＳＦ社製の光カチオン重合開始剤、ローディア社製の光カチオン重合開始剤等が挙げられる。

上記みどり化学社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＤＴＳ－２００等が挙げられる。

上記ユニオンカーバイド社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＵＶＩ６９９０、ＵＶＩ６９７４等が挙げられる。

上記ＡＤＥＫＡ社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＳＰ－１５０、ＳＰ－１７０等が挙げられる。

上記３Ｍ社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＦＣ－５０８、ＦＣ－５１２等が挙げられる。

上記ＢＡＳＦ社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＩＲＧＡＣＵＲＥ２６１、ＩＲＧＡＣＵＲＥ２９０等が挙げられる。

上記ローディア社製の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ＰＩ２０７４等が挙げられる。

[0039] 上記熱カチオン重合開始剤としては、アニオン部分がBF_4^-、PF_6^-、SbF_6^-、又は、$(BX_4)^-$（但し、Ｘは、少なくとも２つ以上のフッ素又はトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基を表す）で構成される、スルホ

ニウム塩、ホスホニウム塩、アンモニウム塩等が挙げられる。なかでも、スルホニウム塩、アンモニウム塩が好ましい。

[0040] 上記スルホニウム塩としては、トリフェニルスルホニウムテトラフルオロボレート、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等が挙げられる。

[0041] 上記ホスホニウム塩としては、エチルトリフェニルホスホニウムヘキサフルオロアンチモネート、テトラブチルホスホニウムヘキサフルオロアンチモネート等が挙げられる。

[0042] 上記アンモニウム塩としては、例えば、ジメチルフェニル（４－メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロホスフェート、ジメチルフェニル（４－メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジメチルフェニル（４－メトキシベンジル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジメチルフェニル（４－メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロホスフェート、ジメチルフェニル（４－メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジメチルフェニル（４－メチルベンジル）アンモニウムヘキサフルオロテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、メチルフェニルジベンジルアンモニウムヘキサフルオロホスフェート、メチルフェニルジベンジルアンモニウムヘキサフルオロアンチモネート、メチルフェニルジベンジルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、フェニルトリベンジルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジメチルフェニル（３，４－ジメチルベンジル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、Ｎ，Ｎ－ジメチル－Ｎ－ベンジルアニリニウムヘキサフルオロアンチモネート、Ｎ，Ｎ－ジエチル－Ｎ－ベンジルアニリニウムテトラフルオロボレート、Ｎ，Ｎ－ジメチル－Ｎ－ベンジルピリジニウムヘキサフルオロアンチモネート、Ｎ，Ｎ－ジエチル－Ｎ－ベンジルピリジニウムトリフルオロメタンスルホン酸等が挙げられる。

[0043] 上記熱カチオン重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、三

新化学工業社製の熱カチオン重合開始剤、Ｋｉｎｇ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製の熱カチオン重合開始剤等が挙げられる。

上記三新化学工業社製の熱カチオン重合開始剤としては、例えば、サンエイドＳＩ－６０、サンエイドＳＩ－８０、サンエイドＳＩ－Ｂ３、サンエイドＳＩ－Ｂ３Ａ、サンエイドＳＩ－Ｂ４等が挙げられる。

上記Ｋｉｎｇ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製の熱カチオン重合開始剤としては、例えば、ＣＸＣ－１６１２、ＣＸＣ－１８２１等が挙げられる。

[0044] 上記重合開始剤の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．０５重量部、好ましい上限が１０重量部である。上記重合開始剤の含有量が０．０５重量部以上であることにより、得られる周辺封止剤が硬化性により優れるものとなる。上記重合開始剤の含有量が１０重量部以下であることにより、得られる周辺封止剤の硬化反応が速くなり過ぎず、作業性により優れるものとなり、硬化物をより均一なものとすることができる。上記重合開始剤の含有量のより好ましい下限は１重量部、より好ましい上限は３重量部である。

[0045] 上記熱硬化剤としては、例えば、ヒドラジド化合物、イミダゾール誘導体、酸無水物、ジシアンジアミド、グアニジン誘導体、変性脂肪族ポリアミン、各種アミンとエポキシ樹脂との付加生成物等が挙げられる。

[0046] 上記ヒドラジド化合物としては、例えば、１，３－ビス（ヒドラジノカルボエチル）－５－イソプロピルヒダントイン、セバシン酸ジヒドラジド、イソフタル酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、マロン酸ジヒドラジド等が挙げられる。

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

２－フェニル－４，５－ジヒドロキシメチルイミダゾール等が挙げられる。

上記酸無水物としては、例えば、テトラヒドロ無水フタル酸、エチレングリコールビス（アンヒドロトリメリテート）等が挙げられる。

これらの熱硬化剤は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0047] 上記熱硬化剤のうち市販されているものとしては、例えば、ＳＤＨ（日本ファインケム社製）、ＡＤＨ（大塚化学社製）、アミキュアＶＤＨ、アミキュアＶＤＨ－Ｊ、アミキュアＵＤＨ（いずれも味の素ファインテクノ社製）等が挙げられる。

[0048] 上記熱硬化剤の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．０１重量部、好ましい上限が１０重量部である。上記熱硬化剤の含有量が０．０１重量部以上であることにより、得られる周辺封止剤が熱硬化性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量が１０重量部以下であることにより、得られる周辺封止剤が保存安定性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量のより好ましい下限は０．５重量部、より好ましい上限は５重量部、更に好ましい下限は１重量部、更に好ましい上限は３重量部である。

[0049] 上記周辺封止剤は、吸水性フィラーを含有することが好ましい。上記吸水性フィラーを含有することにより、上記周辺封止剤は、硬化物の透湿防止性により優れるものとなる。

[0050] 上記吸水性フィラーとしては、例えば、アルカリ土類金属の酸化物、酸化マグネシウム、モレキュラーシーブ等が挙げられる。

上記アルカリ土類金属の酸化物としては、例えば、酸化カルシウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム等が挙げられる。

なかでも、吸水性の観点から、アルカリ土類金属の酸化物が好ましく、酸化カルシウムがより好ましい。

これらの吸水性フィラーは、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0051] 上記吸水性フィラーの含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が１０重量部、好ましい上限が５００重量部である。上記吸水性フィラーの含有量がこの範囲であることにより、得られる周辺封止剤がパネル剥がれを抑制しつつ、硬化物がより優れた透湿防止性を有するものとなる。上記吸水性フィラーの含有量のより好ましい下限は２０重量部、より好ましい上限は１５０重量部である。

[0052] 上記周辺封止剤は、接着性を向上させること等を目的として、本発明の目的を阻害しない範囲において、上記吸水性フィラーに加えて、その他のフィラーを含有してもよい。

上記その他のフィラーとしては、無機フィラーや有機フィラーを用いることができる。

上記無機フィラーとしては、例えば、シリカ、タルク、アルミナ等が挙げられる。

上記有機フィラーとしては、例えば、ポリエステル微粒子、ポリウレタン微粒子、ビニル重合体微粒子、アクリル重合体微粒子等が挙げられる。なかでも、タルクが好ましい。

これらのその他のフィラーは、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0053] 上記周辺封止剤は、増感剤を含有してもよい。上記増感剤は、上記重合開始剤の重合開始効率をより向上させて、上記周辺封止剤の硬化反応をより促進させる役割を有する。

[0054] 上記増感剤としては、例えば、アントラセン系化合物、チオキサントン系化合物、２，２－ジメトキシ－１，２－ジフェニルエタン－１－オン、ベンゾフェノン、２，４－ジクロロベンゾフェノン、ｏ－ベンゾイル安息香酸メチル、４，４’－ビス（ジメチルアミノ）ベンゾフェノン、４－ベンゾイル－４’－メチルジフェニルサルファイド等が挙げられる。

上記アントラセン系化合物としては、例えば、９，１０－ジブトキシアントラセン等が挙げられる。

上記チオキサントン系化合物としては、例えば、２，４－ジエチルチオキサントン等が挙げられる。

これらの増感剤は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0055] 上記増感剤の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．０５重量部、好ましい上限が３重量部である。上記増感剤の含有量が０．０５重量部以上であることにより、増感効果がより発揮される。上記増感剤の含有量が３重量部以下であることにより、吸収が大きくなり過ぎずに深部まで光を伝えることができる。上記増感剤の含有量のより好ましい下限は０．１重量部、より好ましい上限は１重量部である。

[0056] 上記周辺封止剤は、安定剤を含有してもよい。上記安定剤を含有することにより、上記周辺封止剤は、より保存安定性に優れるものとなる。

[0057] 上記安定剤としては、例えば、芳香族アミン化合物、４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－１－オキシル等が挙げられる。

上記芳香族アミン化合物としては、例えば、ベンジルアミン、アミノフェノール型エポキシ樹脂等が挙げられる。

なかでも、芳香族系アミン化合物が好ましく、ベンジルアミンがより好ましい。

これらの安定剤は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0058] 上記安定剤の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．００１重量部、好ましい上限が２重量部である。上記安定剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる周辺封止剤が優れた硬化性を維持したまま保存安定性により優れるものとなる。上記安定剤の含有量のより好ましい下限は０．００５重量部、より好ましい上限は１重量部である。

[0059] 上記周辺封止剤は、シランカップリング剤を含有してもよい。上記シランカ

ップリング剤は、上記周辺封止剤と基板等との接着性を向上させる役割を有する。

[0060] 上記シランカップリング剤としては、例えば、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

これらのシランカップリング剤は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0061] 上記シランカップリング剤の含有量は、上記ポリオレフィンと上記硬化性樹脂Ａとの合計１００重量部に対して、好ましい下限が０．１重量部、好ましい上限が１０重量部である。上記シランカップリング剤の含有量がこの範囲であることにより、余剰のシランカップリング剤のブリードアウトを防止しつつ、得られる周辺封止剤の接着性を向上させる効果により優れるものとなる。上記シランカップリング剤の含有量のより好ましい下限は０．５重量部、より好ましい上限は５重量部である。

[0062] 上記周辺封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲において、表面改質剤を含有してもよい。上記表面改質剤を含有することにより、上記周辺封止剤の塗膜の平坦性を向上させることができる。

上記表面改質剤としては、例えば、界面活性剤やレベリング剤等が挙げられる。

[0063] 上記表面改質剤としては、例えば、シリコーン系、アクリル系、フッ素系等のものが挙げられる。

上記表面改質剤のうち市販されているものとしては、例えば、ビックケミー・ジャパン社製の表面改質剤、楠本化成社製の表面改質剤、ＡＧＣセイミケミカル社製の表面改質剤等が挙げられる。

上記ビックケミー・ジャパン社製の表面改質剤としては、例えば、ＢＹＫ－３００、ＢＹＫ－３０２、ＢＹＫ－３３１等が挙げられる。

上記楠本化成社製の表面改質剤としては、例えば、ＵＶＸ－２７２等が挙げ

られる。

上記ＡＧＣセイミケミカル社製の表面改質剤としては、例えば、サーフロンＳ－６１１等が挙げられる。

[0064] 上記周辺封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲で、周辺封止剤中に発生した酸と反応する化合物及び／又はイオン交換樹脂を含有してもよい。

[0065] 上記発生した酸と反応する化合物としては、酸と中和する物質、例えば、アルカリ金属の炭酸塩若しくは炭酸水素塩、又は、アルカリ土類金属の炭酸塩若しくは炭酸水素塩等が挙げられる。具体的には例えば、炭酸カルシウム、炭酸水素カルシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等が用いられる。

[0066] 上記イオン交換樹脂としては、陽イオン交換型、陰イオン交換型、両イオン交換型のいずれも使用することができるが、特に塩化物イオンを吸着することのできる陽イオン交換型又は両イオン交換型が好適である。

[0067] 上記周辺封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲で、必要に応じて、硬化遅延剤、補強剤、軟化剤、可塑剤、粘度調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤等の公知の各種添加剤を含有してもよい。

[0068] 上記周辺封止剤は、アウトガスの発生をより抑制する観点から、溶剤を含有しないことが好ましい。上記周辺封止剤は、溶剤を含有しなくても、塗布性に優れるものとすることができる。

なお、本明細書において「溶剤を含有しない」とは、溶剤の含有量が１００００ｐｐｍ未満であることを意味する。

[0069] 上記周辺封止剤を製造する方法としては、例えば、混合機を用いて、ポリオレフィンと、硬化性樹脂Ａと、重合開始剤及び／又は熱硬化剤と、吸水性フィラーや必要に応じて添加するシランカップリング剤等の添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

上記混合機としては、例えば、ホモディスパー、ホモミキサー、万能ミキサー、プラネタリーミキサー、ニーダー、３本ロール等が挙げられる。

[0070] （面内封止剤）

上記面内封止剤は、硬化性樹脂Ｂを含有する。

上記硬化性樹脂Ｂは、上記式（１）で表されるエポキシ化合物と上記式（２）で表されるオキセタン化合物とを含む。上記式（１）で表されるエポキシ化合物と上記式（２）で表されるオキセタン化合物とを含むことにより、得られる面内封止剤が塗布性及び低アウトガス性に優れるものとなる。

[0071] 上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部中における、上記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量の下限は１０重量部、上限は９０重量部である。上記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量がこの範囲であることにより、得られる面内封止剤が塗布性及び低アウトガス性により優れるものとなる。上記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量の好ましい下限は５０重量部、好ましい上限は８５重量部、より好ましい下限は６０重量部、より好ましい上限は８０重量部である。

[0072] 上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部中における、上記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量の下限は１０重量部、上限は９０重量部である。上記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量がこの範囲であることにより、得られる面内封止剤が塗布性及び低アウトガス性により優れるものとなる。上記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量の好ましい下限は１５重量部、好ましい上限は５０重量部、より好ましい下限は２０重量部、より好ましい上限は４０重量部である。

[0073] 上記硬化性樹脂Ｂは、得られる面内封止剤の接着性を向上させること等を目的として、その他の硬化性樹脂を含んでもよい。

上記他の硬化性樹脂としては、例えば、上記式（１）で表されるエポキシ化合物以外のその他のエポキシ化合物、上記式（２）で表されるオキセタン化合物以外のその他のオキセタン化合物、ビニルエーテル化合物等が挙げられる。

[0074] 上記その他のエポキシ化合物としては、例えば、３，４－エポキシシクロヘキシルメチル（メタ）アクリレート、１，２：８，９－ジエポキシリモネン、４－ビニルシクロヘキセンモノオキサイド、ビニルシクロヘキセンジオキ

サイド、メチル化ビニルシクロヘキセンジオキサイド、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル）エーテル、３，４，３’，４’－ジエポキビシクロヘキシル、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシル）アジペート、ビス（２，３－エポキシシクロペンチル）エーテル、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、ジシクロペンタジエンジオキサイド、ジシクロペンタジエンジメタノールジグリシジルエーテル、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、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等が挙げられる。

[0075] 上記その他のオキセタン化合物としては、例えば、４，４’－ビス（（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシメチル）ビフェニル、フェノキシメチルオキセタン、３－エチル－３－ヒドロキシメチルオキセタン、３－エチル－３－（フェノキシメチル）オキセタン、３－エチル－３－（（２－エチルヘキシルオキシ）メチル）オキセタン、３－エチル－３－（（３－（トリエトキシシリル）プロポキシ）メチル）オキセタン、オキセタニルシルセスキオキサン、フェノールノボラックオキセタン、１，４－ビス（（（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシ）メチル）ベンゼン等が挙げられる。

[0076] 上記ビニルエーテル化合物としては、例えば、ベンジルビニルエーテル、シクロヘキサンジメタノールモノビニルエーテル、ジシクロペンタジエンビニルエーテル、１，４－ブタンジオールジビニルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジビニルエーテル、ジエチレングリコールジビニルエーテル、トリエチレングリコールジビニルエーテル、ジプロピレングリコールジビニルエーテル、トリプロピレングリコールジビニルエーテル等が挙げられる。

[0077] 上記面内封止剤は、カチオン重合開始剤を含有する。

上記面内封止剤に用いられるカチオン重合開始剤としては、上記周辺封止剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0078] 上記カチオン重合開始剤の含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、好ましい下限が０．０５重量部、好ましい上限が１０重量部である。上

記カチオン重合開始剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる面内封止剤が硬化性及び保存安定性により優れるものとなる。上記カチオン重合開始剤の含有量のより好ましい下限は０．１重量部、より好ましい上限は５重量部である。

[0079] 上記面内封止剤は、増感剤を含有してもよい。上記増感剤は、上記光カチオン重合開始剤の重合開始効率をより向上させて、上記面内封止剤の硬化反応をより促進させる役割を有する。

上記面内封止剤に用いられる増感剤としては、上記周辺封止剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0080] 上記増感剤の含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、好ましい下限は０．０５重量部、好ましい上限は３重量部である。上記増感剤の含有量が０．０５重量部以上であることにより、増感効果がより発揮される。上記増感剤の含有量が３重量部以下であることにより、吸収が大きくなり過ぎずに深部まで光を伝えることができる。上記増感剤の含有量のより好ましい下限は０．１重量部、より好ましい上限は１重量部である。

[0081] 上記面内封止剤は、熱硬化剤を含有してもよい。

上記面内封止剤に用いられる熱硬化剤としては、上記周辺封止剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0082] 上記熱硬化剤の含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、好ましい下限が０．５重量部、好ましい上限が３０重量部である。上記熱硬化剤の含有量が０．５重量部以上であることにより、得られる面内封止剤が熱硬化性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量が３０重量部以下であることにより、得られる面内封止剤が保存安定性により優れるものとなる。上記熱硬化剤の含有量のより好ましい下限は１重量部、より好ましい上限は１５重量部である。

[0083] 上記面内封止剤は、安定剤を含有する。

上記安定剤としては、例えば、芳香族アミン化合物、４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－１－オキシル等が挙げられる。

上記芳香族アミン化合物としては、例えば、ベンジルアミン、アミノフェノール型エポキシ樹脂等が挙げられる。

なかでも、芳香族アミン化合物が好ましく、ベンジルアミンがより好ましい。

これらの安定剤は、単独で用いられてもよいし、２種以上が組み合わせて用いられてもよい。

[0084] 上記安定剤の含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、下限が０．００１重量部、上限が５重量部である。上記安定剤の含有量がこの範囲であることにより、得られる面内封止剤が優れた硬化性を維持したまま保存安定性に優れるものとなる。上記安定剤の含有量の好ましい下限は０．０１重量部、好ましい上限は３重量部、より好ましい下限は０．０５重量部である。

[0085] 上記面内封止剤は、接着性を向上させること等を目的として、本発明の目的を阻害しない範囲において、フィラーを含有してもよい。

上記面内封止剤が含有してもよいフィラーとしては、無機フィラーや有機フィラーを用いることができる。

上記無機フィラーとしては、例えば、シリカ、タルク、アルミナ等が挙げられる。

上記有機フィラーとしては、例えば、ポリエステル微粒子、ポリウレタン微粒子、ビニル重合体微粒子、アクリル重合体微粒子等が挙げられる。

[0086] 上記フィラーの含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、好ましい下限が１０重量部、好ましい上限が１００重量部である。上記フィラーの含有量がこの範囲であることにより、優れた塗布性を維持しつつ、得られる面内封止剤の接着性を向上させる効果により優れるものとなる。

[0087] 上記面内封止剤は、シランカップリング剤を含有してもよい。上記シランカップリング剤は、上記面内封止剤と基板等との接着性を向上させる役割を有する。

上記面内封止剤に用いられるシランカップリング剤としては、上記周辺封止

剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0088] 上記シランカップリング剤の含有量は、上記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して、好ましい下限が０．１重量部、好ましい上限が１０重量部である。上記シランカップリング剤の含有量がこの範囲であることにより、余剰のシランカップリング剤のブリードアウトを防止しつつ、得られる面内封止剤の接着性を向上させる効果により優れるものとなる。上記シランカップリング剤の含有量のより好ましい下限は０．５重量部、より好ましい上限は５重量部である。

[0089] 上記面内封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲において、表面改質剤を含有してもよい。上記表面改質剤を含有することにより、上記面内封止剤の塗膜の平坦性を向上させることができる。

上記面内封止剤に用いられる表面改質剤としては、上記周辺封止剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0090] 本発明の有機ＥＬ表示素子用面内封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲で、素子電極の耐久性を向上させるために、有機ＥＬ表示素子用面内封止剤中に発生した酸と反応する化合物及び／又はイオン交換樹脂を含有してもよい。

上記面内封止剤に用いられる上記発生した酸と反応する化合物及び上記イオン交換樹脂としては、上記周辺封止剤において挙げたものと同様のものを用いることができる。

[0091] また、上記面内封止剤は、本発明の目的を阻害しない範囲で、必要に応じて、硬化遅延剤、補強剤、軟化剤、可塑剤、粘度調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤等の公知の各種添加剤を含有してもよい。

[0092] 上記面内封止剤は、アウトガスの発生をより抑制する観点から、溶剤を含有しないことが好ましい。上記面内封止剤は、該溶剤を含有しなくても、塗布性に優れるものとすることができる。

[0093] 上記面内封止剤を製造する方法としては、混合機を用いて、硬化性樹脂Ｂと、カチオン重合開始剤と、必要に応じて添加するシランカップリング剤等の

添加剤とを混合する方法等が挙げられる。

上記混合機としては、例えば、ホモディスパー、ホモミキサー、万能ミキサー、プラネタリーミキサー、ニーダー、３本ロール等が挙げられる。

[0094] 上記面内封止剤は、Ｅ型粘度計を用いて、２５℃、２０ｒｐｍの条件で測定した全体の粘度の好ましい下限が５０ｍＰａ・ｓ、好ましい上限が１５０ｍＰａ・ｓである。上記面内封止剤の粘度がこの範囲であることにより、塗布性により優れるものとなる。上記面内封止剤の粘度のより好ましい下限は６０ｍＰａ・ｓ、より好ましい上限は１４０ｍＰａ・ｓである。

なお、上記Ｅ型粘度計としては、例えば、ＶＩＳＣＯＭＥＴＥＲ　ＴＶ－２２（東機産業社製）等が挙げられる。

[0095] 上記面内封止剤は、表面張力の好ましい下限が１５ｍＮ／ｍ、好ましい上限が４５ｍＮ／ｍである。上記面内封止剤の表面張力がこの範囲であることにより、塗布性により優れるものとなる。上記面内封止剤の表面張力のより好ましい下限は２０ｍＮ／ｍ、より好ましい上限は３５ｍＮ／ｍである。

なお、本明細書において、上記表面張力は、２５℃において動的濡れ性試験機により測定される値である。

[0096] （有機ＥＬ表示素子）

本発明の有機ＥＬ表示素子用封止剤セットにおける上記周辺封止剤の硬化物と上記面内封止剤の硬化物とを有する有機ＥＬ表示素子もまた、本発明の１つである。

[0097] 本発明の有機ＥＬ表示素子において、上記周辺封止剤の硬化物は、有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲む封止壁に用いられる。

上記周辺封止剤の硬化物を用いてなる封止壁は、得られる有機ＥＬ表示素子の表示領域を広く確保する等の観点から、厚さが５ｍｍ以下であることが好ましい。

[0098] 本発明の有機ＥＬ表示素子としては、表示領域の大きさが対角４０インチ以上６０インチ以下であるものが好適である。

発明の効果

[0099] 本発明によれば、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを提供することができる。また、本発明によれば、該有機ＥＬ表示素子用封止剤セットの硬化物を有する有機ＥＬ表示素子を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0100] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0101] （実施例１～１４、比較例１～１６）

表１～４に記載された配合比に従い、各材料を、撹拌混合機を用い、撹拌速度２０００ｒｐｍで３分間撹拌混合した後、更に３本ロールにて混練して周辺封止剤を作製した。

また、表１～４に記載された配合比に従い、各材料を、撹拌混合機を用い、撹拌速度２０００ｒｐｍで３分間撹拌混合して面内封止剤を作製した。

上記撹拌混合機としては、ＡＲ－２５０（シンキー社製）を用い、上記３本ロールとしては、ＮＲ－４２Ａ（ノリタケ社製）を用いた。

なお、上記実施例に使用した酸化カルシウムは、粒径が１０μｍ以下になるようにボールミル（日陶科学社製、「ＡＮＺ－５３Ｄ」）によって乾式バッチ粉砕したものを使用した。

得られた各周辺封止剤と各面内封止剤とを、表１～４に記載したように組み合わせて、実施例１～１４、比較例１～１６の有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを得た。

[0102] ＜評価＞

実施例及び比較例で得られた各有機ＥＬ表示素子用封止剤セットについて、以下の評価を行った。結果を表１～４に示した。

[0103] （１）周辺封止剤の評価

（１－１）接着性

実施例及び比較例にかかる各周辺封止剤１０ｇに対して、直径１０μｍのスペーサー粒子０．０３ｇを加え、撹拌混合機を用いて均一に分散させた。上

記スペーサー粒子としては、ミクロパールＳＰ－２１０（積水化学工業社製）を用い、上記撹拌混合機としては、ＡＲ－２５０（シンキー社製）を用いた。該スペーサー粒子を分散させた周辺封止剤をガラス基板Ａ上に塗布した後、ガラス基板Ｂを貼り付け、加圧して厚みを均一にした。上記ガラス基板Ａは、長さ５０ｍｍ、幅２５ｍｍ、厚さ０．７ｍｍのガラスの表面をアセトンで洗浄した後、乾燥させたものであり、上記ガラス基板Ｂは、長さ５ｍｍ、幅５ｍｍ、厚さ０．７ｍｍのガラスをアセトンに浸漬洗浄した後、乾燥させたものである。次いで、周辺封止剤を硬化させることにより、ガラス基板Ａとガラス基板Ｂとを接着した。実施例１～７、比較例１～８にかかる周辺封止剤については、１００℃で３０分間加熱することにより硬化させた。実施例８～１４、比較例９～１６にかかる周辺封止剤については、ＵＶ－ＬＥＤ照射装置にて波長３６５ｎｍの紫外線を３０００ｍＪ／ｃｍ^{2}照射して硬化させた。

ガラス基板Ａとガラス基板Ｂとの剪断接着力をダイシェアテスターにて２３℃、剪断速度２００μｍ／秒の条件で測定した。上記ダイシェアテスターとしては、ボンドテスター４０００（デイジ社製）を用いた。

剪断接着力が２００Ｎ以上であった場合を「〇」、２００Ｎ未満１００Ｎ以上であった場合を「△」、１００Ｎ未満であった場合を「×」として接着性を評価した。

[0104] （１－２）透湿防止性

実施例及び比較例にかかる各周辺封止剤について、以下のＣａ－ＴＥＳＴを行った。

まず、実施例及び比較例で得られた各周辺封止剤１０ｇに対して、直径１０μｍのスペーサー粒子０．０３ｇを加え、撹拌混合機を用いて均一に分散させた。上記スペーサー粒子としては、ミクロパールＳＰ－２１０（積水化学工業社製）を用い、上記撹拌混合機としては、ＡＲ－２５０（シンキー社製）を用いた。次いで、スペーサー粒子を分散させた周辺封止剤をガラス基板の表面に塗布した。

次に、３０ｍｍ×３０ｍｍの大きさの別のガラス基板に２ｍｍ×２ｍｍの開口部を複数有するマスクを被せ、Ｃａを真空蒸着機により蒸着させた。蒸着の条件は、真空蒸着装置の蒸着器内を２×１０$^{-3}$Ｐａまで減圧してＣａを５．０Å／ｓの蒸着速度で２０００Å成膜するものとした。Ｃａを蒸着したガラス基板を露点（－６０℃以上）に管理されたグローブボックス内に移動させ、表面に周辺封止剤を塗布したガラス基板と、Ｃａを蒸着したガラス基板とを、周辺封止剤がＣａの蒸着パターン上となるようにして貼り合わせた。この時、ガラス基板端面から２ｍｍ、４ｍｍ、６ｍｍの位置に蒸着したＣａが存在するように位置を合わせて貼り合わせた。加圧して周辺封止剤層の厚みを均一にした後、周辺封止剤を硬化させ、Ｃａ－ＴＥＳＴ基板を作製した。実施例１～７、比較例１～８にかかる周辺封止剤については、１００℃で３０分間加熱することにより硬化させた。実施例８～１４、比較例９～１６にかかる周辺封止剤については、ＵＶ－ＬＥＤ照射装置にて波長３６５ｎｍの紫外線を３０００ｍＪ／ｃｍ^{2}照射して硬化させた。

得られたＣａ－ＴＥＳＴ基板を、８５℃、８５％ＲＨの高温高湿条件に暴露し、周辺封止剤の硬化物からなる層へのガラス基板端面からの時間毎の水分の浸入距離をＣａの消失から観測した。

その結果、水分の浸入距離が６ｍｍに達するまでの時間が１０００時間以上であった場合を「〇」、５００時間以上１０００時間未満であった場合を「△」、５００時間未満であった場合を「×」として透湿防止性を評価した。

[0105] （２）面内封止剤の評価

（２－１）塗布性

実施例及び比較例にかかる各面内封止剤０．１ｍＬを、ピペットを用いてガラス基板上に塗布し、１分後に広がった直径を測定した。

直径が１２ｍｍ以上であった場合を「〇」、１０ｍｍ以上１２ｍｍ未満であった場合を「△」、１０ｍｍ未満であった場合を「×」として、塗布性を評価した。

[0106] （２－２）保存安定性

実施例及び比較例にかかる各面内封止剤について、Ｅ型粘度計を用いて、２５℃にて、製造直後の初期粘度と２５℃で１週間保管したときの粘度とを測定した。（２５℃、１週間保管後の粘度）／（初期粘度）を粘度変化率とし、粘度変化率が２．０未満であった場合を「○」、２．０以上４．０未満であった場合を「△」、４．０以上であった場合を「×」として保存安定性を評価した。

上記Ｅ型粘度計としては、ＶＩＳＣＯＭＥＴＥＲ　ＴＶ－２２（東機産業社製）を用いた。

[0107] （２－３）低アウトガス性

実施例及び比較例にかかる各面内封止剤を、バイアル瓶（２２ｍＬガラスバイアル、ジーエルサイエンス社製、「２２－ＣＶ」）中に３００ｍｇ計量して封入した後、１００℃で３０分間加熱することで硬化させた。更に、このバイアル瓶中に３００ｍｇ計量して封入した後、１００℃で３０分間加熱を行うことで硬化させ、バイアル瓶中の気化成分を、ガスクロマトグラフ質量分析計を用いて下記条件で測定した。

＜ＧＣ／ＭＳ測定条件＞

ヘッドスペース装置：ＴｕｒｂｏＭａｔｒｉｘ４０（ＰｅｒｋｉｎＥｌｍｅｒ社製）

サンプル量：約３００ｍｇ精秤

加熱条件：１００℃、３０ｍｉｎ

ニードルトランスファー温度：１８０℃

抽入口温度：２５０℃

ＧＣ／ＭＳ装置：ＪＭＳ－Ｑ１０５０ＧＣ（日本電子社製）

ＧＣカラム：ＳＬＢＴＭ－５ｍｓ（微極性）０．２５ｍｍ×３０ｍ×０．２５μｍ

装置：ＪＭＳ－Ｑ１５００ＧＣ（日本電子社製）

ＧＣ昇温：４０℃（４ｍｉｎ）→１０℃／ｍｉｎ→２６０℃（２ｍｉｎ）

スプリット：１：５０（注入０．０５ｍｉｎ）

Ｈｅ流量：１．０ｍＬ／ｍｉｎ

ＭＳ測定範囲：２９～６００

イオン化電圧：７０ｅＶ

ＭＳ温度：イオン源２３０℃、インターフェイス２５０℃

気化成分量が３００ｐｐｍ未満であった場合を「○」、３００ｐｐｍ以上１０００ｐｐｍ未満であった場合を「△」、１０００ｐｐｍ以上であった場合を「×」として低アウトガス性を評価した。

[0108] （３）有機ＥＬ表示素子の表示性能

（有機発光材料層を有する積層体が配置された基板の作製）

長さ４５ｍｍ、幅４５ｍｍ、厚さ０．７ｍｍのガラスにＩＴＯ電極を１０００Åの厚さとなるように成膜したものを基板とした。上記基板をアセトン、アルカリ水溶液、イオン交換水、及び、イソプロピルアルコールにてそれぞれ１５分間超音波洗浄した後、煮沸させたイソプロピルアルコールにて１０分間洗浄し、更に、ＵＶ－オゾンクリーナにて直前処理を行った。ＵＶ－オゾンクリーナとしては、ＮＬ－ＵＶ２５３（日本レーザー電子社製）を用いた。

次に、直前処理後の基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、素焼きの坩堝にＮ，Ｎ’－ジ（１－ナフチル）－Ｎ，Ｎ’－ジフェニルベンジジン（α－ＮＰＤ）を２００ｍｇ入れ、別の素焼き坩堝にトリス（８－キノリノラト）アルミニウム（Ａｌｑ$_3$）を２００ｍｇ入れ、真空チャンバー内を、１×１０$^{-4}$Ｐａまで減圧した。その後、α－ＮＰＤの入った坩堝を加熱し、α－ＮＰＤを蒸着速度１５Å／ｓで基板に堆積させ、膜厚６００Åの正孔輸送層を成膜した。次いで、Ａｌｑ$_3$の入った坩堝を加熱し、１５Å／ｓの蒸着速度で膜厚６００Åの有機発光材料層を成膜した。その後、正孔輸送層及び有機発光材料層が形成された基板を、タングステン製抵抗加熱ボートを有する別の真空蒸着装置に移し、真空蒸着装置内のタングステン製抵抗加熱ボートの１つにフッ化リチウム２００ｍｇを入れ、別のタングステン製抵抗加熱ボートにアルミニウム線１．０ｇを入れた。その後、真空蒸着装置の蒸着器内を

２×１０$^{-4}$Ｐａまで減圧してフッ化リチウムを０．２Å／ｓの蒸着速度で５Å成膜した後、アルミニウムを２０Å／ｓの速度で１０００Å成膜した。窒素により蒸着器内を常圧に戻し、１０ｍｍ×１０ｍｍの有機発光材料層を有する積層体が配置された基板を取り出した。

[0109] （有機ＥＬ表示素子の作製）

積層体が配置された基板の周縁部に、周辺封止剤を線幅（硬化後の封止壁の厚さ）が５ｍｍとなるよう塗布し、その内側に面内封止剤を、積層体全体を覆うように塗布した後、長さ４５ｍｍ、幅４５ｍｍ、厚さ０．７ｍｍのガラスを重ね合わせた。その後、ＵＶ－ＬＥＤ照射装置を用いて波長３６５ｎｍの紫外線を３０００ｍＪ／ｃｍ^{2}照射し、更に１００℃で３０分加熱することで周辺封止剤及び面内封止剤を硬化させて有機ＥＬ表示素子を作製した。

[0110] （有機ＥＬ表示素子の発光状態）

得られた有機ＥＬ表示素子を、８５℃、８５％ＲＨの環境下に１０００時間暴露した後、１０Ｖの電圧を印加し、有機ＥＬ表示素子の発光状態（ダークスポット及び画素周辺消光の有無）を目視で観察した。ダークスポットや周辺消光が無く均一に発光した場合を「〇」、僅かにダークスポットや周辺消光が認められた場合を「△」、非発光部が著しく拡大した場合を「×」として有機ＥＬ表示素子の表示性能を評価した。

[0111]

[表1]

			実施例						
			1	2	3	4	5	6	7
周辺封止剤組成（重量部）	ポリオレフィン	ポリイソブチレン（JXTGエネルギー社製、「テトラックス 4T」）	50	50	50	—	—	50	50
		ポリブテン（JXTGエネルギー社製、「HV−100」）	—	—	—	50	—	—	—
		ポリブタジエン（日本曹達社製、「B−1000」）	—	—	—	—	50	—	—
	硬化性樹脂A	式(1)で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	50	50	50	50	50	50	50
	熱硬化剤	ジメチルフェニル(4−メトキシベンジル)アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC−1612」）	1	1	1	1	1	1	1
	吸水性フィラー	酸化カルシウム（林純薬工業社製、「89−0063−56」）	50	50	50	50	50	50	50
面内封止剤組成（重量部）	硬化性樹脂B	式(1)で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	70	50	90	70	70	70	70
		式(2)で表されるオキセタン化合物（東亞合成社製、「アロンオキセタン OXT−221」）	30	50	10	30	30	30	30
	カチオン重合開始剤	ジメチルフェニル(4−メトキシベンジル)アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC−1612」）	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	安定剤	ベンジルアミン（東京化成工業社製）	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.001	5
評価	周辺封止剤の評価	接着性	○	○	○	○	○	○	○
		透湿防止性	△	△	△	△	△	△	△
	面内封止剤の評価	塗布性	○	○	△	○	○	○	○
		保存安定性	○	○	○	○	○	△	○
		低アウトガス性	○	○	○	○	○	○	△
	有機EL表示素子の表示性能		○	△	○	○	○	○	○

[0112] [表2]

			実施例							
			8	9	10	11	12	13	14	
周辺封止剤組成（重量部）	ポリオレフィン	ポリイソブチレン（JXTGエネルギー社製、「テトラックス 4T」）	50	50	50	—	—	50	50	
		ポリブテン（JXTGエネルギー社製、「HV−100」）	—	—	—	50	—	—	—	
		ポリブタジエン（日本曹達社製、「B−1000」）	—	—	—	—	50	—	—	
	硬化性樹脂A	インボルニルメタクリレート（新中村化学工業社製、「NKエステル IB」）	50	50	50	50	50	50	50	
	光ラジカル重合開始剤	2, 2−ジメトキシ−2−フェニルアセトフェノン（IGM Resins社製、「Omnirad 651」）	2. 5	2. 5	2. 5	2. 5	2. 5	2. 5	2. 5	
	吸水性フィラー	酸化カルシウム（林純薬工業社製、「89−0063−56」）	50	50	50	50	50	50	50	
面内封止剤組成（重量部）	硬化性樹脂B	式(1)で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	70	50	90	70	70	70	70	
		式(2)で表されるオキセタン化合物（東亞合成社製、「アロンオキセタン OXT−221」）	30	50	10	30	30	30	30	
	カチオン重合開始剤	ジメチルフェニル(4−メトキシベンジル)アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC−1612」）	1. 5	1. 5	1. 5	1. 5	1. 5	1. 5	1. 5	
	安定剤	ベンジルアミン（東京化成工業社製）	0. 2	0. 2	0. 2	0. 2	0. 2	0. 001	5	
評価	周辺封止剤の評価	接着性	○	○	○	○	○	○	○	
		透湿防止性	○	△	△	△	△	○	○	
	面内封止剤の評価	塗布性	○	○	△	○	○	○	○	
		保存安定性	○	○	○	○	○	○	○	
		低アウトガス性	○	○	○	○	○	○	○	
	有機EL表示素子の表示性能		○	△	○	○	○	○	○	

[0113] [表3]

			比較例							
			1	2	3	4	5	6	7	8
周辺封止剤組成（重量部）	ポリオレフィン	ポリイソブテレン（JXTGエネルギー社製、「テトラックス 4T」）	–	–	50	50	50	50	50	50
	他のポリマー	ポリエーテルポリオール（DIC社製、「ポリライトOD－X－2692」）	–	50	–	–	–	–	–	–
	硬化性樹脂A	式（1）で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	100	50	50	50	50	50	50	50
	熱硬化剤	ジメチルフェニル（4－メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC－1612」）	3	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	吸水性フィラー	酸化カルシウム（林純薬工業社製、「89－0063－56」）	50	50	50	50	50	50	50	50
面内封止剤組成（重量部）	硬化性樹脂B	式（1）で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	70	70	70	–	5	95	70	70
		式（2）で表されるオキセタン化合物（東亞合成社製、「アロンオキセタン OXT－221」）	30	30	–	30	95	5	30	30
		1，2－エポキシ－4－ビニルシクロヘキサン（ダイセル社製、「セロキサイド 2000」）	–	–	–	70	–	–	–	–
		ε－カプロラクトン変性3'，4'－エポキシシクロヘキシルメチル（3，4－エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレート（ダイセル社製、「セロキサイド 2081」）	–	–	30	–	–	–	–	–
	カチオン重合開始剤	ジメチルフェニル（4－メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC－1612」）	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	安定剤	ベンジルアミン（東京化成工業社製）	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	–	10
評価	周辺封止剤の評価	接着性	○	×	△	△	△	△	△	△
		透湿防止性	×	×	△	△	×	△	△	△
	面内封止剤の評価	塗布性	○	○	○	○	○	×	○	○
		保存安定性	○	○	○	○	○	○	×	○
		低アウトガス性	○	○	×	×	○	○	○	×
	有機EL表示素子の表示性能		○	○	×	×	×	×	○	×

[0114] [表4]

			比較例							
			9	10	11	12	13	14	15	16
周辺封止剤組成（重量部）	ポリオレフィン	ポリイソブチレン（JXTGエネルギー社製、「テトラックス 4T」）	–	–	50	50	50	50	50	50
	他のポリマー	ポリエーテルポリオール（DIC社製、「ポリライトOD－X－2692」）	–	50	–	–	–	–	–	–
	硬化性樹脂A	インボルニルメタクリレート（新中村化学工業社製、「NKエステル IB」）	100	50	50	50	50	50	50	50
	光ラジカル重合開始剤	2，2－ジメトキシ－2－フェニルアセトフェノン（IGM Resins社製、「Omnirad 651」）	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5
	吸水性フィラー	酸化カルシウム（林純薬工業社製、「89－0063－56」）	50	50	50	50	50	50	50	50
面内封止剤組成（重量部）	硬化性樹脂B	式（1）で表されるエポキシ化合物（ダイセル社製、「セロキサイド 8000」）	70	70	70	–	5	95	70	70
		式（2）で表されるオキセタン化合物（東亞合成社製、「アロンオキセタン OXT－221」）	30	30	–	30	95	5	30	30
		1，2－エポキシ－4－ビニルシクロヘキサン（ダイセル社製、「セロキサイド 2000」）	–	–	–	70	–	–	–	–
		ε－カプロラクトン変性3'，4'－エポキシシクロヘキシルメチル（3，4－エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレート（ダイセル社製、「セロキサイド 2081」）	–	–	30	–	–	–	–	–
	カチオン重合開始剤	ジメチルフェニル（4－メトキシベンジル）アンモニウムヘキサフルオロアンチモネート（King Industries社製、「CXC－1612」）	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5	1．5
	安定剤	ベンジルアミン（東京化成工業社製）	0．2	0．2	0．2	0．2	0．2	0．2	–	10
評価	周辺封止剤の評価	接着性	○	×	△	△	△	△	△	△
		透湿防止性	×	×	△	△	△	△	△	△
	面内封止剤の評価	塗布性	○	○	○	○	○	×	○	○
		保存安定性	○	○	○	○	○	○	×	○
		低アウトガス性	○	○	×	×	○	○	○	×
	有機EL表示素子の表示性能		○	○	×	×	×	×	○	×

産業上の利用可能性

[0115] 本発明によれば、表示性能に優れる有機ＥＬ表示素子を得ることができる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットを提供することができる。また、本発明によれば、該有機ＥＬ表示素子用封止剤セットの硬化物を有する有機ＥＬ表示素子を提供することができる。

請求の範囲

[請求項1] 有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲んで封止する周辺封止剤と、該周辺封止剤の内側において有機発光材料層を有する積層体を被覆して封止する面内封止剤とを組み合わせてなる有機ＥＬ表示素子用封止剤セットであって、

前記周辺封止剤は、ポリオレフィンと、硬化性樹脂Ａと、重合開始剤及び／又は熱硬化剤とを含有し、

前記面内封止剤は、硬化性樹脂Ｂと、カチオン重合開始剤と、安定剤とを含有し、

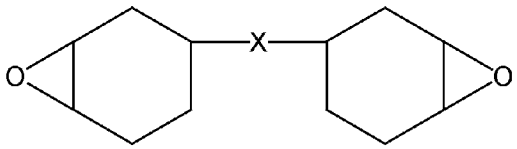
前記硬化性樹脂Ｂは、下記式（１）で表されるエポキシ化合物と下記式（２）で表されるオキセタン化合物とを含み、

前記硬化性樹脂Ｂ１００重量部中における、下記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、かつ、下記式（２）で表されるオキセタン化合物の含有量が１０重量部以上９０重量部以下であり、

前記安定剤の含有量が、前記硬化性樹脂Ｂ１００重量部に対して０．００１重量部以上５重量部以下である

ことを特徴とする有機ＥＬ表示素子用封止剤セット。

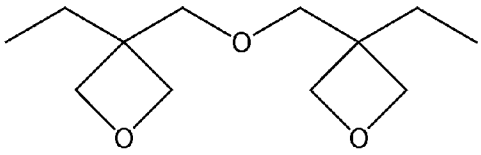
[化1]



（１）

式（１）中、Ｘは、－Ｃ（＝Ｏ）Ｏ－若しくは－Ｃ（＝Ｏ）－で中断又は直結されていてもよい炭素数１～６の直鎖状又は分岐鎖状の炭化水素基、或いは、結合手を表す。

[化2]



（２）

[請求項2] 前記ポリオレフィンは、ポリイソブチレン、ポリブテン、及び、ポリブタジエンからなる群より選択される少なくとも１種を含む請求項１記載の有機ＥＬ表示素子用封止剤セット。

[請求項3] 前記硬化性樹脂Ａは、エポキシ化合物、オキセタン化合物、（メタ）アクリル化合物、及び、ウレタン化合物からなる群より選択される少なくとも１種を含む請求項１又は２記載の有機ＥＬ表示素子用封止剤セット。

[請求項4] 前記周辺封止剤は、ラジカル重合開始剤、カチオン重合開始剤、及び、熱硬化剤からなる群より選択される少なくとも１種を含有する請求項１、２又は３記載の有機ＥＬ表示素子用封止剤セット。

[請求項5] 前記面内封止剤は、フィラーを含有する請求項１、２、３又は４記載の有機ＥＬ表示素子用封止剤セット。

[請求項6] 請求項１、２、３、４又は５記載の有機ＥＬ表示素子用封止剤セットにおける前記周辺封止剤の硬化物と前記面内封止剤の硬化物とを有する有機ＥＬ表示素子。

[請求項7] 前記周辺封止剤の硬化物は、有機ＥＬ表示素子の周縁部を囲む封止壁に用いられ、該封止壁は、厚さが５ｍｍ以下である請求項６記載の有機ＥＬ表示素子。

[請求項8] 表示領域の大きさが対角４０インチ以上６０インチ以下である請求項６又は７記載の有機ＥＬ表示素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/001253

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L 23/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 71/02(2006.01)i; H05B 33/04(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i; G09F 9/30(2006.01)i; H01L 27/32(2006.01)i
FI: H05B33/04; G09F9/30 309; H05B33/14 A; H01L27/32; C08L101/00; C08L71/02; G09F9/30 365; C09K3/10 L; C09K3/10 Z; C09K3/10 E; C09K3/10 B; C08L23/00
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)
C08L23/00; C08L101/00; C09K3/10; C08L71/02; H05B33/04; H01L51/50; G09F9/30; H01L27/32

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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	KR 10-2018-0118542 A (LG CHEM, LTD.) 31.10.2018 (2018-10-31) paragraphs [0007], [0009]-[0067], [0069]-[0071], [0076], [0080], [0084], [0116]-[0122], fig. 1	1-8
Y	JP 2018-513889 A (LG CHEM, LTD.) 31.05.2018 (2018-05-31) paragraphs [0013]-[0049], [0067]-[0068], [0087]-[0092]	1-8
Y	JP 2018-513891 A (LG CHEM, LTD.) 31.05.2018 (2018-05-31) paragraphs [0022]-[0057], [0068]-[0069], [0088]-[0092]	1-8
A	WO 2018/052007 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 22.03.2018 (2018-03-22) entire text	1-8

☒ 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
16 March 2020 (16.03.2020)	31 March 2020 (31.03.2020)

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/JP2020/001253

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2017/078006 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 11.05.2017 (2017-05-11) entire text	1-8
A	WO 2018/106091 A1 (LG CHEM, LTD.) 14.06.2018 (2018-06-14) entire text all drawings	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/001253

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
KR 10-2018-0118542 A	31 Oct. 2018	WO 2018/194410 A TW 201842144 A	
JP 2018-513889 A	31 May 2018	US 2018/0118984 A1 paragraphs [0013]-[0049], [0067]-[0068], [0093]-[0098] WO 2016/153298 A1 EP 3275944 A1 KR 10-2016-0114541 A TW 201708473 A CN 107580619 A	
JP 2018-513891 A	31 May 2018	US 2018/0072927 A1 paragraphs [0022]-[0056], [0068]-[0069], [0094]-[0099] WO 2016/153297 A1 EP 3275943 A1 KR 10-2016-0114543 A TW 201718802 A CN 107636072 A	
WO 2018/052007 A1	22 Mar. 2018	CN 108781489 A KR 10-2019-0053133 A TW 201817761 A	
WO 2017/078006 A1	11 May 2017	CN 107637168 A KR 10-2018-0075435 A TW 201728663 A	
WO 2018/106091 A1	14 Jun. 2018	JP 2019-527763 A entire text all drawings CN 109661429 A KR 10-2018-0066876 A TW 201835143 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/001253

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 23/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 71/02(2006.01)i; H05B 33/04(2006.01)i; H01L 51/50(2006.01)i; G09F 9/30(2006.01)i; H01L 27/32(2006.01)i
FI: H05B33/04; G09F9/30 309; H05B33/14 A; H01L27/32; C08L101/00; C08L71/02; G09F9/30 365; C09K3/10 L; C09K3/10 Z; C09K3/10 E; C09K3/10 B; C08L23/00

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））

C08L23/00; C08L101/00; C09K3/10; C08L71/02; H05B33/04; H01L51/50; G09F9/30; H01L27/32

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	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０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	KR 10-2018-0118542 A (LG CHEM, LTD.) 31.10.2018 (2018-10-31) 段落[0007], [0009]－[0067], [0069]－[0071], [0076], [0080], [0084], [0116]－[0122], 図1	1-8
Y	JP 2018-513889 A (エルジー・ケム・リミテッド) 31.05.2018 (2018-05-31) 段落［００１３］－［００４９］，［００６７］－［００６８］，［００８７］－［００９２］	1-8
Y	JP 2018-513891 A (エルジー・ケム・リミテッド) 31.05.2018 (2018-05-31) 段落［００２２］－［００５７］，［００６８］－［００６９］，［００８８］－［００９２］	1-8
A	WO 2018/052007 A1 (積水化学工業株式会社) 22.03.2018 (2018-03-22) 全文	1-8
A	WO 2017/078006 A1 (積水化学工業株式会社) 11.05.2017 (2017-05-11) 全文	1-8

☑ 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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“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
16.03.2020	31.03.2020

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
大竹　秀紀 20 4074

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

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
A	WO 2018/106091 A1 (LG CHEM, LTD.) 14.06.2018 (2018-06-14) 全文全図	1-8

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2020/001253

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
KR 10-2018-0118542 A	31.10.2018	WO 2018/194410 A1 TW 201842144 A	
JP 2018-513889 A	31.05.2018	US 2018/0118984 A1 段落[0013]-[0049], [0067]-[0068], [0093]-[0098] WO 2016/153298 A1 EP 3275944 A1 KR 10-2016-0114541 A TW 201708473 A CN 107580619 A	
JP 2018-513891 A	31.05.2018	US 2018/0072927 A1 段落[0022]-[0056], [0068]-[0069], [0094]-[0099] WO 2016/153297 A1 EP 3275943 A1 KR 10-2016-0114543 A TW 201718802 A CN 107636072 A	
WO 2018/052007 A1	22.03.2018	CN 108781489 A KR 10-2019-0053133 A TW 201817761 A	
WO 2017/078006 A1	11.05.2017	CN 107637168 A KR 10-2018-0075435 A TW 201728663 A	
WO 2018/106091 A1	14.06.2018	JP 2019-527763 A 全文全図 CN 109661429 A KR 10-2018-0066876 A TW 201835143 A	