

(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
2016 年 11 月 3 日(03.11.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/175271 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 63/00 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) *H05B 33/04* (2006.01)
C09K 3/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/063316
- (22) 国際出願日: 2016 年 4 月 28 日(28.04.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-091052 2015 年 4 月 28 日(28.04.2015) 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 1 5
番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 山本 有希(YAMAMOTO, 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).
大橋 賢(OHASHI, Satoru); 〒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(TAKASHIMA, Hajime); 〒
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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES,
FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,
IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR SEALING AND SEALING SHEET

(54) 発明の名称: 封止用樹脂組成物および封止用シート

(57) Abstract: The present invention provides a thermosetting resin composition for sealing that contains a thermosetting resin and at least two hydrotalcites having different water absorption rates.

(57) 要約: 本発明は、熱硬化性樹脂および吸水率が異なる 2 種以上のハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物を提供する。



WO 2016/175271 A1

明 細 書

発明の名称：封止用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る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。また有機ＥＬ素子の封止に使用する樹脂組成物には、高い水分遮断性が求められる。

[0003] 従来、この種の樹脂組成物としては、高いバリア性と高い接着強度を実現するために、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム等の吸湿性金属酸化物の粒子を樹脂組成物に含有させることが提案されている（例えば、特許文献１）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献１：特開２０１１－８４６６７号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、水分遮断性を長時間維持することができる封止用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、上記の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熱硬化性樹脂組成物において、吸水率の異なる２種以上のハイドロタルサイトを配合することにより、封止用樹脂組成物の吸水性が長時間に渡って維持され、封止された素子の水分による劣化を抑制し、素子寿命を大きく延長し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0007] すなわち、本発明は以下の特徴を有する。

[１] 熱硬化性樹脂および吸水率が異なる２種以上のハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0008] [２] 吸水率が飽和吸水率である、上記[１]記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[３] 飽和吸水率がハイドロタルサイトを温度６０℃、相対湿度９０％、２００時間の条件で測定される吸水率である、上記[２]記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[４] 熱硬化性樹脂組成物に含まれる最も吸水率の高いハイドロタルサイトと最も吸水率の低いハイドロタルサイトの飽和吸水率の差が５質量％以上である、上記[２]または[３]に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0009] [５] 飽和吸水率が２５質量％以上１００質量％以下であるハイドロタルサイトを少なくとも１種含む、上記[２]～[４]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0010] [６] 飽和吸水率が２５質量％以上１００質量％以下であるハイドロタルサイト（以下「第１の高吸水性ハイドロタルサイト」と記載することがある。）を少なくとも１種および飽和吸水率が１質量％以上２５質量％未満であるハイドロタルサイト（以下「第１の低吸水性ハイドロタルサイト」と記載することがある。）を少なくとも１種含む、上記[２]～[４]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0011] [７] 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも１種の第１の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも１種の第１の低吸水性ハイドロタルサイ

トからなる上記〔６〕記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0012] 〔８〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が３０質量％以上１００質量％以下である、上記〔６〕または〔７〕に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔９〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が３５質量％以上１００質量％以下である、上記〔６〕または〔７〕に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔１０〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が４０質量％以上１００質量％以下である、上記〔６〕または〔７〕に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0013] 〔１１〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が４質量％以上２５質量％未満である、上記〔６〕～〔１０〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔１２〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が５質量％以上２５質量％未満である、上記〔６〕～〔１０〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔１３〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が１０質量％以上２５質量％未満である、上記〔６〕～〔１０〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔１４〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が１５質量％以上２５質量％未満である、上記〔６〕～〔１０〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0014] 〔１５〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が２５～８５質量％である、上記〔６〕～〔１４〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔１６〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が３０～８０質量％である、上記〔６〕～〔１４〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[17] 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が40～75質量%である、上記[6]～[14]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[18] 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が50～70質量%である、上記[6]～[14]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0015] [19] 飽和吸水率が50質量%以上100質量%以下であるハイドロタルサイト（以下「第2の高吸水性ハイドロタルサイト」と記載することがある。）を少なくとも1種および飽和吸水率が1質量%以上45質量%未満であるハイドロタルサイト（以下「第2の低吸水性ハイドロタルサイト」と記載することがある。）を少なくとも1種含む、上記[2]～[4]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0016] [20] 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトからなる上記[19]記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0017] [21] 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が55質量%以上100質量%以下である、上記[19]または[20]に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[22] 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が60質量%以上100質量%以下である、上記[19]または[20]に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0018] [23] 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が5質量%以上45質量%未満である、上記[19]～[22]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[24] 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が10質量%以上45質量%未満である、上記[19]～[22]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[25] 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が15質量%以

上45質量%未満である、上記〔19〕～〔22〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0019] 〔26〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が25～85質量%である、上記〔19〕～〔25〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔27〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が30～85質量%である、上記〔19〕～〔25〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔28〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が40～85質量%である、上記〔19〕～〔25〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔29〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が50～85質量%である、上記〔19〕～〔25〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0020] 〔30〕 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、1～50質量%のハイドロタルサイトを含む、上記〔1〕～〔29〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔31〕 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、2～40質量%のハイドロタルサイトを含む、上記〔1〕～〔29〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔32〕 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、5～40質量%のハイドロタルサイトを含む、上記〔1〕～〔29〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔33〕 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、10～40質量%のハイドロタルサイトを含む、上記〔1〕～〔29〕のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

〔34〕 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、15～40質量%のハイドロタルサイトを含む、上記〔1〕～〔29〕のいずれ

かに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[35] 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分100質量%に対し、15～35質量%のハイドロタルサイトを含む、上記[1]～[29]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0021] [36] 熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を含む、上記[1]～[35]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[37] 硬化剤をさらに含む、上記[1]～[36]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[38] さらに熱可塑性樹脂を含む、上記[1]～[37]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[39] さらに無機充填剤（ハイドロタルサイトを除く）を含む、上記[1]～[38]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[40] 有機EL素子を封止するために用いられる、上記[1]～[39]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

[0022] [41] 上記[1]～[40]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シート。

[42] 有機EL素子を封止するために用いられる、上記[41]記載の封止用シート。

[0023] [43] 上記[1]～[40]のいずれかに記載の封止用熱硬化性樹脂組成物で有機EL素子が封止された有機ELデバイス。

[0024] [44] 熱硬化性樹脂およびハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物の製造方法であって、熱硬化性樹脂を含む組成物に、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを添加する工程を含む、製造方法。

[45] 熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シートの製造方法であって、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを含む熱硬化性樹脂組成物ワニス調製する工程、および該ワニスを支持体上に塗布、乾燥して熱硬化性樹脂組成物層を形成する工程を含む、製造方法。

[0025] [46] 吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトが、少なくとも1

種の第1の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第1の低吸水性ハイドロタルサイトである、上記[44]または[45]に記載の製造方法。

[0026] [47] 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第1の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第1の低吸水性ハイドロタルサイトからなる上記[46]に記載の製造方法。

[0027] [48] 第1の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が30質量%以上100質量%以下である、上記[46]または[47]に記載の製造方法。

[49] 第1の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が35質量%以上100質量%以下である、上記[46]または[47]に記載の製造方法。

[50] 第1の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が40質量%以上100質量%以下である、上記[46]または[47]に記載の製造方法。

[0028] [51] 第1の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が4質量%以上25質量%未満である、上記[46]～[50]のいずれかに記載の製造方法。

[52] 第1の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が5質量%以上25質量%未満である、上記[46]～[50]のいずれかに記載の製造方法。

[53] 第1の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が10質量%以上25質量%未満である、上記[46]～[50]のいずれかに記載の製造方法。

[54] 第1の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が15質量%以上25質量%未満である、上記[46]～[50]のいずれかに記載の製造方法。

[0029] [55] 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイ

トの割合が25～85質量%である、上記〔46〕～〔54〕のいずれかに記載の製造方法。

〔56〕 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が30～80質量%である、上記〔46〕～〔54〕のいずれかに記載の製造方法。

〔57〕 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が40～75質量%である、上記〔46〕～〔54〕のいずれかに記載の製造方法。

〔58〕 全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が50～70質量%である、上記〔46〕～〔54〕のいずれかに記載の製造方法。

[0030] 〔59〕 吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトである、上記〔44〕または〔45〕に記載の製造方法。

[0031] 〔60〕 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトからなる上記〔59〕に記載の製造方法。

[0032] 〔61〕 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が55質量%以上100質量%以下である、上記〔59〕または〔60〕に記載の製造方法。

〔62〕 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が60質量%以上100質量%以下である、上記〔59〕または〔60〕に記載の製造方法。

[0033] 〔63〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が5質量%以上45質量%未満である、上記〔59〕～〔62〕のいずれかに記載の製造方法。

〔64〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が10質量%以

上45質量%未満である、上記〔59〕～〔62〕のいずれかに記載の製造方法。

〔65〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が15質量%以上45質量%未満である、上記〔59〕～〔62〕のいずれかに記載の製造方法。

[0034] 〔66〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が25～85質量%である、上記〔59〕～〔65〕のいずれかに記載の製造方法。

〔67〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が30～85質量%である、上記〔59〕～〔65〕のいずれかに記載の製造方法。

〔68〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が40～85質量%である、上記〔59〕～〔65〕のいずれかに記載の製造方法。

〔69〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が50～85質量%である、上記〔59〕～〔65〕のいずれかに記載の製造方法。

[0035] 〔70〕 ハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物の水分遮断性を改良する方法であって、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを併用することを特徴とする方法。

〔71〕 ハイドロタルサイトを含む熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シートの水分遮断性を改良する方法であって、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを併用することを特徴とする方法。

[0036] 〔72〕 吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第1の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第1の低吸水性ハイドロタルサイトである、上記〔70〕または〔71〕に記載の方法。

[0037] 〔73〕 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第1の高吸水性

ハイドロタルサイトおよび少なくとも１種の第１の低吸水性ハイドロタルサイトからなる上記〔７２〕記載の方法。

[0038]〔７４〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が３０質量％以上１００質量％以下である、上記〔７２〕または〔７３〕に記載の方法。

〔７５〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が３５質量％以上１００質量％以下である、上記〔７２〕または〔７３〕に記載の方法。

〔７６〕 第１の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が４０質量％以上１００質量％以下である、上記〔７２〕または〔７３〕に記載の方法。

[0039]〔７７〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が４質量％以上２５質量％未満である、上記〔７２〕～〔７６〕のいずれかに記載の方法。

〔７８〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が５質量％以上２５質量％未満である、上記〔７２〕～〔７６〕のいずれかに記載の方法。

〔７９〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が１０質量％以上２５質量％未満である、上記〔７２〕～〔７６〕のいずれかに記載の方法。
。

〔８０〕 第１の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が１５質量％以上２５質量％未満である、上記〔７２〕～〔７６〕のいずれかに記載の方法。
。

[0040]〔８１〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が２５～８５質量％である、上記〔７２〕～〔８０〕のいずれかに記載の方法。

〔８２〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が３０～８０質量％である、上記〔７２〕～〔８０〕のいずれかに記載の方法。

〔８３〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が４０～７５質量％である、上記〔７２〕～〔８０〕のいずれかに記載の方法。

〔８４〕 全てのハイドロタルサイト中の第１の高吸水性ハイドロタルサイ

トの割合が50～70質量%である、上記〔72〕～〔80〕のいずれかに記載の方法。

[0041] 〔85〕 吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトである、上記〔70〕または〔71〕に記載の方法。

[0042] 〔86〕 全てのハイドロタルサイトが、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトからなる上記〔85〕に記載の方法。

[0043] 〔87〕 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が55質量%以上100質量%以下である、上記〔85〕または〔86〕に記載の方法。

〔88〕 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が60質量%以上100質量%以下である、上記〔85〕または〔86〕に記載の方法。

[0044] 〔89〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が5質量%以上45質量%未満である、上記〔85〕～〔88〕のいずれかに記載の方法。

〔90〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が10質量%以上45質量%未満である、上記〔85〕～〔88〕のいずれかに記載の方法。

〔91〕 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率が15質量%以上45質量%未満である、上記〔85〕～〔88〕のいずれかに記載の方法。

[0045] 〔92〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が25～85質量%である、上記〔85〕～〔91〕のいずれかに記載の方法。

〔93〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が30～85質量%である、上記〔85〕～〔91〕のいずれかに記載の方法。

〔94〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイ

トの割合が40～85質量%である、上記〔85〕～〔91〕のいずれかに記載の方法。

〔95〕 全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合が50～85質量%である、上記〔85〕～〔91〕のいずれかに記載の方法。

発明の効果

〔0046〕 本発明によれば、より長時間、水分遮断性が維持される封止用熱硬化性樹脂組成物および封止用フィルムを得ることができる。したがって、本発明の封止用熱硬化性樹脂組成物を例えば有機EL素子等の水分に弱い素子の封止に使用すれば、より長時間に渡って水分遮断性が維持され、素子の水分による劣化をより長時間抑制し、素子寿命を大きく延長し得る。

発明を実施するための形態

〔0047〕 本発明は、以下のものを提供する：

（1）吸水率が異なる2種以上のハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物；

（2）前記の封止用熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シート；

（3）前記の封止用熱硬化性樹脂組成物で有機EL素子が封止された有機ELデバイス；

（4）熱硬化性樹脂を含む組成物に、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを添加する工程を含む封止用熱硬化性樹脂組成物の製造方法；

（5）吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを含む熱硬化性樹脂組成物ワニスを調製する工程、および該ワニスを支持体上に塗布、乾燥して熱硬化性樹脂組成物層を形成する工程を含む、封止用シートの製造方法；

（6）吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを併用する、封止用熱硬化性樹脂組成物の水分遮断性を改良する方法；および

（7）吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを併用する、封止用シートの水分遮断性を改良する方法。

以下、本発明をその好適な実施形態に即して詳しく説明する。

[0048] [ハイドロタルサイト]

本発明における「ハイドロタルサイト」は、吸水性を有するものであれば特に限定されない。ハイドロタルサイトとしては、例えば天然のハイドロタルサイト ($Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$) および／または合成のハイドロタルサイト (ハイドロタルサイト様化合物) を挙げることができるが、吸湿剤として使用する場合、一般には、吸水性を向上させるためにハイドロタルサイトを焼成処理して化学構造中のOH量を減少させるか、または消失させた焼成ハイドロタルサイトが好ましく用いられる。本発明における「ハイドロタルサイト」には、これら焼成ハイドロタルサイトも含まれる。好ましいハイドロタルサイトは、例えば、下記一般式(Ⅰ)で表される合成ハイドロタルサイトの焼成体、下記一般式(ⅠⅠ)で表される合成ハイドロタルサイトの焼成体等が挙げられる。

[0049] 式(Ⅰ) : $[M^{2+}_{1-x}M^{3+}_x(OH)_2]^{x+} \cdot [(A^{n-})_{x/n} \cdot mH_2O]^x -$

(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、 $0 \leq m < 1$ であり、nは正の数である。)

[0050] 式(ⅠⅠ) : $M^{2+}_xAl_2(OH)_{2x+6-nz}(A^{n-})_z \cdot mH_2O$

(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価のアニオンを示し、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。)

[0051] 市販されているハイドロタルサイトとしては、例えば協和化学工業社製のKWシリーズ(KW-2000、KW-2100、KW-2200)、DHTシリーズ(DHT-4、DHT-4A2、DHT-4C)等が挙げられる。

[0052] 本発明におけるハイドロタルサイトの平均粒子径は樹脂組成物の透明性を

向上させる観点から $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下が好ましい。なお、平均粒子径とは、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。また、本発明におけるハイドロタルサイトとしては、粉碎により平均粒子径が $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下に微粒化したものを用いることもできる。混練時の分散性およびワニス粘度の観点から、ハイドロタルサイトの平均粒子径は 10 nm 以上が好ましい。微粒化したハイドロタルサイトの平均粒子径は測定が困難な場合があるため、BET比表面積を測定することにより、透明性の観点からより好ましいハイドロタルサイトを選択することもできる。

[0053] 本発明におけるハイドロタルサイトとしては、例えば、透明性、吸水性等の観点から、好ましくはBET比表面積が $5\sim 200\text{ m}^2/\text{g}$ であるハイドロタルサイトを用いることが好ましい。このBET比表面積は、より好ましくは $20\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より一層好ましくは $40\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、さらに好ましくは $60\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、特に好ましくは $80\text{ m}^2/\text{g}$ 以上である。このBET比表面積は、より好ましくは $180\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より一層好ましくは $160\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、さらに好ましくは $140\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。この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多点法を用いて比表面積を算出することで得られる。ハイドロタルサイトは、例えば粉碎により微粒化することで、比表面積が大きい粒状物に調製することができる。ハイドロタルサイトは、焼成時の水分子の気化によって多孔質化するため、大きな比表面積が得られやすい。なお、ハイドロタルサイトの比表面積は、焼成条件（温度、時間）、粉碎による微粒化等によって調整できる。

[0054] 本発明の熱硬化性樹脂組成物における全てのハイドロタルサイトの含有量合計は、熱硬化性樹脂組成物の不揮発分 $100\text{ 質量}\%$ に対して、 $1\sim 50\text{ 質量}\%$ が好ましく、 $2\sim 40\text{ 質量}\%$ がより好ましく、 $5\sim 35\text{ 質量}\%$ がさらに好ましい。この含有量合計が少なすぎると、樹脂組成物の封止層が水分遮断性を維持する時間が低下する傾向となり、多すぎると、封止層の透過率が低

下する傾向となる。

[0055] 本発明におけるハイドロタルサイトは表面処理剤で処理されたものを用いてもよい。表面処理剤としては公知のものを用いることができ、例えば、ステアリン酸、パルミチン酸、ミリスチン酸、オレイン酸、リノレイン酸等の炭素数8～22の脂肪酸、これら脂肪酸の誘導体であるトリグリセリド、ジグリセリド、モノグリセリド等の脂肪酸エステル、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド等の脂肪酸アミド、チタン系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤、シランカップリング剤等のカップリング剤、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等のアルキルシラン類などを挙げることができる。

[0056] 表面処理は、例えば、未処理の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（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、ボールミルなどで吸湿材を粉碎する際に、前記の表面処理剤を混合し、表面処理する方法も可能である。表面処理剤の処理量は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、ハイドロタルサイト100質量部に対して、1～10質量部が好ましく、1～5質量部がより好ましい。

[0057] 本発明の封止用熱硬化性樹脂組成物は、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを含む。本発明におけるハイドロタルサイトの吸水率は、下記式：

$$\text{吸水率（質量％）} = \left(\frac{\text{（吸湿後の質量－初期質量）}}{\text{初期質量}} \right) \times 100$$

で定義される。ここで、「吸湿後の質量」とは、ハイドロタルサイトを大気圧下、60℃、90％RH（相対湿度）の条件で一定時間保持した後のハイドロタルサイトの質量を意味し、「初期質量」とは、吸湿させる前のハイド

ロタルサイトの質量を意味する。

- [0058] ハイドロタルサイトの吸水率の相違は、飽和吸水率で判断するのが好ましい。本発明者らの知見によれば、1.5 gのハイドロタルサイトを大気圧下、温度60℃、相対湿度90%の条件で200時間放置した場合、ほとんどのハイドロタルサイトの吸水率がほぼ飽和状態となった。すなわち、1.5 gのハイドロタルサイトを、大気圧下、温度60℃、相対湿度90%の条件で50時間、110時間、200時間、400時間経過後の吸水率を測定し、200時間から400時間の間の吸水率の変化が、測定した全てのハイドロタルサイトで5%以内であった。よって、本発明におけるハイドロタルサイトの飽和吸水率は、大気圧下、温度60℃、相対湿度90%の条件で200時間保持した後のハイドロタルサイトの、初期質量に対する質量増加率として求めることができる。言い換えると、本発明におけるハイドロタルサイトの飽和吸水率は、下記式：

$$\text{飽和吸水率（質量％）} = \left(\left(\text{飽和吸湿後の質量} - \text{初期質量} \right) / \text{初期質量} \right) \times 100$$

で定義される。ここで、「飽和吸湿後の質量」とは、大気圧下、温度60℃、相対湿度90%の条件で200時間保持した後のハイドロタルサイトの質量を意味する。

- [0059] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、ハイドロタルサイトの飽和吸水率の差が5質量%以上である少なくとも2種のハイドロタルサイトを含むことが好ましい。この場合、熱硬化性樹脂組成物に含まれる最も吸水率の高いハイドロタルサイトと最も吸水率の低いハイドロタルサイトの飽和吸水率の差が5質量%以上であればよく、さらに他のハイドロタルサイトが含まれる場合、その吸水率の値は特に限定されない。この飽和吸水率の差は、好ましくは10質量%以上、より好ましくは15質量%以上である。上限は特に限定されないが、この飽和吸水率の差は、好ましくは80質量%以下、より好ましくは70質量%以下、より好ましくは65質量%以下、より好ましくは60質量%以下、より好ましくは50質量%以下、より好ましくは40質量%以下、

さらに好ましくは30質量%以下である。

[0060] 本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる最も飽和吸水率の高いハイドロタルサイトの飽和吸水率は、25質量%以上であるのが好ましく、30質量%以上であるのがより好ましく、35質量%以上であるがより一層好ましく、40質量%以上であるのがさらに好ましく、50質量%以上であるのがさらに一層好ましく、55質量%以上であるのが特に好ましく、60質量%以上であることが最も好ましい。この上限は特に設定されないが、この飽和吸水率は、一般には100質量%以下である。

[0061] 本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる、最も飽和吸水率の低いハイドロタルサイトの飽和吸水率は、1質量%以上であるのが好ましく、4質量%以上であるのがより好ましく、5質量%以上であるのがより一層好ましく、10質量%以上であるのがさらに好ましく、15質量%以上であるのが特に好ましい。この飽和吸水率は、45質量%未満であるのが好ましく、25質量%未満であるのがより好ましい。

[0062] ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、ハイドロタルサイトの焼成処理の程度により適宜調整することができ、例えば、高温で長時間焼成処理をすることにより、飽和吸水率の高いハイドロタルサイトを調製することができる。

[0063] 本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる全てのハイドロタルサイトの含有量合計は、熱硬化性樹脂組成物中の不揮発分100質量%に対して、1～50質量%の範囲が好ましく、2～40質量%の範囲がより好ましく、5～40質量%の範囲がより一層好ましく、10～40質量%の範囲が更に好ましく、15～40質量%の範囲が更に一層好ましく、15～35質量%の範囲が殊更好ましい。この含有量合計が少なすぎると、ハイドロタルサイトを配合することの効果十分に得られず、この含有量合計が多すぎると、組成物の粘度が上昇する傾向や、熱硬化性樹脂組成物から得られる硬化物の強度が低下して脆くなる傾向となる。

[0064] 本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる全てのハイドロタルサイト中の最も飽和吸水率の高いハイドロタルサイトの割合は、好ましくは25質量%以

上、より好ましくは30質量%以上、さらに好ましくは40質量%以上、特に好ましくは50質量%以上であり、好ましくは85質量%以下、より好ましくは80質量%以下、さらに好ましくは75質量%以下、特に好ましくは70質量%以下である。

[0065] 一つの態様（以下「第1の態様」と記載する）において、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、飽和吸水率が25質量%以上100質量%以下であるハイドロタルサイト（即ち、第1の高吸水性ハイドロタルサイト）を少なくとも1種および飽和吸水率が1質量%以上25質量%未満であるハイドロタルサイト（即ち、第1の低吸水性ハイドロタルサイト）を少なくとも1種含むことが好ましい。

[0066] 第1の態様の態様において、本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる全てのハイドロタルサイトは、少なくとも1種の第1の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第1の低吸水性ハイドロタルサイトからなることが好ましい。

[0067] 第1の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、好ましくは30質量%以上100質量%以下であり、より好ましくは35質量%以上100質量%以下である。

[0068] 第1の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、好ましくは4質量%以上25質量%未満、より好ましくは5質量%以上25質量%未満、さらに好ましくは10質量%以上25質量%未満、特に好ましくは15質量%以上25質量%未満である。

[0069] 第1の態様において、全てのハイドロタルサイト中の第1の高吸水性ハイドロタルサイトの割合は、好ましくは25～85質量%、より好ましくは30～80質量%、さらに好ましくは40～75質量%、特に好ましくは50～70質量%である。

[0070] 一つの実施態様（以下「第2の態様」と記載する）において、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、飽和吸水率が50質量%以上100質量%以下であるハイドロタルサイト（即ち、第2の高吸水性ハイドロタルサイト）を少なく

とも1種および飽和吸水率が1質量%以上45質量%未満であるハイドロタルサイト（即ち、第2の低吸水性ハイドロタルサイト）を少なくとも1種含むことが好ましい。

[0071] 上述の第1の態様および第2の態様には、重複する範囲および重複しない範囲が含まれる。例えば、飽和吸水率が60質量%であるハイドロタルサイトおよび飽和吸水率が20質量%であるハイドロタルサイトを含有する熱硬化性樹脂組成物は、第1の態様および第2の態様のいずれにも包含される。一方、例えば、飽和吸水率が60質量%であるハイドロタルサイトおよび飽和吸水率が40質量%であるハイドロタルサイトを含有する熱硬化性樹脂組成物は、第1の態様に包含されないが、第2の態様に包含される。これらはいずれも、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを使用するという点で、本発明の一態様である。

[0072] 第2の態様において、本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる全てのハイドロタルサイトは、少なくとも1種の第2の高吸水性ハイドロタルサイトおよび少なくとも1種の第2の低吸水性ハイドロタルサイトからなることが好ましい。

[0073] 第2の高吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、好ましくは55質量%以上100質量%以下であり、より好ましくは60質量%以上100質量%以下である。

[0074] 第2の低吸水性ハイドロタルサイトの飽和吸水率は、好ましくは5質量%以上45質量%未満、より好ましくは10質量%以上45質量%未満、さらに好ましくは15質量%以上45質量%未満である。

[0075] 第2の態様において、全てのハイドロタルサイト中の第2の高吸水性ハイドロタルサイトの割合は、好ましくは25～85質量%、より好ましくは30～85質量%、さらに好ましくは40～85質量%、特に好ましくは50～85質量%である。

[0076] [熱硬化性樹脂組成物]

本発明における熱硬化性樹脂組成物は、熱硬化性樹脂として、好ましくは

エポキシ樹脂を含有する。また好ましくは硬化剤を含有する。エポキシ樹脂および硬化剤に特に限定は無く、W0 2010/084938 に記載のもの等、従来公知のものを使用することができる。熱硬化性樹脂組成物は、さらに熱可塑性樹脂を含有していてもよい。

[0077] エポキシ樹脂は、平均して1分子当り2個以上のエポキシ基を有し、かつ、透過率の高いものであれば制限なく使用できる。例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、水添ビスフェノール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、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、トリグリシジルー-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、脂肪族鎖状エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、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、ハロゲン化物および水素添加物等が挙げられる。かかるエポキシ樹脂はいずれか1種を使用するか2種以上を混合して用いることができる。

[0078] 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、より好ましくは80～2,000、より好ましくは100～1,000、より好ましくは120～1,000、より好ましくは140～300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/e q）であり、JIS K 7236に規定された方法に従って測定される。

[0079] 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。

[0080] エポキシ樹脂は、中でも、透過率が80%以上のものが好ましく、透過率が85%以上のものがより好ましく、透過率が90%以上のものがさらに好ましい。かかる好適なエポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、脂肪族鎖状エポキシ樹脂等を挙げることができる。

[0081] なお、本発明でいう透過率とは、全光線透過率を指し、材料を通して明るさがどの程度伝わるかを調べる目的で測定される反射や散乱を考慮した光線透過率である。入射光には可視光線や紫外線を利用し、透過した光を積分球で集める方法で測定される。具体的にはファイバー式分光光度計（例えばMCPD-7700、大塚電子社製）を用いて、試料（絶縁層厚20 μ m）にハロゲンランプの入射光を照射し、8°投光の ϕ 60mm積分球にて収光された全光線透過率スペクトルの450nmの値を、空気をリファレンスとして測定した値を、本発明における透過率とすることができる。

[0082] エポキシ樹脂は、液状であっても、固形状であっても、液状と固形状の両方を用いてもよい。ここで、「液状」および「固形状」とは、常温（25℃）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少なくとも10質量%以上が液状であるのが好ましい。主剤である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特に好ましい態様は液状と固形状の併用であり、液状エポキシ樹脂と固形状エポキシ樹脂の割合（液状エポキシ樹脂：固形状エポキシ樹脂）が、質量比で、1：2～1：0が好ましく、1：1～1：0.1がより好ましい。

[0083] 本発明における熱硬化性樹脂組成物におけるエポキシ樹脂の含有量は、樹脂組成物（不揮発分）全体あたり、20～80質量%が好ましく、30～70質量%の範囲であるのがより好ましく、50～65質量%の範囲であるのがさらに好ましい。

[0084] 本発明における熱硬化性樹脂組成物は、好ましくは、エポキシ樹脂の硬化

剤を含有する。すなわち、封止層は、樹脂組成物層を硬化させた硬化物層として得られる。硬化剤はエポキシ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が、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、140℃以下（好ましくは120℃以下）の温度下でエポキシ樹脂を硬化し得るものが好ましい。

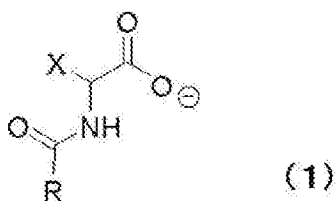
[0085] 硬化剤としては、例えば、一級アミン、二級アミン、三級アミン系硬化剤、ポリアミノアミド系硬化剤、ジシアンジアミド、有機酸ジヒドラジド等が挙げられるが、中でも、速硬化性の点から、アミンアダクト系化合物（アミキュアPN-23、アミキュアMY-24、アミキュアPN-D、アミキュアMY-D、アミキュアPN-H、アミキュアMY-H、アミキュアPN-31、アミキュアPN-40、アミキュアPN-40J等（いずれも味の素ファインテクノ社製））、有機酸ジヒドラジド（アミキュアVDH-J、アミキュアUDH、アミキュアLDH等（いずれも味の素ファインテクノ社製））等が特に好ましい。

[0086] また、140℃以下（好ましくは120℃以下）の温度下で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、エポキシ樹脂の硬化作用を有する塩も特に好適に使用することができる。本発明における熱硬化性樹脂組成物においては、エポキシ樹脂に当該イオン液体を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、イオン液体は樹脂硬化物の水分遮断性向上に有利に作用する。

[0087] かかる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。

[0088] また、かかる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 -リボ酸イオン、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。

[0089] [化1]



[0090] （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。）

[0091] 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、フェニルアラニンなどが挙げられ、中でも、グリシンが好ましい。

[0092] 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。

[0093] 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。

[0094] 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、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。

[0095] 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トート、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、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。

[0096] 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 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Na}$ や $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ 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、更に有機溶媒(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。

[0097] 本発明の熱硬化性樹脂組成物において、硬化剤の含有量は、樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂の総量(不揮発分)に対し、0.1~50質量%の範囲で使用されるのが好ましい。この範囲よりも少ないと十分な硬化性が得られない恐れがあり、50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、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、エポキシ樹脂の総量（不揮発分）に対し 0.1 ～ 10 質量%が好ましい。

[0098] 本発明における熱硬化性樹脂組成物は、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。硬化促進剤としては、例えば、有機ホスフィン化合物、イミダゾール化合物、アミンアダクト化合物（例えば、エポキシ樹脂に 3 級アミンを付加させて反応を途中で止めているエポキシアダクト化合物等）、3 級アミン化合物などが挙げられる。有機ホスフィン化合物の具体例としては、TPP、TPP-K、TPP-S、TPTP-S（北興化学工業社製）などが挙げられる。イミダゾール化合物の具体例としては、キュアゾール 2MZ、2E4MZ、C11Z、C11Z-CN、C11Z-CNS、C11Z-A、2MZOK、2MA-OK、2PHZ（四国化成工業社製）などが挙げられる。アミンアダクト化合物の具体例としては、フジキュア（富士化成工業社製）などが挙げられる。3 級アミン化合物の具体例としては、DBU（1,8-diazabicyclo[5.4.0]undec-7-ene）、DBU の 2-エチルヘキサン酸塩、オクチル酸塩などの DBU-有機酸塩、U-3512T（サンアプロ社製）等の芳香族ジメチルウレア、U-3503N（サンアプロ社製）等の脂肪族ジメチルウレアなどが挙げられる。中でも耐湿性の点からウレア化合物が好ましく、芳香族ジメチルウレアが特に好ましく用いられる。本発明の樹脂組成物において、硬化促進剤の含有量は、樹脂組成物中に含まれるエポキシ樹脂の総量（不揮発分）に対し、通常 0.05 ～ 5 質量%の範囲で使用される。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必要となる傾向にあり、5 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。

[0099] 本発明の熱構成樹脂組成物はシランカップリング剤を含有していてもよい。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1,1-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。シランカップリング剤は1種または2種以上を使用することができる。

[0100] 本発明の熱硬化性樹脂組成物におけるシランカップリング剤の含有量は、樹脂組成物(不揮発分)全体あたり、0.5～10質量%が好ましく、0.5～5質量%がより好ましい。

[0101] 本発明の熱硬化性樹脂組成物には、熱硬化性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、熱可塑性樹脂を含有させることができる。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、ポリスルホン樹脂等を挙げることができる。これらの熱可塑性樹脂はいずれか1種を使用しても2種以上を混合して用いてもよい。熱可塑性樹脂は、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、重量平均分子量が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、重量平均分子量が大きすぎると、エポキシ樹脂との相溶性が低下する等の傾向があることから、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。

[0102] 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社製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。

[0103] 本発明の熱硬化性樹脂組成物が熱可塑性樹脂を含む場合、熱可塑性樹脂は上述した例示物の中でもフェノキシ樹脂が特に好ましい。フェノキシ樹脂はエポキシ樹脂との相溶性が良く、樹脂組成物の透明性、水分遮断性に有利に作用する。フェノキシ樹脂は、エポキシ基を有し得る。フェノキシ樹脂のエポキシ当量は、好ましくは5,000超16,000以下、より好ましくは10,000以上16,000以下である。

[0104] また、フェノキシ樹脂は、透過率が80%以上のものが好ましく、透過率が90%以上のものがより好ましい。かかる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、ノルボルネン骨格等から選択される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。

[0105] フェノキシ樹脂の市販品としては、例えば、三菱化学社製YL7213B35（ビフェニル骨格含有フェノキシ樹脂）、1256（ビスフェノールA骨格含有フェノキシ樹脂）、YX6954BH35（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）等を好適に使用することができる。

[0106] 本発明の樹脂組成物において、熱可塑性樹脂の含有量は、樹脂組成物（不揮発分）全体あたり、1～40質量%が好ましく、5～30質量%がより好ましい。

[0107] 本発明の熱硬化性樹脂組成物には、樹脂組成物の水分遮断性、封止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、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。無機充填材としては、例えば、シリカ、アルミナ、硫酸バリウム、クレー、マイカ、雲母、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、ケイ酸塩などが挙げられる。なお、高い透過率を維持する等の観点から、無機充填材は5 μm 以下が好ましく、更には1 μm 以下が好ましい。例えば、一次粒子の粒経が1～100 nmのもの、より好ましくは1～50 nmのもの、さらに好ましくは10～20 nmのもの、とりわけ好ましくは10～15 nmのものをを用いることができる。1 μm 以下となるような無機充填材の1次粒子径の測定は比較的困難な場合があることから、比表面積測定値（JIS Z 8830に準拠）からの換算値が用いられることがある。例えば、ナノ無機充填材は、BET比表面積が2720～27 m²

／gであるもの、好ましくは $2720 \sim 54 \text{ m}^2/\text{g}$ であるもの、より好ましくは $272 \sim 136 \text{ m}^2/\text{g}$ であるもの、より好ましくは $272 \sim 181 \text{ m}^2/\text{g}$ であるものを用いることができる。

[0108] 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、枝分かれした分岐形状を用いることができる。無機充填材は、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、雲母、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、より好ましくは、シリカであり、シリカは、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。

[0109] 無機充填材は、市販品を使用でき、例えば、日産化学工業社製「MEK-EC-2130Y」（アモルファスシリカ粒径 $10 \sim 15 \text{ nm}$ 、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 $10 \sim 15 \text{ nm}$ 、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 $10 \sim 15 \text{ nm}$ 、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「PLE-2L-MEK」（シリカ粒径 $15 \sim 20 \text{ nm}$ 、不揮発分20質量%、MEK（メチルエチルケトン）溶剤）などが挙げられる。

[0110] 本発明において、無機充填材は1種または2種以上を使用できる。本発明の樹脂組成物が無機充填材を含有する場合、無機充填材の含有量は、樹脂組成物（不揮発分）全体あたり、10質量%以下であるのが好ましく、9質量%以下がより好ましい。

[0111] 本発明における熱硬化性樹脂組成物は、さらにその他の添加剤を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剤；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。

[0112] 本発明の樹脂組成物は、配合成分を、必要により溶媒等をさらに加えて、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調製される。

[0113] 本発明の樹脂組成物は、高い透過率を有し得る。形成される封止層（すなわち、樹脂組成物の硬化物）は、好ましくは70%以上、より好ましくは84%以上、さらに好ましくは86%以上の高い透明性を有し得る。

[0114] 本発明の樹脂組成物は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が、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。

[0115] 本発明の熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シートは、当業者に公知の方法、例えば、熱硬化性樹脂組成物が有機溶剤に溶解した熱硬化性樹脂組成物ワニス調製し、該ワニスを支持体上に塗布し、更に加熱、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熱硬化性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。

[0116] 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、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、とくに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、離型処理を施してであってもよい。離型処理としては、例えば、シリコン樹脂系離型剤、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。

[0117] 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。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」等が挙げられる。

[0118] 支持体には、シリコン樹脂系離型剤、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形層を有する場合、該離形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20～200 μm 、より好ましくは20～125 μm である。

[0119] 支持体の厚さは特に限定されないが、樹脂組成物シートの取り扱い性等の観点から、通常10～150 μm であり、好ましくは20～100 μm の範囲で用いられる。

[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。かかる有機溶剤はいずれか1種を単独で使用しても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[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] 乾燥後に形成される樹脂組成物層の厚さは、通常3 μm ～200 μm 、好ましくは5 μm ～100 μm 、更に好ましくは5 μm ～50 μm 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く、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1～150 μ m、好ましくは10～100 μ mの範囲で用いられる。

[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、高い耐防湿性と高い透明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、ポリアミド等のプラスチックフィルムが使用できる。プラスチックフィルムとしては、とくに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）、更に防湿効果を高めたX-BARRIER（三菱樹脂社製）等が挙げられる。封止基材は2層以上の複層構造を有するものを使用しても良い。

[0125] 本発明の封止用熱硬化性樹脂組成物により、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、上記封止用シートの形態で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り、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。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などが挙げられる。硬化温度および硬化時間のそれぞれの下限值は、硬化後の樹脂組成物層（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、硬化温度においては、50℃以上が好ましく、55℃以上がより好ましく、硬化時間においては20分以上が好ましく、30分以上がより好ましい。

[0127] 有機EL素子形成基板が透明基板上に有機EL素子が形成されたものである場合、透明基板側をディスプレイの表示面や照明器具の発光面にすれば、樹脂組成物シートの支持体には必ずしも透明材料を使用する必要はなく、金属板、金属箔、不透明のプラスチックフィルムまたは板等を使用してもよい。逆に有機EL素子形成基板が有機EL素子が不透明または透明性の低い材料からなる基板上に形成されたものである場合、封止基材側をディスプレイの表示面や照明器具の発光面にする必要から、封止基材には、透明プラスチックフィルム、ガラス板、透明プラスチック板等が使用される。

実施例

[0128] 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、「%」は「質量%」を意味する。ハイドロタルサイトは、全て市販されているハイドロタルサイトを使用した。

[0129] <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。テトラブチルホスホニウムヒドロキサイド41.4%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。攪拌後に、40～50 mmHgの圧力で、60～80℃にて2時間、次いで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)14.2 mlに溶解して溶液を調製し、得られた溶液を、40～50 mmHg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11.7 g(純度:96.9%)をオイル状化合物として得た。

[0130] <実施例1>

液状ビスフェノールA型エポキシ樹脂(三菱化学社製「JER828EL」、エポキシ当量約185)42質量部と、シランカップリング剤(信越化学工業社製「KBM403」)1.2質量部と、タルク粉末(日本タルク社製「FG15F」)2質量部と、市販のハイドロタルサイトA(BET比表面積110 m²/g)21質量部と、ハイドロタルサイトB(BET比表面積118 m²/g)5質量部とを混練後、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-3512T」)1.5質量部をフェノキシ樹脂(三菱化学社製「YX7200」、エポキシ当量約12,000)の35%MEK溶液(「YX7200B35」)81質量部に溶解させた混合物に、3本ロールミルにより先に調製した混合物と、固形ビスフェノールA型エポキシ樹脂(三菱化学社製「JER1001」、エポキシ当量約475)の80%MEK溶液(「JER1001B80」)24質量部と、有機溶剤分散型コロイダルシリカ(アモルファスシリカ粒径10～15 nm、不揮発分30%、MEK溶剤、日産化学工業社製「MEK-EC-2130Y」)20質量部と、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質量部とを配合し、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。

[0131] 次に、樹脂組成物ワニスをアルキッド系離型剤で処理されたポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム(厚さ38 μm、支持体)上に、乾燥後の樹脂組成物層の厚さが20 μmとなるようにダイコーターにて均一に塗布し、80～100℃(平均90℃)で5分間乾燥した(樹脂組成物層中の残

留溶媒量：約2％）。次いで、樹脂組成物層の表面に厚さ38 μ mのポリプロピレンフィルムを貼り合わせながらロール状に巻き取った。ロール状の封止用シートを幅507mmにスリットし、507×336mmサイズの封止用シートを得た。

[0132] <実施例2>

実施例1のハイドロタルサイトA 21質量部およびハイドロタルサイトB 5質量部の代わりに、ハイドロタルサイトA 18質量部およびハイドロタルサイトD（BET比表面積15m²/g）9質量部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。

[0133] <実施例3>

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型エポキシ樹脂の液状混合物（新日鐵住金化学社製「ZX1059」、エポキシ当量約165）42質量部と、シランカップリング剤（信越化学工業社製「KBM403」）1.2質量部と、市販のハイドロタルサイトB（BET比表面積118m²/g）22質量部と、ハイドロタルサイトC（BET比表面積68m²/g）22質量部とを混練後、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-3512T」）1.5質量部をフェノキシ樹脂（三菱化学社製「YX7200」、エポキシ当量約12,000）の35%MEK溶液（「YX7200B35」）81質量部に溶解させた混合物に、3本ロールミルにより先に調製した混合物と、固形ビスフェノールA型エポキシ樹脂（三菱化学社製「JER1001」、エポキシ当量約475）の80%MEK溶液（「JER1001B80」）24質量部と、有機溶剤分散型コロイダルシリカ（アモルファスシリカ粒径10～15nm、不揮発分30%、MEK溶剤、日産化学工業社製「MEK-EC-2130Y」）20質量部と、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質量部とを配合し、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。

上述のようにして製造し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。

[0134] <比較例 1>

実施例 1 のハイドロタルサイト A 2 1 質量部およびハイドロタルサイト B 5 質量部の代わりに、ハイドロタルサイト A 2 6 質量部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] <比較例 2>

実施例 3 のハイドロタルサイト B 2 2 質量部およびハイドロタルサイト C 2 2 質量部の代わりに、ハイドロタルサイト B 2 6 質量部を使用したこと以外は実施例 3 と同様にして、封止用シートを得た。

[0136] <ハイドロタルサイトの吸水率の測定>

天秤にて、ハイドロタルサイトの初期質量（約 1.5 g）を測定した。初期質量を測定したハイドロタルサイトを、大気圧下、60℃、90%RH（相対湿度）に設定した小型環境試験器（エスベック社製 SH-222）に一定時間静置し、50時間、110時間、200時間、400時間経過ごとに、その吸湿後の質量を測定した。ハイドロタルサイトの初期質量に対する質量増加率を吸水率とし、下記式により吸水率を計算した。

$$\text{吸水率 (\%)} = ((\text{吸湿後の質量} - \text{初期質量}) / \text{初期質量}) \times 100$$

200時間から400時間の間の吸水率の変化が、測定した全てのハイドロタルサイトで5%以内であったため、200時間の吸水率を飽和吸水率とした。時間毎の吸水率を表 1 に示す。

[0137] [表1]

ハイドロタルサイト	吸水率(%)			
	50hr	110hr	200hr	400hr
A	65.8	65.0	65.7	65.9
B	35.1	38.1	39.7	41.0
C	21.5	21.4	20.9	21.1
D	3.7	3.9	4.3	4.2

[0138] <硬化物の吸水率測定>

各実施例および比較例のアルキッド系離型剤で処理されたPETフィルム

(支持体)の代わりに、シリコン系離型剤で処理されたPETフィルム(東洋紡社製「E0007」)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、封止用シートを得た。得られた封止用シートを110℃および30分で熱硬化させ、支持体を剥離することにより、シート状の硬化物を得た。硬化物を50mm×50mmにカットし(N=2)、精密天秤にて、これらの初期質量を測定した。ウエスに硬化物をはさみ、これらが、崩れないようにビニタイで固定した。寸胴鍋に100℃の沸騰した熱水を準備し、先のビニタイで固定され、ウエスに挟まれた硬化物全体が熱水につかるように沈め、ふたをして1時間静置した。1時間後、硬化物を熱水から取出し、冷水に15分間浸漬して、硬化物を冷却した。冷却後、冷水から硬化物を取出し、ウエスを重ねて硬化物に付着した水を除去した後、これらの吸湿後の質量を精密天秤にて測定した。下記式により吸水率を算出し、N=2の平均値を硬化物の吸水率とした。

$$\text{吸水率}(\%) = ((\text{吸湿後の質量} - \text{初期質量}) / \text{初期質量}) \times 100$$

[0139] <透湿度の測定>

各実施例および比較例のアルキッド系離型剤で処理されたPETフィルム(支持体)の代わりに、シリコン系離型剤で処理されたPETフィルム(東洋紡社製「E0007」)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、封止用シートを得た。得られた封止用シートを110℃および30分で熱硬化させ、支持体を剥離することにより、シート状の硬化物を得た。シャーレに塩化カルシウム7.5gを量り取り、直径60mmの円形にカットした硬化物を透湿カップ(透過面積 $2.826 \times 10^{-3} \text{ m}^2$ (60mmφ))に取り付けた。この時点の硬化物を取り付けた透湿カップの初期質量を精密天秤にて測定した。次いで、60℃、90%RHの恒温試験室に前記透湿カップを24時間静置した後、前記透湿カップの透湿後の質量を精密天秤にて測定した。カップの質量増加(=透湿後の質量-初期質量)を水蒸気の透過量とし、水蒸気の透過量と透過面積の比を透湿度の値とし、膜厚45μm換算における値を算出した(g/m²)。

[0140] <有機EL素子の発光面積減少開始時間の測定>

各実施例および比較例のアルキッド系離型剤で処理されたPETフィルム（支持体）の代わりに、アルミ箔／PET複合フィルム「PETツキAL1N30」（アルミ箔：30 μ m、PET：25 μ m、東海東洋アルミ販売社の商品名）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、封止用シート得た。

[0141] 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（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 ラミッパカーDAISY A4（LPD2325）で貼りあわて、積層体を調製した。得られた積層体を温度110℃で30分間加熱して、その樹脂組成物層を熱硬化して、評価用サンプルを得た。

[0142] 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、カルシウムを含む評価用サンプルを、有機ELデバイスのモデルとして使用した。

[0143] まず、評価用サンプルの端部から蒸着したカルシウムの距離をミットヨ社製 Measuring Microscope MF-Uにより測定し、この値を初期値とした。

[0144] 次いで、温度60℃、90%RHに設定した小型環境試験器（エスベック社製 SH-222）に評価用サンプルを一定時間静置し、一定時間時間ごとに、評価用サンプルの端部からカルシウムまでの距離を測定した。以下のフィックの拡散式：

[0145] [数1]

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

[0146] (式中、 X は、評価用サンプルの端部からカルシウムまでの距離 (mm) を示し、 t は評価用サンプルを小型環境試験器に静置した時間 (hr) を示し、 K は比例定数を示す。)

に基づき、「評価用サンプルの端部からカルシウムまでの距離」と「評価用サンプルを小型環境試験器に静置した時間」から、最小二乗法により理論曲線を引くことで、比例定数 K を算出した。

[0147] 算出した K を用いて、 X が(初期値+0.1 mm)の値となる時間を、発光面積減少開始時間として算出した。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、発光面積減少開始時間は長くなる。

[0148] 実施例1～3並びに比較例1および2の樹脂組成物ワニスを調製するための各成分の配合量、熱硬化性樹脂組成物中の不揮発分100質量%に対するハイドロタルサイト含有量、および上述の測定結果を表2に示す。

[0149]

[表2]

配合量(質量部)	実施 例1	実施 例2	比較 例1	実施 例3	比較 例2
液状ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (JER828EL)	42	42	42		
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 の液状混合物(ZX1059)				41	41
固形ビスフェノールA型エポキシ樹脂 の80% MEK溶液(JER1001B80)	24	24	24	17	17
フェノキシ樹脂の35%MEK溶液 (YX7200B35)	81	81	81	81	81
硬化促進剤 (U-3512T)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
イオン液体硬化剤	3	3	3	3	3
ハイドロタルサイト A	21	18	26		
ハイドロタルサイト B	5			22	26
ハイドロタルサイト C				22	
ハイドロタルサイト D		9			
有機溶剤分散型コロイダル シリカ(MEK-EC2130Y)	20	20	20	20	20
シランカップリング剤 (KBM403)	1.2	1.32	1.2	2.9	1.2
ハイドロタルサイト含有量(%)	実施 例1	実施 例2	比較 例1	実施 例3	比較 例2
ハイドロタルサイト A	16.1	15.3	24.0		
ハイドロタルサイト B	3.8			17.8	24.7
ハイドロタルサイト C				17.8	
ハイドロタルサイト D		7.7			
硬化物の吸水率(%)	9.6	未測定	10.3	6.1	4.4
透湿度(g/m ²)	110	未測定	100	95	89
発光面積減少開始時間(hr)	395	321	299	480	391

[0150] 表2に示す結果から、ハイドロタルサイトAのみを含む比較例1の封止用シートに比べ、実施例1および2の封止用シートは、ハイドロタルサイトAと、これよりも飽和吸水率が低いハイドロタルサイトBまたはDとを併用し、ハイドロタルサイトAの量が少ないに関わらず、発光面積減少開始時間が長い(即ち、水分遮断性を長時間維持し得る)ことが分かる。また、表2に示す結果から、ハイドロタルサイトBのみを含む比較例2の封止用シートに比べ、実施例3の封止用シートは、ハイドロタルサイトBと、これよりも飽和吸水率が低いハイドロタルサイトCとを併用し、ハイドロタルサイトBの量が少ないに関わらず、発光面積減少開始時間が長い(即ち、水分遮断

性を長時間維持し得る）ことが分かる。

産業上の利用可能性

- [0151] 本発明の封止用熱硬化性樹脂組成物および封止用シートは、良好な水分遮断性を長時間維持するため、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。そのため、本発明の封止用熱硬化性樹脂組成物および封止用シートを用いれば、素子寿命が大きく延長された有機ＥＬデバイス等のデバイスを提供することができる。
- [0152] 本願は、日本で出願された特願２０１５－０９１０５２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] 熱硬化性樹脂および吸水率が異なる２種以上のハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項2] 吸水率が飽和吸水率である、請求項１記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項3] 飽和吸水率がハイドロタルサイトを温度 60℃、相対湿度 90%、200時間の条件で測定される吸水率である、請求項２記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項4] 熱硬化性樹脂組成物に含まれる最も吸水率の高いハイドロタルサイトと最も吸水率の低いハイドロタルサイトの飽和吸水率の差が５質量%以上である、請求項２または３に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項5] 飽和吸水率が 25 質量%以上 100 質量%以下であるハイドロタルサイトを少なくとも１種含む、請求項２～４のいずれか１項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項6] 飽和吸水率が 25 質量%以上 100 質量%以下であるハイドロタルサイトを少なくとも１種および飽和吸水率が 1 質量%以上 25 質量%未満であるハイドロタルサイトを少なくとも１種含む、請求項２～４のいずれか１項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項7] 飽和吸水率が 50 質量%以上 100 質量%以下であるハイドロタルサイトを少なくとも１種および飽和吸水率が 1 質量%以上 45 質量%未満であるハイドロタルサイトを少なくとも１種含む、請求項２～４のいずれか１項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項8] 封止用熱硬化性樹脂組成物の不揮発分 100 質量%に対し、１～50 質量%のハイドロタルサイトを含む、請求項１～７のいずれか１項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項9] 熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を含む、請求項１～８のいずれか１項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。

- [請求項10] 硬化剤をさらに含む、請求項1～9のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項11] さらに熱可塑性樹脂を含む、請求項1～10のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項12] さらに無機充填剤（ハイドロタルサイトを除く）を含む、請求項1～11のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項13] 有機EL素子を封止するために用いられる、請求項1～12のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項14] 請求項1～13のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シート。
- [請求項15] 有機EL素子を封止するために用いられる、請求項14項記載の封止用シート。
- [請求項16] 請求項1～13のいずれか1項に記載の封止用熱硬化性樹脂組成物で有機EL素子が封止された有機ELデバイス。
- [請求項17] 熱硬化性樹脂およびハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物の製造方法であって、熱硬化性樹脂を含む組成物に、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを添加する工程を含む、製造方法。
- [請求項18] 熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シートの製造方法であって、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを含む熱硬化性樹脂組成物ワニス調製する工程、および該ワニスを支持体上に塗布、乾燥して熱硬化性樹脂組成物層を形成する工程を含む、製造方法。
- [請求項19] ハイドロタルサイトを含む封止用熱硬化性樹脂組成物の水分遮断性を改良する方法であって、吸水率の異なる2種以上のハイドロタルサイトを併用することを特徴とする方法。
- [請求項20] ハイドロタルサイトを含む熱硬化性樹脂組成物が支持体上に層形成された封止用シートの水分遮断性を改良する方法であって、吸水率の

異なる２種以上のハイドロタルサイトを併用することを特徴とする方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063316

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L63/00(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C09K3/10(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)

C08L1/00-101/14, C08K3/00-13/08

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2011-084667 A (Ajinomoto Co., Inc.), 28 April 2011 (28.04.2011), claims; paragraphs [0027], [0031], [0041], [0052]; example 4 (Family: none)	1-3, 8-20 4-7
A	JP 2012-007086 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 12 January 2012 (12.01.2012), claims; paragraph [0075] (Family: none)	1-20
A	WO 2006/033380 A1 (Asahi Glass Co., Ltd.), 30 March 2006 (30.03.2006), claims; paragraph [0039] (Family: none)	1-20

☒ 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
05 July 2016 (05.07.16)

Date of mailing of the international search report
19 July 2016 (19.07.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063316

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, A	WO 2015/068787 A1 (Ajinomoto Co., Inc.), 14 May 2015 (14.05.2015), claims; paragraphs [0009], [0030], [0036], [0049], [0070] to [0072], [0083], [0091] to [0092] & TW 201522491 A	1-3, 8-20 4-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L63/00(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L1/00-101/14, C08K3/00-13/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

CPlus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2011-084667 A (味の素株式会社) 2011. 04. 28, [特許請求の範囲]、 [0027]、[0031]、[0041]、[0052]、[実施例 4] (ファミリーなし)	1 - 3、8 - 2 0
A		4 - 7
A	JP 2012-007086 A (住友ベークライト株式会社) 2012. 01. 12, [特許 請求の範囲]、[0075] (ファミリーなし)	1 - 2 0
A	WO 2006/033380 A1 (旭硝子株式会社) 2006. 03. 30, [特許請求の範 囲]、[0039] (ファミリーなし)	1 - 2 0

☑ 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

0 5 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

1 9 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 孝泰

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

4 J

6 1 9 1

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
P, X P, A	WO 2015/068787 A1 (味の素株式会社) 2015.05.14, [特許請求の範囲]、[0009]、[0030]、[0036]、[0049]、[0070]-[0072]、[0083]、 [0091]-[0092] & TW 201522491 A	1 - 3、8 - 2 0 4 - 7