

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7610596号
(P7610596)

(45)発行日 令和7年1月8日(2025.1.8)

(24)登録日 令和6年12月24日(2024.12.24)

(51)国際特許分類	F I			
C 0 8 G 59/22 (2006.01)	C 0 8 G	59/22		
C 0 8 G 59/46 (2006.01)	C 0 8 G	59/46		
C 0 9 K 3/10 (2006.01)	C 0 9 K	3/10	B	
	C 0 9 K	3/10	L	

請求項の数 7 (全13頁)

(21)出願番号	特願2022-522278(P2022-522278)	(73)特許権者	520069590
(86)(22)出願日	令和4年4月7日(2022.4.7)		ソリュース先端素材株式会社
(65)公表番号	特表2024-506761(P2024-506761 A)		SOLUS ADVANCED MATERIALS CO., LTD.
(43)公表日	令和6年2月15日(2024.2.15)		大韓民国 5 4 5 8 4 チョルラプク - ド
(86)国際出願番号	PCT/KR2022/005069	(74)代理人	110000729
(87)国際公開番号	WO2023/128068		弁理士法人ユニアス国際特許事務所
(87)国際公開日	令和5年7月6日(2023.7.6)	(72)発明者	キム、ホンソク
審査請求日	令和4年6月2日(2022.6.2)		大韓民国 キョンギ - ド 1 6 8 5 8、ヨ
(31)優先権主張番号	10-2021-0192146		ンイン - シ、スジ - グ、スジ - ロ 1 1
(32)優先日	令和3年12月30日(2021.12.30)		2 ボン - ギル、1 0
(33)優先権主張国・地域又は機関	韓国(KR)	(72)発明者	イム、ジョンテ
			大韓民国 キョンギ - ド 1 6 8 5 8、ヨ
			ンイン - シ、スジ - グ、スジ - ロ 1 1
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物及びこれを含む封止材

(57)【特許請求の範囲】

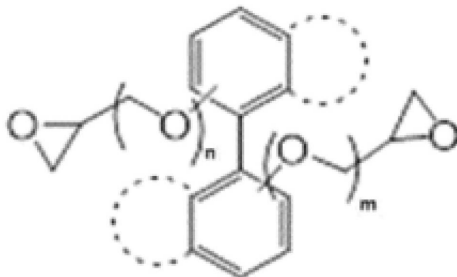
【請求項 1】

下記化学式 1 又は化学式 2 で表される化合物を含む高屈折エポキシ樹脂；下記化学式 3 で表される化合物を含む高接着エポキシ樹脂；希釈エポキシ樹脂；及び硬化遅延剤；を含み、1.61 以上のフィルム屈折率を有し、

前記硬化遅延剤は、アミドカルボン酸 (Amide Carboxylic Acid) であることを特徴とする、高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物；

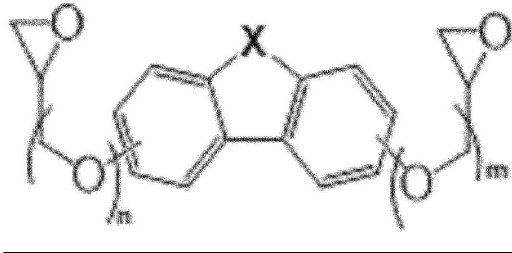
【化 1】

[化学式 1]



【化 2】

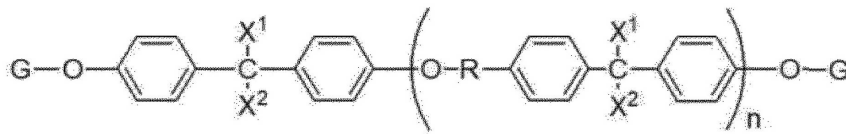
[化学式 2]



10

【化 3】

[化学式 3]



20

前記化学式 1 において、破線で表示された環は、隣接する 6 員環構造に融合した基であり、置換もしくは無置換の C₆ ~ C₆₀ の単環アリール、置換もしくは無置換の C₆ ~ C₆₀ の縮合環アリール、置換もしくは無置換の C₆ ~ C₆₀ のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 C₆ ~ C₆₀ の単環ヘテロアリール基、置換もしくは無置換の C₆ ~ C₆₀ の縮合環ヘテロアリール基のうちいずれか一つであり、

前記化学式 2 において、X 及び Y は、S、O 又は C(R¹)(R²) であり、R¹ 及び R² は、互いに同一でも異なってもよく、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、ニトロ基、C₁ ~ C₄₀ のアルキル基、C₂ ~ C₄₀ のアルケニル基、C₂ ~ C₄₀ のアルキニル基、C₃ ~ C₄₀ のシクロアルキル基、核原子数 3 ~ 40 個のヘテロシクロアルキル基、C₆ ~ C₆₀ のアリール基、核原子数 5 ~ 60 個のヘテロアリール基、C₁ ~ C₄₀ のアルキルオキシ基、C₆ ~ C₆₀ のアリールオキシ基、C₃ ~ C₄₀ のアルキルシリル基、C₆ ~ C₆₀ のアリールシリル基、C₁ ~ C₄₀ のアルキルボロン基、C₆ ~ C₆₀ のアリールボロン基、C₆ ~ C₆₀ のアリールホスファニル基、C₆ ~ C₆₀ のモノ又はジアリールホスフィニル基及び C₆ ~ C₆₀ のアリールアミン基よりなる群から選択されるか、或いは隣接する基と結合して縮合環を形成し、

30

前記化学式 3 において、G はグリシジル基含有有機基であり、X¹ 及び X² はそれぞれ独立して水素又はメチル基であり、n はそれぞれ独立して 1 ~ 10 の整数であり、R は置換もしくは無置換の C₁₀ ~ C₁₀₀ のアルキレン基又はアルケニレン基であり、

40

前記化学式 1 ~ 化学式 2 において、m と n は、それぞれ独立して 0 ~ 4 の整数であるが、いずれも 0 であるのではない。

【請求項 2】

前記高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物は、高屈折エポキシ樹脂 50 ~ 80 重量部、高接着エポキシ樹脂 5 ~ 30 重量部、希釈エポキシ樹脂 10 ~ 50 重量部、及び硬化遅延剤 0.01 ~ 1.0 重量部を含む、請求項 1 に記載の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】

前記希釈エポキシ樹脂は、置換もしくは無置換の炭素数 5 ~ 100 のアルキレン基又はアルケニレン基を含むか、或いはシクロ脂肪族基を含むエポキシ樹脂である、請求項 1 に

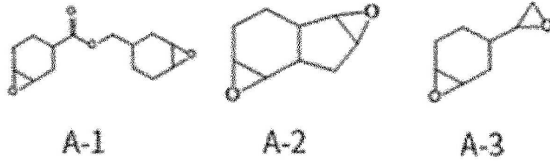
50

記載の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

前記希釈エポキシ樹脂は、下記 A - 1 ~ A - 3 よりなる群から一つ以上選択される化合物を含む、請求項 1 に高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物。

【化 4】



10

【請求項 5】

熱硬化剤をさらに含む、請求項 1 に記載の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 6】

前記熱硬化剤は潜在性熱硬化剤である、請求項 5 に記載の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 7】

請求項 1 に記載の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物を含む、ディスプレイ素子用封止材。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物及びこれを含む封止材に関し、インクジェット或いはディスペンス塗布方法など、低粘度の液体を噴射して隙間を充填して硬化させる様々な方法に適用することができ、硬化の際に光抽出効率に優れるうえ、高接着力及び低アウトガス性を有する、有機もしくは無機発光ディスプレイ画面のガラス部品を接合、モールドすることができる高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物、及びこれを含む封止材に関する。

30

【背景技術】

【0002】

ディスプレイの高集積化、軽薄短小化などのユーザーの要求が変化するにつれて、封止材料は物理的、化学的にその性状と使用方法が変化してきた。従来は、電子ビーム及び蛍光物質入りの陰極線管、エミッタアレイの発光による電界放出ディスプレイ、プラズマガスの光電効果を利用したプラズマディスプレイパネル、液晶の電氣的配列、動きを利用した液晶ディスプレイなどが産業界で広く使われてきたが、ディスプレイ自体の重量問題、動的画面表示の品質問題、発熱、バーンイン現象、高電力消費などの問題により、その性能と寿命が千差万別となってきた。このようなディスプレイの多様な欠点を改善するために、有機発光ディスプレイ装置が既に 80 年代後半から開発されてきた。有機発光ディスプレイは、従来のディスプレイに比べて低い重量を有し、優れた読み取り可能性、コントラスト比を有し、優れた電力効率と応答速度を有する。ところが、当該ディスプレイ装置もバーンイン現象、外部温度又は外部湿度の変化に対する弱点を持つということが知られている。

40

【0003】

従来は、かかる欠点を解決するために、高重量のガラス或いは透明無機物チャンバ内に有機発光ディスプレイ素子を閉じ込めて密封する方法を採用したが、これは、今後、製品の運用性、取り扱い信頼性及び薄型化に大きな問題を引き起こすおそれがある。ユーザーがディスプレイの形状を自由自在に調整するのに液相状態が一番有効である。このため、

50

本発明では、従来の当面課題を解決するために、光抽出効率に優れるうえ、高接着力及び低アウトガス性のディスプレイ素子の開発に利益となる素材を開発した。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明の技術的課題は、インクジェット或いはディスペンス塗布方法など、低粘度の液体を噴射して隙間を充填して硬化させる様々な方法に適用することができ、硬化工程時に低レベルのガス発生が起こり、硬化の際に光抽出効率に優れるうえ、高接着力及び低アウトガス性を有する、有機もしくは無機発光ディスプレイ画面のガラス部品を接合、モールドすることができる高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物、及びこれを含む封止材を提供することにある。

10

【課題を解決するための手段】

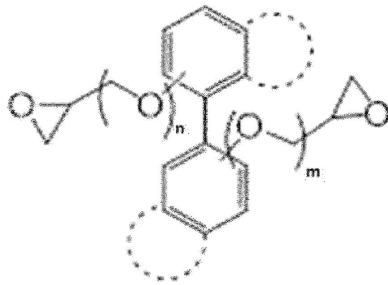
【0005】

上記目的を達成するための本発明の高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物は、下記化学式1又は化学式2で表される化合物を含む高屈折エポキシ樹脂；下記化学式3で表される化合物を含む高接着エポキシ樹脂；希釈エポキシ樹脂；及び硬化遅延剤；を含み、1.61以上のフィルム屈折率を有することを特徴とする。

【0006】

【化1】

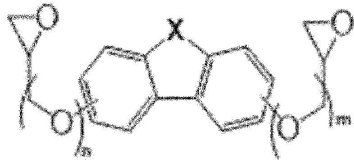
[化学式1]



20

【化2】

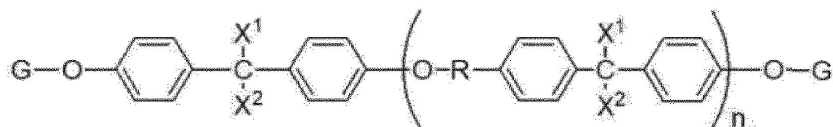
[化学式2]



30

【化3】

[化学式3]



40

【0007】

前記化学式1において、破線で表示された環は、隣接する6員環構造に融合した基であり、置換もしくは無置換のC6~C60の単環アリール(monocyclic aryl)、置換もしくは無置換のC6~C60の縮合環アリール、置換もしくは無置換のC6~C60のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数C6~C60の単環ヘテロアリール基、置換もしくは無置換のC6~C60の縮合環ヘテロアリール基のうちのいずれ

50

か一つであり、

前記化学式 2 において、X 及び Y は、S、O 又は C (R ¹) (R ²) であり、

R ¹ 及び R ² は、互いに同一でも異なってもよく、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、ニトロ基、C 1 ~ C 4 0 のアルキル基、C 2 ~ C 4 0 のアルケニル基、C 2 ~ C 4 0 のアルキニル基、C 3 ~ C 4 0 のシクロアルキル基、核原子数 3 ~ 4 0 個のヘテロシクロアルキル基、C 6 ~ C 6 0 のアリール基、核原子数 5 ~ 6 0 個のヘテロアリール基、C 1 ~ C 4 0 のアルキルオキシ基、C 6 ~ C 6 0 のアリールオキシ基、C 3 ~ C 4 0 のアルキルシリル基、C 6 ~ C 6 0 のアリールシリル基、C 1 ~ C 4 0 のアルキルボロン基、C 6 ~ C 6 0 のアリールボロン基、C 6 ~ C 6 0 のアリールホスファニル基、C 6 ~ C 6 0 のモノ又はジアリールホスフィニル基及び C 6 ~ C 6 0 のアリールアミン基よりなる群から選択されるか、或いは隣接する基と結合して縮合環を形成し、

前記化学式 3 において、G はグリシジル基含有有機基であり、X ¹ 及び X ² はそれぞれ独立して水素又はメチル基であり、n はそれぞれ独立して 1 ~ 1 0 の整数であり、R は置換もしくは無置換の C 1 0 ~ C 1 0 0 のアルキレン基又はアルケニレン基であり、

前記化学式 1 ~ 化学式 2 において、m と n は、それぞれ独立して 0 ~ 4 の整数であるが、いずれも 0 であるのではない。

【 0 0 0 8 】

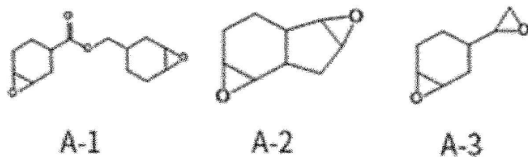
前記高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物は、高屈折エポキシ樹脂 5 0 ~ 8 0 重量部、高接着エポキシ樹脂 5 ~ 3 0 重量部、希釈エポキシ樹脂 1 0 ~ 5 0 重量部、及び熱硬化剤 0 . 5 ~ 5 . 0 重量部を含むことができる。

【 0 0 0 9 】

前記希釈エポキシ樹脂は、置換もしくは無置換の炭素数 5 ~ 1 0 0 のアルキレン基又はアルケニレン基を含むか、或いはシクロ脂肪族 (c y c l o a l i p h a t i c) 基を含むエポキシ樹脂であることができ、より詳しくは、下記 A - 1 ~ A - 3 よりなる群から選択される化合物を含んで製造されるエポキシ樹脂であることができる。

【 0 0 1 0 】

【化 4】



【 0 0 1 1 】

前記熱硬化剤は、潜在性熱硬化剤であり得る。

【 0 0 1 2 】

前記硬化遅延剤は、アミドカルボン酸 (A m i d e C a r b o x y l i c A c i d) であり得る。

【 0 0 1 3 】

上記目的を達成するための別の本発明のディスプレイ素子用封止材は、前記高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物を含むことができる。

【発明の効果】

【 0 0 1 4 】

本発明によれば、従来の液状エポキシ材料が持っている優れた加工性、電氣的・機械的・化学的性質を有し、さらに優れた光学特性を有するので、組成物のユーザーが本材料の使用時に作業性、生産性、信頼性を取得することができる。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 5 】

以下、本発明によるエポキシ樹脂組成物についてより詳細に説明する。

【 0 0 1 6 】

10

20

30

40

50

エポキシ樹脂は、硬化過程を介して、線状構造が3次元的な網状構造を有する代表的熱硬化性樹脂であって、耐熱性、耐食性、接着力、絶縁性などの物性に優れるため、電気電子材料の用途として工業的に極めて重要な位置を占めている。このようなエポキシ樹脂が電気電子材料分野に使用できる主な理由は、i) エポキシ樹脂及びその硬化剤の種類が多様であって、要求される物性を多様に提供することができ、ii) 優れた接着力、機械的性質、耐化学性などの樹脂固有の物性に優れ、iii) 他の熱硬化性樹脂に比べて硬化反応の際に収縮変形が小さく起こり、iv) 1液型製品に適切にフォーミュレーションした場合、2液型製品への作製時に適切な硬化剤を使用した場合、保管寿命 (shelf life) が長く、硬化反応の際に副産物が発生せず、v) トランスファー成形 (transfer molding)、コーティング、キャストイング、手作業塗布などが可能であって複雑な形状を成形することができるため、電気部品のパッケージングに適するからである。

10

【0017】

また、本発明では、下記の高屈折エポキシ樹脂、希釈エポキシ樹脂及び高接着エポキシ樹脂を含むことにより、エポキシ固有の機械的、化学的、熱的性質を維持しながらも、硬化の際に光抽出効率に優れるうえ、高接着力及び低アウトガス性を有する、高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物を導出するようになった。

【0018】

(a) 高屈折エポキシ樹脂

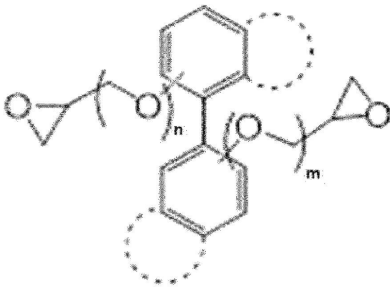
本発明による高屈折エポキシ樹脂は、下記化学式1又は化学式2で表されるモノマーを含んで形成される。

20

【0019】

【化5】

[化学式1]



30

【0020】

前記化学式1において、破線で表示された環は、隣接する6員環構造に融合した基であって、置換もしくは無置換のC6~C60の単環アリール、置換もしくは無置換のC6~C60の縮合環アリール、置換もしくは無置換のC6~C60のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数C6~C60の単環ヘテロアリール基、置換もしくは無置換のC6~C60の縮合環ヘテロアリール基のうちのいずれか一つであり、

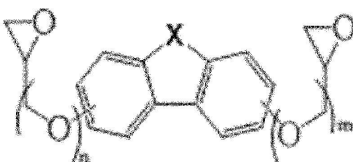
前記m及びnは、それぞれ独立して0~4の整数であるが、いずれも0であるのではない。

40

【0021】

【化6】

[化学式2]



50

【0022】

前記化学式2において、X及びYは、S、O又はC(R¹)(R²)であり、

R¹及びR²は、互いに同一でも異なってよく、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、ニトロ基、C₁～C₄₀のアルキル基、C₂～C₄₀のアルケニル基、C₂～C₄₀のアルキニル基、C₃～C₄₀のシクロアルキル基、核原子数3～40個のヘテロシクロアルキル基、C₆～C₆₀のアリール基、核原子数5～60個のヘテロアリール基、C₁～C₄₀のアルキルオキシ基、C₆～C₆₀のアリールオキシ基、C₃～C₄₀のアルキルシリル基、C₆～C₆₀のアリールシリル基、C₁～C₄₀のアルキルボロン基、C₆～C₆₀のアリールボロン基、C₆～C₆₀のアリールホスファニル基、C₆～C₆₀のモノ又はジアリールホスフィニル基及びC₆～C₆₀のアリールアミン

10

基よりなる群から選択されるか、或いは隣接する基と結合して縮合環を形成し、

前記mとnは、それぞれ独立して0～4の整数であるが、いずれも0であるのではない。

【0023】

前記高屈折エポキシ樹脂は、50～80重量部含むことが好ましいが、前記重量範囲内で高屈折率特性を有することができる。

【0024】

本発明は、前記高屈折エポキシ樹脂が含まれるので、少なくとも1.61～1.65のフィルム屈折率の特性を有する。

【0025】

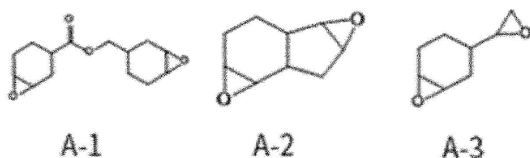
(b) 希釈エポキシ樹脂

本発明による希釈エポキシ樹脂は、置換もしくは無置換の炭素数5～100のアルキレン基又はアルケニレン基を含むか、或いはシクロ脂肪族基を含む化合物を含むエポキシ樹脂であることができ、より詳細には、下記A-1～A-3よりなる群から選択される化合物で製造されるエポキシ樹脂であることができる。

20

【0026】

【化7】



30

【0027】

前記希釈エポキシ樹脂は、10～50重量部含まれることが好ましく、これは、粘度調節及び耐熱性確保のためである。

【0028】

(c) 高接着エポキシ樹脂

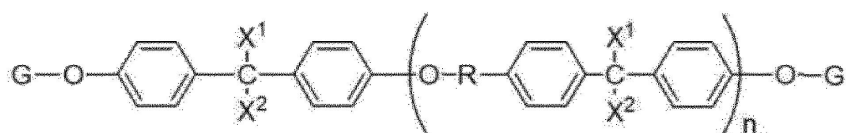
本発明に係る高接着エポキシ樹脂は、下記化学式3で表される2官能性エポキシ樹脂であって、エポキシ組成物の硬化構造の寄与、ディスプレイの各基板間の応力解消、チップと基板に対する接着力の増進に使用できる。

40

【0029】

【化8】

[化学式3]



【0030】

前記化学式3において、Gはグリシジル基含有有機基であり、X¹及びX²はそれぞれ

50

独立して水素又はメチル基であり、 n はそれぞれ独立して1～10の整数であり、 R は置換もしくは無置換の $C_{10} \sim C_{100}$ のアルキレン基又はアルケニレン基である。

【0031】

前記化学式3で表される2官能性エポキシ樹脂としては、ジグリシジルエーテル系2官能性エポキシ樹脂が好ましく、具体的には、ビスフェノールFジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ポリオレフィン付加ビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ポリオレフィン付加ビスフェノールFジグリシジル型エポキシ樹脂、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、及び1,4-ブタンジオールジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂よりなる群から選択される少なくとも1種を使用することができる。

10

【0032】

本発明において、前記2官能性エポキシ樹脂は、5～30重量部で含まれることが好ましい。前記2官能性エポキシ樹脂の含有量が5重量部未満であれば、常温で製品を使用することができる時間が減少し、高温高湿信頼性に好ましい影響を与えない。また、組成物固有の硬度があまり上昇して割れやすく、接着力にも良くない影響を与えて好ましくない可能性がある。

【0033】

(d) 熱硬化剤

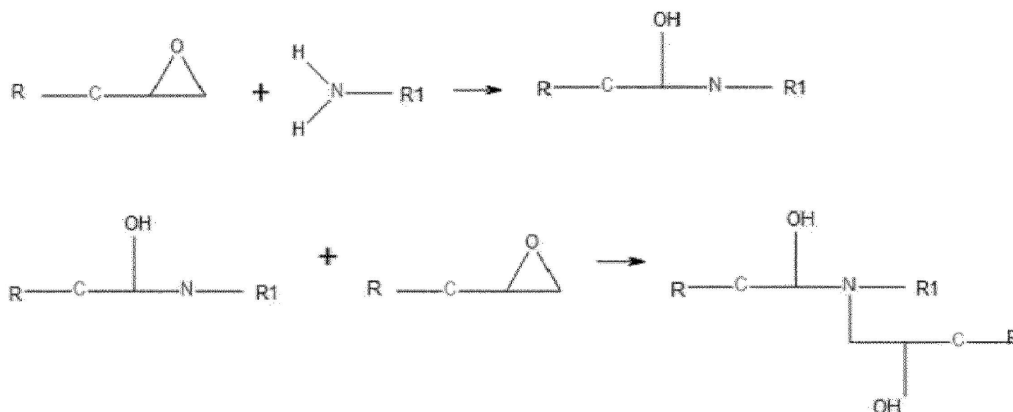
本発明による高屈折高接着性エポキシ樹脂組成物は、熱硬化剤を含むことができる。前記熱硬化剤は、熱硬化性ポリマーであって、エポキシ樹脂がまともな機能を発揮するためには、これに適切な硬化剤が必要であり、硬化剤による硬化反応を介して、エポキシ樹脂が保有している固有の特性を発現する。従来は、アミン、酸、フェノール硬化剤などを使用し、他のプラスチック素材とは区別される接着性、電気的特性、高温高湿に対する抵抗性を持つように選別されて使用されてきた。代表的には、エポキシ樹脂とアミン硬化剤との反応は、次のとおりである。アミン硬化剤がエポキシ樹脂の環を攻撃して開環し、特定の位置に付いて大きくなったエポキシ-アミン分子が周辺のエポキシ樹脂を攻撃して連鎖反応が起こる。アミンの付いた分子がほとんど消費された後、反応が終了し、このように稠密な構造を作る反応を硬化反応と呼ぶ。この反応では、必ずヒドロキシ基が現れるようになり、接着力と製品の可使用時間に有意な影響を与えるものの、耐湿性が悪くなり、信頼性が不安であって割れを起こすこともある。

20

30

【0034】

【化9】



40

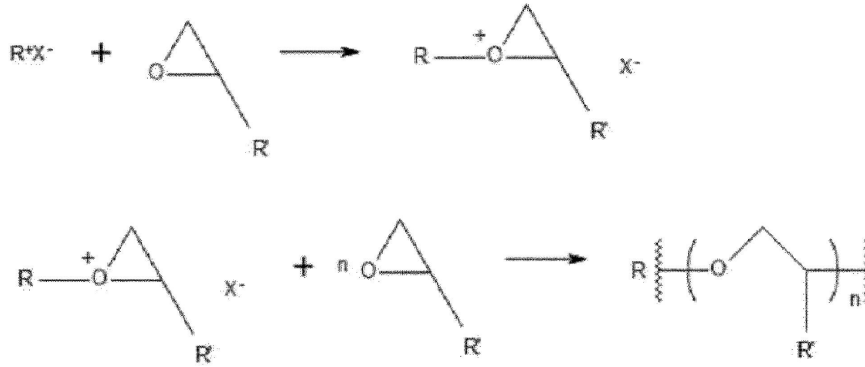
【0035】

本発明では、次のとおりに、エポキシ樹脂間の直接反応を引き起こす潜在性熱硬化剤を使用することが好ましい。この反応では、前記エポキシ-アミン反応のようにヒドロキシ基が現れず、長い繊維状の分子構造を持つ硬化物を得ることができる。よって、従来のエポキシ-硬化剤反応とは異なり、長期信頼性に有利な構造を得ることができる。

【0036】

50

【化 10】



10

【0037】

ここに使用される潜在性熱硬化剤としては、任意の又は商業的に使用される硬化剤を含むことができる。具体的には、テトラデシル（トリヘキシル）ホスホニウムジシアンジアミド、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムメタンスルホネート、トリルクミ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、オプトンCP-66、オプトンCP-77（株式会社ADEKA製、日本）、2-エチル-4メチルイミダゾリウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、第四級アンモニウムボレート、（4-アセトキシフェニル）ベンジル（メチル）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、SI-B2、SI-B3、SI-B3A、SI-B4及びSI-B7（サムシン化学工業（株）製、韓国）よりなる群から選択される1種以上の化合物を使用することができる。

20

【0038】

本発明において、潜在性熱硬化剤は、0.5～5.0重量部で含まれることが好ましく、より好ましくは0.5～3.0重量部、よりさらに好ましくは0.5～1.5重量部であるのが良い。潜在性熱硬化剤の含有量が0.5重量部未満であれば、未硬化物が発生する可能性があつて好ましくなく、潜在性熱硬化剤の含有量が1.5重量部超過であれば、常温或いは高温での可使用時間の低下、硬化時の問題的な発熱リスク、及びディスプレイ工程時のディスプレイニードルチップの結び-固まりをもたらすおそれがあるため、ユーザーの製品の使用に影響を及ぼすので好ましくない。

30

【0039】

本発明では、上述した潜在性熱硬化剤に代えて物理、化学的物性が発現すれば、一般的な潜在性硬化剤を使用することができ、商業的に使用される製品を使用することができる。例えば、アジキュアMY-24、アジキュアMY-H、アジキュアPN-23、アジキュアPN-H、アジキュアPN-31、アジキュアPN-40、アジキュアPN-50、VDH、VDH-J、AH-154、ADH、DDH、SAH、IDH、SDH、LDH、UDH、アンカマイン2441、アンカマイン2442、アンカマイン2014AS、テクニキュアLC-80、テクニキュアLC-100、テクニキュアLC-214、テクニキュアMDU-11、テクニキュアPDU-250、テクニキュアIPDU-8、テクニキュアTDU-200、EH-4357、ノバキュアHX-3721、ノバキュアHX-3722、ノバキュアHX-3748、ノバキュアHX-3741、ノバキュアHX-3742、ノバキュアHX-3088、ノバキュアHX-3613、ノバキュアHX-3921HP、ノバキュアHX-3941HP、ノバキュアHX-3932HP、FXR-1081、FXR-1020、FXR-1060などを潜在性硬化剤として使用することができ、これらを単独で又は2種以上混合して使用することができる。これらの潜在性硬化剤は、エポキシ樹脂がイミダゾール硬化促進剤を包んでいるマイクロカプセル形態を持っており、80～100以下の高温でのみエポキシ組成物の硬化作用を促進させることができ、室温での保存安定性に寄与することができる。

40

50

【0040】

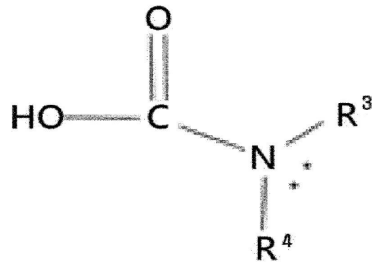
(e) 硬化遅延剤を含む添加剤

本発明による添加剤は、硬化遅延剤を含むことができ、前記硬化遅延剤は、下記化学式4で表されるアミドであり得る。参考までに、通常40以上で保管するとき、カチオン開始剤が適用された組成物は、粘度変化が発生するが、これは、ルイス酸(Lewis acid)が発生するからである。

【0041】

【化11】

[化学式4]



10

【0042】

前記化学式4において、R³とR⁴は、互いに同一でも異なってもよく、アルキル基であり得る。

20

【0043】

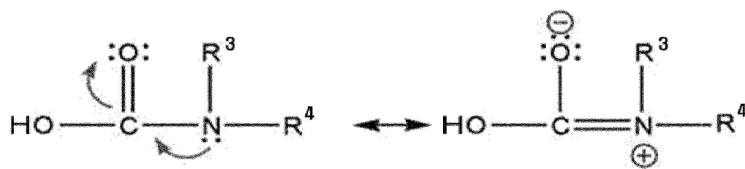
従って、本発明は、前記硬化遅延剤の導入によって粘度変化の少ない高信頼性樹脂を得ることができる。

【0044】

参考まで、アミンは、反応性が高いため組成物添加時の高温安全性に劣るが、アミドカルボン酸(Amide Carboxylic Acid)は、下記の共鳴安定化を介してアミド反応性を低めることができ、これにより40以上ではカチオン熱開始剤のルイス酸と反応して硬化抑制による粘度変化を一緒に抑制することができ、これにより高温安定性を向上させることができる。

【0045】

【化12】



30

【0046】

本発明によるエポキシ樹脂組成物は、必要に応じて選択的に追加の添加剤をさらに含むことができる。追加の添加剤は、エポキシ組成物がチップと基板との隙間に流れ込む性質を高め、さらに隙間の空間が生じるのを防止するために使用され、例えば、BYK018、BYK019、BYK021、BYK024、BYK066N、BYK909、エトキシエタノール、モノエテルグリコールポリエチレンなどを使用することができ、これに限定されるものではない。前記物質を単独で或いは2種以上混合して使用することが可能である。

40

【0047】

前記添加剤の含有量は、0.01~1.0重量部であり得る。添加剤の含有量が0.01重量部未満であれば、所望の効果を得ることができず、前記添加剤の含有量が1.0重量部超過であれば、過度に流動性が増加して物性低下をもたらすおそれがあるので、好ましくない。

50

【実施例】

【0048】

以下、実施例によって本発明をさらに詳細に説明するが、本発明の保護範囲が下記実施例のみに限定されるものではない。

【0049】

〔実施例／比較例、エポキシ樹脂組成物の製造〕

下記表1の成分と含有量で高屈折エポキシ樹脂、希釈エポキシ樹脂及び接着エポキシ樹脂をプラネタリーミキサーに添加し、互いに均一性状となるように2時間常温、常圧で攪拌した後、潜在性熱硬化剤を定量して添加の後2時間常温、常圧で攪拌した。その後、真空中で脱泡した後、粘稠性の液体を得た。

【0050】

【表1】

	配合比 (重量部)	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
高屈折 エポキシ 樹脂	D-1 ⁽¹⁾	43.7	39.7	44	43.7	40
	D-2 ⁽²⁾	18	20	18	20	—
	D-3 ⁽³⁾					20
希釈 エポキシ 樹脂	A-2 ⁽⁴⁾	20	20	20	20	20
接着 エポキシ 樹脂	B-1 ⁽⁵⁾	16.8	5	16.8	—	3
	B-2 ⁽⁶⁾		13.8		15.1	15.8
硬化遅延剤	E ⁽⁷⁾	0.3	0.3	—	—	—
潜在性 熱硬化剤	C ⁽⁸⁾	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2

【0051】

(1) D-1: 1官能液状エポキシ樹脂、2-ビフェニルイルグリシジルエーテル(2-biphenylglycidylether)

(2) D-2: 2官能固体状エポキシ樹脂、オキシラン(Oxirane)、2,2'-[[1,1'-ビナフタレン]-2,2'-ジイルビス(オキシメチレン)]ビス-(2,2'-[[1,1'-binaphthalene]-2,2'-diylbis(oxyethylene)]bis-)

(3) D-3: 多官能液状エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ化合物(EG-200)

(4) A-2: 2官能液状エポキシ樹脂、2H-インデノ[1,2-b:5,6-b']ビスオキシレン(2H-Indeno[1,2-b:5,6-b']bisoxirene)、オクタヒドロ-(octahydro-)

(5) B-1: 2官能液状エポキシ樹脂、ビスフェノールA-ビスフェノールAジグリシジルエーテル重合体

(6) B-2: 2官能液状エポキシ樹脂、2,2'-ビス(4-グリシドキシフェニル)プロパン(2,2'-Bis(4-glycidoxyphenyl)propane)

(7) E: 添加剤、アミドカルボン酸化合物

(8) C: 潜在性熱硬化剤、フェニルアミンボレート(Phenylamineborate)

【0052】

〔エポキシ樹脂組成物の基本評価〕

前記実施例1及び2で製造されたエポキシ樹脂組成物と、比較例1～3で製造されたエ

ポキシ組成物の屈折率（液状）、硬化物屈折率（フィルム）、粘度、接着力、高温安定性（40）を評価し、その結果を下記表2に示す。

【0053】

【表2】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
屈折率（液状）	1.59	1.59	1.59	1.59	1.59
屈折率（フィルム）	1.64	1.64	1.64	1.64	—
粘度（mPa・s）	600	570	600	600	2,500
接着力 （kgf/cm ² ）	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
T _g （℃）	90	93	92	90	93
重量損失 （weight loss）	-0.7	-0.9	-0.6	-0.9	-0.9
高温安定性 （40℃）	8日	7日	4日	2日	2日

10

【0054】

1. 屈折率（液状）：エポキシ組成物を25±5でアッペ屈折計によって屈折率を測定
2. 屈折率（フィルム）：プリズムに薄膜を接合させてレーザービームの入射角を変化させ、厚み方向及び面方向の屈折率を測定。Metricon社製の2010/Mで測定
3. 粘度：ブルックフィールドDV2T粘度計、コーンアンドプレート型CPA-51Zスピンドルを用いて25±5で測定し、30分後の粘度を記載
4. 接着力：76mm×26mm×3mmのガラス板上にエポキシ組成物を0.01g塗布した後、圧着し、100、60分に調整されたオープンで硬化させ、しかる後に、UTMで接着力を測定
5. T_g：DSCを用いて試料を200まで昇温させた後、常温に冷却させ、再び200まで昇温させ、second runの吸熱最高ピークと吸熱最低ピークとの中間値をT_gとして記載
6. 重量損失（Weight loss）：試料10gを真空オープンに入れ、76cmHgおよび25の条件で1時間真空の後、（初期重量 - 最終重量）/初期重量×100の計算法で計算
7. 高温安定性（40）：ゴム栓でシールされたガラス瓶にエポキシ組成物と窒素ガスを充填し、40±5で放置し、1日単位で粘度を測定し、粘度変化率が初期粘度に対して1.2倍以下であれば記載

20

30

【0055】

前記表2に示すように、本発明の実施例1及び2で製造されたエポキシ組成物は、1.61以上のフィルム屈折率、適切な粘度レベル、高い接着力、90以上のT_g、良好な重量損失（weight loss）、良好な保管安定性を有することを確認することができる。特に、実施例1及び2のようにアミドカルボン酸化合物を含んでいるとき、高温安定性が増加する様相を示した。前記物性評価から、実施例1及び2のエポキシ樹脂組成物はディスプレイ素子用封止剤組成物として有用に使用できることを確認した。

40

【0056】

以上、本発明の内容の特定部分を詳細に説明したが、当業分野における通常の知識を有する者にとって、このような具体的記述は単に好適な実施形態に過ぎず、これにより本発明の範囲が制限されるものではないことは明白である。したがって、本発明の実質的な範囲は、添付された請求の範囲とそれらの等価物によって定義されるというべきである。

50

フロントページの続き

2 ポン - ギル、 1 0

審査官 大塚 龍平

- (56)参考文献 特開 2 0 2 0 - 0 4 2 0 8 9 (J P , A)
特開 2 0 2 1 - 0 9 3 4 2 2 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 7 / 1 9 1 8 0 1 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 1 4 / 0 8 3 8 5 0 (W O , A 1)
- (58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)
C 0 8 G 5 9 / 2 2
C 0 8 G 5 9 / 4 6
C 0 9 K 3 / 1 0
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)