

(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
2015 年 7 月 30 日(30.07.2015)



(10) 国際公開番号

WO 2015/111525 A1

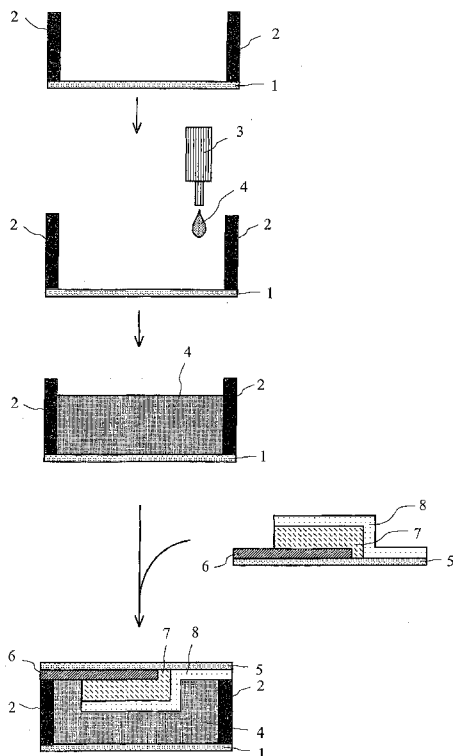
- (51) 国際特許分類:
H05B 33/04 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/051155
- (22) 国際出願日: 2015 年 1 月 9 日(09.01.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2014-010770 2014 年 1 月 23 日(23.01.2014) JP
- (71) 出願人: 株式会社ダイセル(DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田三丁目 4 番 5 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 江川 智哉(EGAWA, Tomoya); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家 1 2 3 9 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP).
- (74) 代理人: 後藤 幸久(GOTO, Yukihisa); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町 2 番 1 8 号南森町共同ビル 2 階 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).

[続葉有]

(54) Title: SEALING COMPOSITION

(54) 発明の名称: 封止用組成物

[図2]



(57) Abstract: Provided is a composition for organic EL element sealing, which is capable of efficiently sealing an organic EL element with a cured product having moisture-proof properties and low outgas properties without exposing the organic EL element directly to UV. A composition for organic EL element sealing according to the present invention contains the following component (A), component (B) and component (C). Component (A): a cationically curable compound which has one or more groups selected from among an alicyclic epoxy group, an oxetane ring-containing group, an episulfide group and a vinyl ether group in an amount of two or more groups in each molecule Component (B): a cationic photopolymerization initiator Component (C): an azole compound

(57) 要約: 有機EL素子をUVに直に曝すことなく、且つ効率よく、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で封止することができる有機EL素子封止用組成物を提供する。本発明の有機EL素子封止用組成物は、下記成分(A)、成分(B)、成分(C)を含有する。成分(A): 脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物 成分(B): 光カチオン重合開始剤 成分(C): アゾール系化合物

WO 2015/111525 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：封止用組成物

技術分野

[0001] 本発明は、有機ＥＬ素子を損傷すること無く封止することができ、有機ＥＬ素子を水分による劣化から保護することができる封止用組成物に関する。本願は、２０１４年１月２３日に日本に出願した、特願２０１４－０１０７７０号の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス（以後、「有機ＥＬ」と称する場合がある）素子は、発光層を一对の対向電極で挟んだ構造体で構成されており、一方の電極からは電子が注入され、他方の電極からは正孔が注入される。この注入された電子と正孔とが発光層内で再結合するときに発光が生ずる。前記有機ＥＬ素子を含む有機ＥＬデバイスは、耐衝撃性や視認性の高さと、発光色の多様性からフルカラーのフラットパネルディスプレイとして、又はＬＥＤに代わるものとして期待されている。有機ＥＬデバイスの光取り出し方式には、トップ・エミッション型とボトム・エミッション型の２種類があり、トップ・エミッション型は開口率が大きいため、光取り出し効率が優れている点で好ましい。

[0003] しかし、有機ＥＬ素子は他の電子部品に比べて水分の影響を受けやすく、有機ＥＬ素子内に浸入した水分によって電極の酸化や有機物の変性等が引き起こされ、発光特性が著しく低下することが問題であった。この問題を解決する方法としては、有機ＥＬ素子の周りを封止用組成物の硬化物で封止する方法が知られている。

[0004] 前記封止方法としては、基板上に形成した有機ＥＬ素子の周りをＵＶ封止用組成物で充填し、その後、前記ＵＶ封止用組成物を硬化させることにより封止する方法（１）や、リッド（蓋）に封止用組成物を塗布し、ＵＶを照射した後に有機ＥＬ素子を形成した基板に貼り合わせて封止する方法（２）が

知られている。

[0005] しかし、上記方法（１）では、有機ＥＬ素子がＵＶに直に曝されることにより発光特性が低下することが問題であった。その他、高コントラストを有する有機ＥＬデバイスを形成するためにカラーフィルターを有機ＥＬ素子の上部に配置する場合には、カラーフィルターによってＵＶが遮られるため封止用組成物の硬化が不十分となることが問題であった。

[0006] 一方、上記方法（２）では、有機ＥＬ素子がＵＶに直に曝されることにより発光特性が低下することは防止できるが、ＵＶ照射により封止用組成物の硬化が速やかに進行するため、貼り合わせ作業を速やかに行わないと貼り合わせが困難となる場合があり、歩留まりが低下することが問題であった。

[0007] 特許文献１には、エポキシ化合物と重合開始剤と硬化遅延剤としてクラウンエーテルやポリエーテル類を含有する封止用組成物は、ＵＶ照射後、ＵＶを遮断しても反応が進行して硬化が完了する特性を有するため、上記方法（２）において前記組成物を使用すれば、ＵＶによる有機ＥＬ素子の劣化を抑制しつつ、封止することができると記載されている。しかし、クラウンエーテルやポリエーテル類はカチオンにより分解されてアウトガスを発生し、そのアウトガスにより有機ＥＬ素子が劣化することが問題であった。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献１：特許第４３８４５０９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 従って、本発明の目的は、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝することなく、且つ効率よく、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で封止することができる有機ＥＬ素子封止用組成物を提供することにある。

本発明の他の目的は、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝することなく、且つ効率よく、低アウトガス性、防湿性、及び導電性を有する硬化物で封止すること

ができる有機ＥＬ素子封止用組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者は上記課題を解決するため鋭意検討した結果、光カチオン重合開始剤から発生するカチオンに対して弱塩基性にあたるアゾール系化合物は、ＵＶ照射することにより光カチオン重合開始剤から発生するカチオンをトラップしてカチオン重合の進行を抑制し、加熱処理を施すとカチオンを放出してカチオン重合を進行させる作用を有すること、前記アゾール系化合物はアウトガス発生の原因とはならないこと、アゾール系化合物を添加することにより封止用組成物の可使時間を自由にコントロールすることができ、該封止用組成物の塗膜にＵＶを照射し、その後有機ＥＬ素子に貼り合わせてから加熱処理を施すことにより、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝すことなく封止することができ、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で有機ＥＬ素子を封止することができることを見いだした。

また、特定の導電性繊維被覆粒子を封止用組成物に添加すると、上記特徴に加え、導電性を有する硬化物で有機ＥＬ素子を封止することができることを見いだした。

本発明はこれらの知見に基づいて完成させたものである。

[0011] すなわち、本発明は、下記成分（Ａ）、成分（Ｂ）、及び成分（Ｃ）を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

成分（Ａ）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エプスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される１種又は２種以上の基を１分子中に２個以上有するカチオン硬化性化合物

成分（Ｂ）：光カチオン重合開始剤

成分（Ｃ）：アゾール系化合物

[0012] 本発明は、また、成分（Ｂ）１００重量部に対して、成分（Ｃ）を５～２５重量部含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0013] 本発明は、また、さらに、下記成分（Ｄ）を含有する前記の有機エレクト

ロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

成分（D）：グリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く）

[0014] 本発明は、また、さらに、下記成分（E）を含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

成分（E）：アリルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く）

[0015] 本発明は、また、さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子

[0016] 本発明は、また、導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質が導電性ナノワイヤである前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0017] 本発明は、また、導電性ナノワイヤが、金属ナノワイヤ、半導体ナノワイヤ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、及び導電性高分子ナノワイヤからなる群より選択される少なくとも一種である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0018] 本発明は、また、導電性ナノワイヤが銀ナノワイヤである前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0019] 本発明は、また、導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と成分（A）の硬化物の屈折率（25℃、波長589.3nmにおける）が下記式を満たすことを特徴とする前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

| 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の屈折率－成分（A）の硬化物の屈折率 | ≤ 0.1

[0020] 本発明は、また、導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質の平均直径が $1 \sim 400 \text{ nm}$ であり、平均長さが $1 \sim 100 \mu\text{m}$ である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0021] 本発明は、また、導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の平均粒子径が $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0022] 本発明は、また、トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物を提供する。

[0023] 本発明は、また、下記工程を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法を提供する。

工程 1：前記の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程 2：素子を設置した基板の素子設置面に、光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[0024] 本発明は、また、前記の有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法により得られる有機エレクトロルミネッセンスデバイスを提供する。

[0025] すなわち、本発明は以下に関する。

[1] 下記成分（A）、成分（B）、及び成分（C）を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される 1 種又は 2 種以上の基を 1 分子中に 2 個以上有するカチオン硬化性化合物

成分（B）：光カチオン重合開始剤

成分（C）：アゾール系化合物

[2] 成分(B) 100重量部に対して、成分(C)を5~25重量部含有する[1]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[3] さらに、下記成分(D)を含有する[1]又は[2]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

成分(D)：グリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物(脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く)

[4] さらに、下記成分(E)を含有する[1]~[3]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

成分(E)：アリルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物(脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く)

[5] 成分(A)における脂環エポキシ基を有するカチオン硬化性化合物が、式(1)~(10)で表される化合物、(3, 4, 3', 4'-ジエポキシ)ビスクロヘキシル、及びビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)エーテルから選択される少なくとも1種の化合物である[1]~[4]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[6] 成分(A)におけるオキセタン環含有基を有するカチオン硬化性化合物が、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、ビス{[1-エチル(3-オキセタニル)]メチル}エーテル、4, 4'-ビス[(3-エチル-3-オキセタニル)メトキシメチル]ビスクロヘキシル、1, 4-ビス[(3-エチル-3-オキセタニル)メトキシメチル]シクロヘキサン、3-エチル-3{[(3-エチルオキセタン-3-イル)メトキシ]メチル}オキセタン、及びフェノールノボラック型オキセタンから選択される少なくとも1種の化合物である[1]~[5]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔7〕 成分（A）におけるエピスルフィド基を有するカチオン硬化性化合物が、脂環を有するエピスルフィド化合物、芳香環を有するエピスルフィド化合物、アルキルスルフィド型エピスルフィド化合物、及びフルオレン骨格を有するエピスルフィド化合物から選択される少なくとも1種の化合物である〔1〕～〔6〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔8〕 成分（A）におけるビニルエーテル基を有するカチオン硬化性化合物が、環状エーテル基を有するビニルエーテル化合物、アリールジビニルエーテル化合物、鎖状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物、鎖状エーテル型ビニルエーテル化合物、及び環状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物から選択される少なくとも1種の化合物である〔1〕～〔7〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔9〕 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（100重量%）における成分（A）の含有量が30～80重量%である〔1〕～〔8〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔10〕 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物100重量部に対して成分（B）を0.05～4重量部含有する〔1〕～〔9〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔11〕 成分（C）におけるアゾール系化合物が、ピロール化合物、ピラゾール化合物、3,5-ジメチルピラゾール化合物、イミダゾール化合物、1,2,3-トリアゾール化合物、及び1,2,4-トリアゾール化合物から選択される少なくとも1種の化合物である〔1〕～〔10〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔12〕 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（100重量%）における成分（D）の含有量が20～70重量%である〔3〕～〔11〕の何れか1つに記載の有機エレクトロル

ミネッセンス素子封止用組成物。

〔13〕 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（100重量％）における成分（E）の含有量が10～70重量％である〔4〕～〔12〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔14〕 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（100重量％）における成分（D）と成分（E）の含有量の和が20～70重量％である〔4〕～〔13〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔15〕 さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する〔1〕～〔14〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子

〔16〕 導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質が導電性ナノワイヤである〔15〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔17〕 導電性ナノワイヤが、金属ナノワイヤ、半導体ナノワイヤ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、及び導電性高分子ナノワイヤからなる群より選択される少なくとも一種である〔16〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔18〕 導電性ナノワイヤが銀ナノワイヤである〔16〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

〔19〕 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と成分（A）の硬化物の屈折率（25℃、波長589.3nmにおける）が下記式を満たすことを特徴とする〔15〕～〔18〕の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

| 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の屈折率－成分（A）の硬化物の屈折率 | ≤ 0.1

[20] 導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質の平均直径が1～400nmであり、平均長さが1～100 μ mである[15]～[19]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[21] 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の平均粒子径が0.1～100 μ mである[15]～[20]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[22] トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である[1]～[21]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[23] 下記工程を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

工程1：[1]～[21]の何れか1つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程2：素子を設置した基板の素子設置面に、光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[24] [23]に記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法により得られる有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

発明の効果

[0026] 本発明の有機EL素子封止用組成物は上記構成を有するため、塗膜にUVを照射しても加熱処理を施すまでは硬化の進行を抑制することができ、たとえ貼り合わせ作業の進行が滞っても接着性が失われて貼り合わせが困難となることが無い。そして、貼り合わせ後に加熱処理を施すことにより硬化を進行させることができ、有機EL素子をUVに直に曝すことなく封止することができる。また、本発明の有機EL素子封止用組成物は、防湿性を有すると共に低アウトガス性の硬化物を形成することができ、アウトガスによる有機EL素子の劣化を防止することができる。更に、本発明の有機EL素子封止用組成物が導電性繊維被覆粒子を含有する場合は、導電性をも兼ね備えた硬化物を形成することができる。

そのため、本発明の有機EL素子封止用組成物や本発明の有機EL素子封止用組成物から成るシート又はフィルムは、トップ・エミッション型有機EL素子の封止材として好適に使用することができる。

また、本発明の有機EL素子封止用組成物や本発明の有機EL素子封止用組成物から成るシート又はフィルムで封止された有機ELデバイスは、優れた発光特性を有し、長寿命で信頼性が高い。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]本発明の導電性繊維被覆粒子の走査型電子顕微鏡像（SEM像）の一例である。

[図2]本発明の有機EL素子封止用組成物を使用した有機ELデバイスの製造方法の一例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0028] [有機EL素子封止用組成物]

本発明の有機EL素子封止用組成物（以後、「封止用組成物」と称する場合がある）は、下記成分（A）、成分（B）、成分（C）を含有する。

成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物

成分（B）：光カチオン重合開始剤

成分（C）：アゾール系化合物

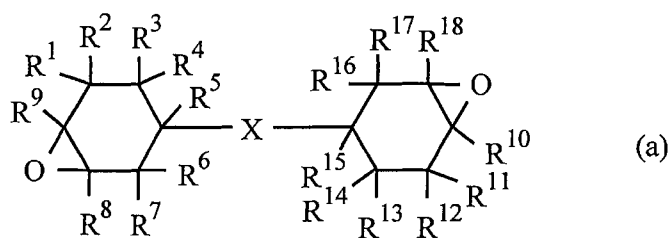
[0029] （成分（A））

本発明の成分（A）は、脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物である。

[0030] 前記脂環エポキシ基を1分子中に2個以上有する化合物（以後、「脂環式エポキシ化合物」と称する場合がある）としては、下記式（a）で表される化合物を挙げることができる。

[0031]

[化1]



- [0032] 上記式 (a) 中、 $R^1 \sim R^{18}$ は同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、酸素原子若しくはハロゲン原子を含んでもよい炭化水素基、又は置換基を有していてもよいアルコキシ基を示す。
- [0033] $R^1 \sim R^{18}$ におけるハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等を挙げることができる。
- [0034] $R^1 \sim R^{18}$ における炭化水素基としては、例えば、脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、芳香族炭化水素基、及びこれらが2以上結合した基を挙げることができる。
- [0035] 上記脂肪族炭化水素基としては、例えば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ヘキシル、オクチル、イソオクチル、デシル、ドデシル基等の C_{1-20} アルキル基（好ましくは C_{1-10} アルキル基、特に好ましくは C_{1-4} アルキル基）；ビニル、アリル、メタリル、1-プロペニル、イソプロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、1-ペンテニル、2-ペンテニル、3-ペンテニル、4-ペンテニル、5-ヘキセニル基等の C_{2-20} アルケニル基（好ましくは C_{2-10} アルケニル基、特に好ましくは C_{2-4} アルケニル基；エチニル、プロピニル基等の C_{2-20} アルキニル基（好ましくは C_{2-10} アルキニル基、特に好ましくは C_{2-4} アルキニル基）等を挙げることができる。
- [0036] 上記脂環式炭化水素基としては、例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロドデシル基等の C_{3-12} シクロアルキル基；シクロヘキセニル基等の C_{3-12} シクロアルケニル基；ビスシクロヘプタニル、ビスシクロヘプテニル基等の C_{4-15} 架橋環式炭化水素基等を挙げることができる。

- [0037] 上記芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル、ナフチル基等の C_{6-14} アリール基（好ましくは C_{6-10} アリール基）等を挙げることができる。
- [0038] また、上述の脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、及び芳香族炭化水素基から選択される基が2以上結合した基としては、例えば、シクロヘキシルメチル基等の C_{3-12} シクロアルキル置換 C_{1-20} アルキル基；メチルシクロヘキシル基等の C_{1-20} アルキル置換 C_{3-12} シクロアルキル基；ベンジル基、フェネチル基等の C_{7-18} アラルキル基（特に、 C_{7-10} アラルキル基）；シンナミル基等の C_{6-14} アリール置換 C_{2-20} アルケニル基；トリル基等の C_{1-20} アルキル置換 C_{6-14} アリール基；スチリル基等の C_{2-20} アルケニル置換 C_{6-14} アリール基等を挙げることができる。
- [0039] $R^1 \sim R^{18}$ における酸素原子若しくはハロゲン原子を含んでもよい炭化水素基としては、上述の炭化水素基における少なくとも1つの水素原子が、酸素原子を有する基又はハロゲン原子で置換された基等を挙げることができる。上記酸素原子を有する基としては、例えば、ヒドロキシル基；ヒドロパーオキシ基；メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロピルオキシ、ブトキシ、イソブチルオキシ基等の C_{1-10} アルコキシ基；アリルオキシ基等の C_{2-10} アルケニルオキシ基； C_{1-10} アルキル基、 C_{2-10} アルケニル基、ハロゲン原子、及び C_{1-10} アルコキシ基から選択される置換基を有していてもよい C_{6-14} アリールオキシ基（例えば、トリルオキシ、ナフチルオキシ基等）；ベンジルオキシ、フェネチルオキシ基等の C_{7-18} アラルキルオキシ基；アセチルオキシ、プロピオニルオキシ、（メタ）アクリロイルオキシ、ベンゾイルオキシ基等の C_{1-10} アシルオキシ基；メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル基等の C_{1-10} アルコキシカルボニル基； C_{1-10} アルキル基、 C_{2-10} アルケニル基、ハロゲン原子、及び C_{1-10} アルコキシ基から選択される置換基を有していてもよい C_{6-14} アリールオキシカルボニル基（例えば、フェノキシカルボニル、トリルオキシカルボニル、ナフチルオキシカルボニル基等）；ベンジルオキシカルボニル基等の C_{7-18} アラルキルオキシカルボニル基；グリシジルオキシ基等のエポキシ基含有基；エチルオキシセタニル

オキシ基等のオキセタニル基含有基；アセチル、プロピオニル、ベンゾイル基等のC₁₋₁₀アシル基；イソシアナート基；スルホ基；カルバモイル基；オキソ基；これらの2以上がC₁₋₁₀アルキレン基等を介して、又は介することなく結合した基等を挙げることができる。

[0040] R¹～R¹⁸におけるアルコキシ基としては、例えば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロピルオキシ、ブトキシ、イソブチルオキシ基等のC₁₋₁₀アルコキシ基を挙げることができる。

[0041] 前記アルコキシ基が有していてもよい置換基としては、例えば、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、C₁₋₁₀アルコキシ基、C₂₋₁₀アルケニルオキシ基、C₆₋₁₄アリールオキシ基、C₁₋₁₀アシルオキシ基、メルカプト基、C₁₋₁₀アルキルチオ基、C₂₋₁₀アルケニルチオ基、C₆₋₁₄アリールチオ基、C₇₋₁₈アラルキルチオ基、カルボキシル基、C₁₋₁₀アルコキシカルボニル基、C₆₋₁₄アリールオキシカルボニル基、C₇₋₁₈アラルキルオキシカルボニル基、アミノ基、モノ又はジC₁₋₁₀アルキルアミノ基、C₁₋₁₀アシルアミノ基、エポキシ基含有基、オキセタニル基含有基、C₁₋₁₀アシル基、オキソ基、及びこれらの2以上がC₁₋₁₀アルキレン基等を介して、又は介することなく結合した基等を挙げることができる。

[0042] 上記式(a)中、Xは単結合又は接続基(1以上の原子を有する二価の基)を示す。上記接続基としては、例えば、二価の炭化水素基、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、及びこれらが複数個連接した基等を挙げることができる。

[0043] 上記二価の炭化水素基としては、例えば、炭素数が1～18の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基、二価の脂環式炭化水素基等を挙げることができる。炭素数が1～18の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基等を挙げることができる。上記二価の脂環式炭化水素基としては、例えば、1,2-シクロペンチレン基、1,3-シクロペンチレン基、シクロペンチリデン基、1,2-シクロヘキシレン基、1,3-シクロヘキシレン基、1,4-シクロヘキシレン基、シクロヘキシリデン

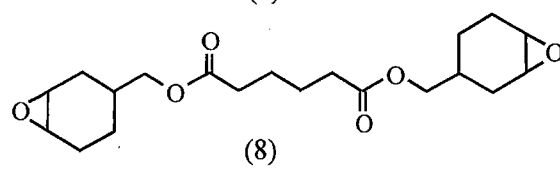
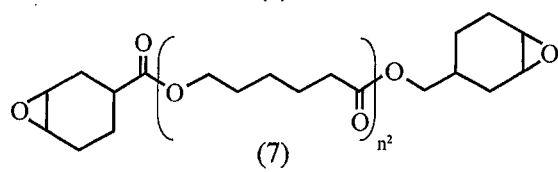
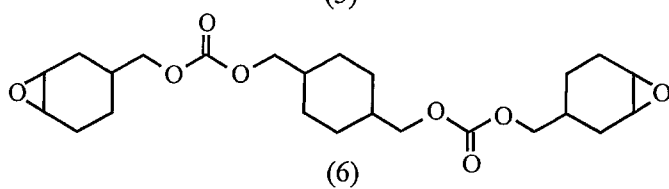
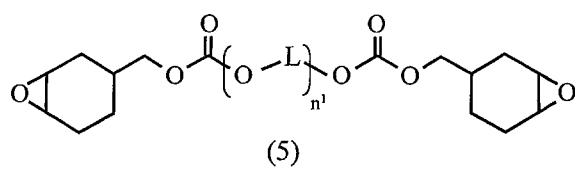
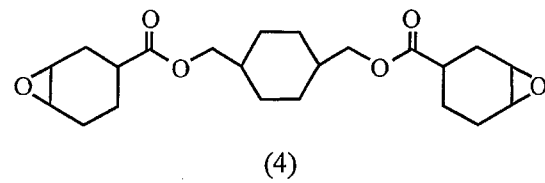
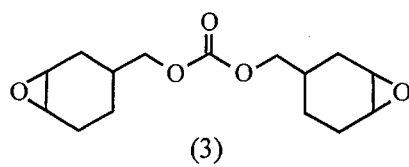
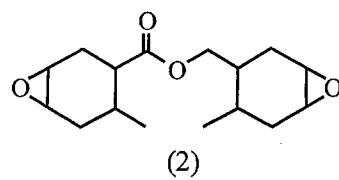
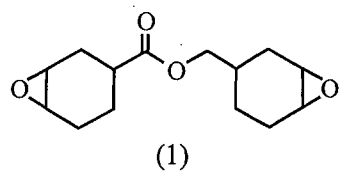
基等のシクロアルキレン基（シクロアルキリデン基を含む）等を挙げることができる。

[0044] 上記連接基Xとしては、特に、酸素原子を含有する連接基が好ましく、具体的には、 $-\text{CO}-$ 、 $-\text{O}-\text{CO}-\text{O}-$ 、 $-\text{COO}-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CONH}-$ ；これらの基が複数個連接した基；これらの基の1又は2以上と二価の炭化水素基の1又は2以上とが連接した基等を挙げることができる。二価の炭化水素基としては上記で例示したものを挙げることができる。

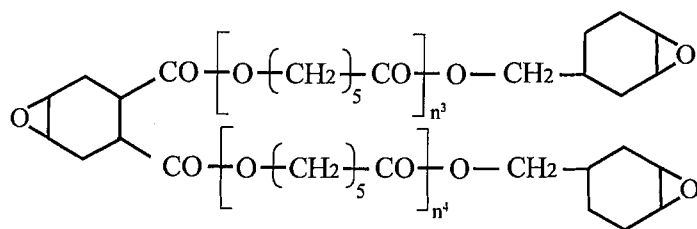
[0045] 上記式（a）中のXが単結合である脂環式エポキシ化合物としては、（3，4，3'，4'-ジエポキシ）ビスクロヘキシルを挙げることができる。

[0046] 上記式（a）で表される脂環式エポキシ化合物の代表的な例としては、下記式（1）～（10）で表される化合物等を挙げることができる。尚、下記式（5）、（7）中の n^1 、 n^2 は、それぞれ1～30の整数を表す。下記式（5）中のLは炭素数1～8のアルキレン基であり、例えば、メチレン、エチレン、プロピレン、イソプロピレン、ブチレン、イソブチレン、s-ブチレン、ペンチレン、ヘキシレン、ヘプチレン、オクチレン基等の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基を挙げることができる。これらの中でも、メチレン、エチレン、プロピレン、イソプロピレン基等の炭素数1～3の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。下記式（9）、（10）中の $n^3 \sim n^8$ は、同一又は異なって1～30の整数を示す。

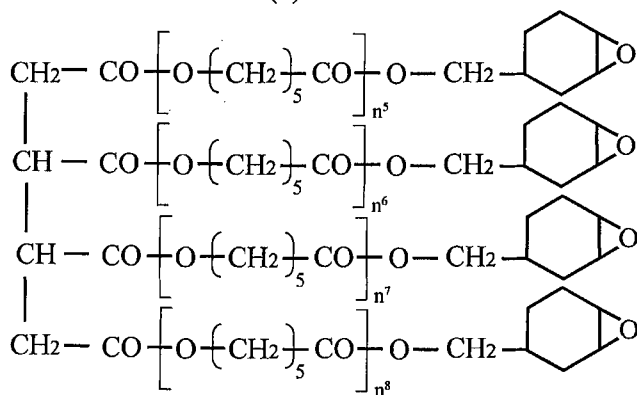
[化2]



[化3]



(9)



(10)

[0047] 脂環式エポキシ化合物としては、なかでも、封止用組成物の硬化性、耐熱性(ガラス転移温度)、低収縮性、低線膨張性の観点から、(3, 4, 3', 4' - ジエポキシ) ビシクロヘキシル及び／又はビス(3, 4 - エポキシシクロヘキシルメチル) エーテルを使用することが好ましい。硬化物の防湿性の観点からは、特に(3, 4, 3', 4' - ジエポキシ) ビシクロヘキシルが好ましい。

[0048] 前記オキセタン環含有基を1分子中に2個以上有する化合物(以後、「オキセタン化合物」と称する場合がある)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、ビス{[1 - エチル(3 - オキセタニル)]メチル}エーテル、4, 4' - ビス[(3 - エチル - 3 - オキセタニル)メトキシメチル]ビシクロヘキシル、1, 4 - ビス[(3 - エチル - 3 - オキセタニル)メトキシメチル]シクロヘキサン、3 - エチル - 3{[(3 - エチルオキセタン - 3 - イル)メトキシ]メチル}オキセタン、フェノールノボラック型オキセタン等を挙げることができる。

。例えば、商品名「ETERNACOLL OXBP」（宇部興産（株）製）等の市販品を使用することができる。

[0049] 前記エピスルフィド基を1分子中に2個以上有する化合物としては、例えば、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキサン、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオメチル）シクロヘキサン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]メタン、2, 2-ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]プロパン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）シクロヘキシル]スルフィド、2, 5-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）-1, 4-ジチアン、2, 5-ビス（ β -エピチオプロピルチオエチルチオメチル）-1, 4-ジチアン等の脂環を有するエピスルフィド化合物；1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）ベンゼン、1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオメチル）ベンゼン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]メタン、2, 2-ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]プロパン、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]スルフィド、ビス[4-（ β -エピチオプロピルチオ）フェニル]スルフィン、4, 4-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）ビフェニル等の芳香環を有するエピスルフィド化合物；2-（2- β -エピチオプロピルチオエチルチオ）-1, 3-ビス（ β -エピチオプロピルチオ）プロパン、1, 2-ビス[（2- β -エピチオプロピルチオエチル）チオ]-3-（ β -エピチオプロピルチオ）プロパン、テトラキス（ β -エピチオプロピルチオメチル）メタン、1, 1, 1-トリス（ β -エピチオプロピルチオメチル）プロパン等のアルキルスルフィド型エピスルフィド化合物；9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]フェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]-3-メチルフェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]-3, 5-ジメチルフェニル}フルオレン、9, 9-ビス{4-[2-（2, 3-エピチオプロポキシ）エトキシ]-3-フェニルフェニル}フルオレン、9, 9-ビス{6-[2

ー（２，３－エピチオプロポキシ）エトキシ］－２－ナフチル}フルオレン、９，９－ビス{５－[２－（２，３－エピチオプロポキシ）エトキシ]－１－ナフチル}フルオレン等のフルオレン骨格を有するエピスルフィド化合物等を挙げることができる。

[0050] 前記ビニルエーテル基を１分子中に２個以上有する化合物（以後、「ビニルエーテル化合物」と称する場合がある）としては、例えば、イソソルバイドジビニルエーテル、オキシノルボルネンジビニルエーテル等の環状エーテル型ビニルエーテル化合物（オキシラン環、オキセタン環、オキソラン環等の環状エーテル基を有するビニルエーテル化合物）；ハイドロキノンジビニルエーテル等のアリールジビニルエーテル化合物；１，４－ブタンジオールジビニルエーテル等の鎖状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物；トリエチレングリコールジビニルエーテル等の鎖状エーテル型ビニルエーテル化合物；シクロヘキサンジビニルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジビニルエーテル等の環状炭化水素基を有するビニルエーテル化合物を挙げることができる。

[0051] 成分（Ａ）は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせで使用することができる。本発明の封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（１００重量％）における成分（Ａ）の含有量（配合量）は、例えば３０～８０重量％程度、好ましくは４０～６０重量％である。成分（Ａ）の含有量を上記範囲で含有すると、硬化の遅延を所望する間は硬化の進行を抑制することができ、加熱処理を施した後は速やかに硬化することができる点で好ましい。成分（Ａ）の含有量が上記範囲を下回ると、加熱処理を施しても十分な硬化速度が得難くなる傾向がある。一方、成分（Ａ）の含有量が上記範囲を上回ると、十分な硬化遅延効果が得難くなる傾向がある。

[0052] （成分（Ｂ））

本発明の成分（Ｂ）は光の照射によってカチオン種を発生してカチオン硬化性化合物の硬化反応を開始させる光カチオン重合開始剤である。光カチオン重合開始剤は、光を吸収するカチオン部と酸の発生源となるアニオン部か

らなる。

[0053] 本発明の光カチオン重合開始剤としては、例えば、ジアゾニウム塩系化合物、ヨードニウム塩系化合物、スルホニウム塩系化合物、ホスホニウム塩系化合物、セレンニウム塩系化合物、オキソニウム塩系化合物、アンモニウム塩系化合物、臭素塩系化合物等を挙げることができる。なかでも、スルホニウム塩系化合物を使用することが、硬化性に優れた硬化物を形成することができる点で好ましい。

[0054] スルホニウム塩系化合物のカチオン部としては、例えば、トリフェニルスルホニウムイオン、ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウムイオン、トリ-p-トリルスルホニウムイオン等のアリールスルホニウムイオン（特に、トリアリールスルホニウムイオン）を挙げることができる。

[0055] 光カチオン重合開始剤のアニオン部としては、例えば、 BF_4^- 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ 、 PF_6^- 、 $[(\text{Rf})_n\text{PF}_{6-n}]^-$ （ Rf ：水素原子の80%以上がフッ素原子で置換されたアルキル基、 n ：1～5の整数）、 AsF_6^- 、 SbF_6^- 、 SbF_5OH 等を挙げることができる。

[0056] 本発明の光カチオン重合開始剤としては、例えば、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニル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、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、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、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニルフェニルスルホニウム トリス(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート、商品名「サイラキュアUVI-6970」、「サイラキュアUVI-6974」、「サイラキュアUVI-6990」、「サイラキュアUVI-950」（以上、米国ユニオンカーバイド社製）、「イルガキュア250」、「イルガキュア261」、「イルガキュア264」（以上、BASF社製）、「SP-150」、「SP-151」、「SP-170」、「オプト

マーSP-171」(以上、(株)ADEKA製)、「CG-24-61」(チバ・ジャパン社製)、「DAICAT II」((株)ダイセル製)、「UVAC1590」、「UVAC1591」(以上、ダイセル・サイテック(株)製)、「CI-2064」、「CI-2639」、「CI-2624」、「CI-2481」、「CI-2734」、「CI-2855」、「CI-2823」、「CI-2758」、「CIT-1682」(以上、日本曹達(株)製)、「PI-2074」(ローディア社製、テトラキス(ペンタフルオロフェニルボレート) トルイルクミルヨードニウム塩)、「FFC509」(3M社製)、「BBI-102」、「BBI-101」、「BBI-103」、「MPI-103」、「TPS-103」、「MDS-103」、「DTS-103」、「NAT-103」、「NDS-103」(以上、ミドリ化学(株)製)、「CD-1010」、「CD-1011」、「CD-1012」(米国、Sartomer社製)、「CPI-100P」、「CPI-101A」(以上、サンアプロ(株)製)等を挙げることができる。これらは1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0057] 成分(B)の使用量(配合量)は本発明の封止用組成物に含まれるカチオン硬化性化合物(2種以上含有する場合はその総量)100重量部に対して、例えば0.05~4重量部程度、好ましくは0.2~2重量部である。

[0058] (成分(C))

本発明の封止用組成物は、成分(C)としてアゾール系化合物を含有する。アゾール系化合物は光カチオン重合開始剤から発生するカチオンに対して弱塩基性を示すため、光照射を施すことにより光カチオン重合開始剤から発生したカチオンをトラップする作用を有し、光照射後に加熱処理を施すまでは硬化遅延効果を発揮する。また、光照射後に加熱処理を施すことによりトラップしたカチオンを放出し、封止用組成物の硬化を進行させる働きを有する。そのため、加熱処理を施すタイミングを調整することにより硬化の開始をコントロールすることができ、貼り合わせ作業の遅滞により貼り合わせが

困難となることを防止することができる。

[0059] 前記アゾール系化合物としては、例えば、ピロール化合物、ピラゾール化合物、3, 5-ジメチルピラゾール化合物、イミダゾール化合物、1, 2, 3-トリアゾール化合物、1, 2, 4-トリアゾール化合物等を挙げることができる。これらは1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。本発明においては、なかでも3, 5-ジメチルピラゾールが、室温において硬化遅延性を示し、100℃以下の温度で加熱することにより硬化を進行させることができる点で好ましい。

[0060] 成分(C)の使用量(配合量)は、本発明の封止用組成物に含まれる成分(B)(2種以上含有する場合はその総量)100重量部に対して、例えば5~25重量部程度、好ましくは10~25重量部である。成分(C)を上記範囲で含有することが、十分な硬化遅延効果を得ることができる点で好ましい。成分(C)の含有量が上記範囲を下回ると、十分な硬化遅延効果が得難くなる傾向がある。一方、成分(C)の含有量が上記範囲を上回ると、加熱処理を施しても十分な硬化速度が得難くなる傾向があり、硬化不良を生じる場合がある。

[0061] (成分(D))

本発明の封止用組成物は、成分(D)として、上記成分(A)以外のカチオン硬化性化合物を1種又は2種以上含んでもよい。

[0062] 上記成分(A)以外のカチオン硬化性化合物としては、例えば、成分(A)以外のエポキシ基を有する化合物(以後、「他のエポキシ化合物」と称する場合がある)、ビニル基を有する化合物、アリル基を有する化合物等を挙げることができる。

[0063] 前記他のエポキシ化合物には、脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物、グリシジルエーテル系エポキシ化合物、グリシジルエステル系エポキシ化合物、グリシジルアミン系エポキシ化合物等が含まれる。

[0064] 上記脂環にエポキシ基が直接単結合で結合した化合物としては、例えば、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(商品名「EHPE3150」、(株)ダイセル製)等を挙げることができる。

[0065] 上記グリシジルエーテル系エポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、ビスフェノールE型エポキシ化合物、*o*-フェニルフェノールグリシジルエーテル、ビスフェノール型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、クレゾールノボラック型エポキシ化合物、ビスフェノールAのクレゾールノボラック型エポキシ化合物、ナフタレン型エポキシ化合物、トリスフェノールメタンから得られるエポキシ化合物等の芳香族グリシジルエーテル系エポキシ化合物；脂肪族ポリグリシジルエーテル等の脂肪族グリシジルエーテル系エポキシ化合物；水素化ビスフェノールA型エポキシ化合物(2, 2-ビス[4-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]プロパン、2, 2-ビス[3, 5-ジメチル-4-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]プロパン、及びこれらの多量体等のビスフェノールA型エポキシ化合物を水素化した化合物)、水素化ビスフェノールF型エポキシ化合物(ビス[*o*, *o*-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]メタン、ビス[*o*, *p*-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]メタン、ビス[*p*, *p*-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]メタン、ビス[3, 5-ジメチル-4-(2, 3-エポキシプロポキシ)シクロヘキシル]メタン、及びこれらの多量体等)、水添ビスフェノール型エポキシ化合物、水添フェノールノボラック型エポキシ化合物、水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物、ビスフェノールAの水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物、水添ナフタレン型エポキシ化合物、トリスフェノールメタンから得られるエポキシ化合物の水添エポキシ化合物等の水素化グリシジルエーテル系エポキシ化合物等を挙げることができる。例えば、商品名「YL-983U」(三菱化学(株)製)、「R1710」(プリンテック(株)製)、「SY-OPG」、「PEG」(以上、阪本薬品工業(株)製)等の市販品を使用することができる。

- [0066] 前記ビニル基を有する化合物としては、例えば、スチレン、*p*-メチルスチレン、エチルスチレン、プロピルスチレン、イソプロピルスチレン、*p*-*tert*-ブチルスチレンなどのスチレン系化合物；N-ビニルカルバゾール、N-ビニルピロリドン等の窒素ビニル化合物等を挙げることができる。
- [0067] 前記アリル基を有する化合物としては、例えば、アリル（メタ）アクリレート、ジアリルマレエート、トリアリルシアヌレート、ジアリルフタレート等を挙げることができる。
- [0068] 本発明においては、なかでも、室温での硬化速度が遅い点で、他のエポキシ化合物（特に好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物、最も好ましくはグリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有し、且つエステル結合やポリエーテル構造を有さない化合物）を使用することが、アウトガスの発生を抑制しつつ、硬化遅延性をより安定化させる効果が得られる点で好ましい。
- [0069] 本発明の封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（100重量％）における成分（D）の含有量は、例えば20～70重量％程度、好ましくは20～50重量％である。成分（D）を上記範囲で含有することが、硬化遅延性を安定化させることができる点で好ましい。
- [0070] （成分（E））
- 本発明の封止用組成物は、さらにまた、成分（E）としてアリルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（以後、「アリルエーテル化合物」と称する場合がある）を含有していてもよい。前記化合物を添加することにより封止用組成物に硬化遅延安定性を付与することができる。
- [0071] 上記アリルエーテル化合物としては、例えば、2,2-ビス（4-アリルオキシフェニル）プロパン、2,2'-ビス（アリロキシ）-1,1'-ビスフェニル等を挙げることができる。例えば、商品名「BPA-AE」（小西化学工業（株）製）等の市販品を使用することができる。
- [0072] 本発明においては、なかでも、低透湿性に優れる硬化物を形成することができる点で、アリルエーテル基を1分子中に1個以上有し、且つエステル結

合やポリエーテル構造を有さない化合物を使用することが、アウトガスの発生を抑制しつつ、硬化遅延性をより安定化させる効果が得られる点で好ましい。

[0073] 本発明の封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（１００重量％）における成分（Ｅ）の含有量は、例えば１０～７０重量％程度、好ましくは２０～５０重量％である。成分（Ｅ）を上記範囲で含有することが、硬化遅延性を安定化させることができる点で好ましい。

[0074] さらに、本発明の封止用組成物に含まれる全カチオン硬化性化合物（１００重量％）における成分（Ｄ）と成分（Ｅ）の含有量の和は、例えば２０～７０重量％程度、好ましくは２０～５０重量％である。成分（Ｄ）と成分（Ｅ）を上記範囲で含有することが、硬化遅延性を安定化させることができる点で好ましい。

[0075] （添加剤）

本発明の封止用組成物は上記成分以外にも、必要に応じて添加剤を含有していても良い。前記添加剤としては、例えば、導電性材料、充填材（有機フィラー、無機フィラー）、重合禁止剤、シランカップリング剤、酸化防止剤、光安定剤、可塑剤、レベリング剤、消泡剤、有機溶剤、紫外線吸収剤、イオン吸着体、顔料、蛍光体、離型剤等を挙げることができる。本発明の封止用組成物全量における添加剤の含有量は、例えば３０重量％以下、好ましくは２０重量％以下、特に好ましくは１０重量％以下である。

[0076] 本発明の封止用組成物を硬化させて得られる封止材に導電性が求められる場合は、本発明の封止用組成物に導電性材料を含有することが好ましく、特に、下記導電性繊維被覆粒子を含有することが、導電性と透明性とを兼ね備えた封止材を得ることができる点で好ましい。

[0077] （導電性繊維被覆粒子）

導電性繊維被覆粒子とは、粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質（本明細書では「導電性繊維」と称する場合がある）とを含む導電性繊維被覆粒子である。尚、本発明の導電性繊維被覆粒子において「被

覆する」とは、導電性繊維が粒子状物質の表面の一部又は全部を覆った状態を意味する。本発明の導電性繊維被覆粒子においては、導電性繊維が粒子状物質の表面の少なくとも一部を被覆していればよく、例えば、被覆された部分よりも被覆されていない部分の方が多く存在していてもよい。尚、本発明の導電性繊維被覆粒子においては、必ずしも粒子状物質と導電性繊維とが接触している必要はないが、通常、導電性繊維の一部は粒子状物質の表面に接触している。

[0078] 図1は、本発明の導電性繊維被覆粒子の走査型電子顕微鏡像の一例である。図1に示すように、本発明の導電性繊維被覆粒子は、粒子状物質（図1における真球状の物質）の少なくとも一部が導電性繊維（図1における繊維状の物質）により被覆された構成を有する。

[0079] （粒子状物質）

本発明の導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質は、粒子状の構造体である。

[0080] 上記粒子状物質を構成する材料（素材）は、特に限定されず、例えば、金属、プラスチック、ゴム、セラミック、ガラス、シリカなどの公知乃至慣用の材料が挙げられる。本発明においては、なかでも、透明プラスチック、ガラス、シリカなどの透明な材料を使用することが好ましく、特に、透明プラスチックを使用することが好ましい。

[0081] 上記透明プラスチックには熱硬化性樹脂及び熱可塑性樹脂等が含まれる。前記熱硬化性樹脂としては、例えば、ポリ（メタ）アクリレート樹脂；ポリスチレン樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリエステル樹脂；ポリウレタン樹脂；エポキシ樹脂；ポリスルホン樹脂；非晶性ポリオレフィン樹脂；ジビニルベンゼン、ヘキサトリエン、ジビニルエーテル、ジビニルスルホン、ジアリルカルビノール、アルキレンジアクリレート、オリゴ又はポリアルキレングリコールジアクリレート、オリゴ又はポリアルキレングリコールジメタクリレート、アルキレントリアクリレート、アルキレンテトラアクリレート、アルキレントリメタクリレート、アルキレンテトラメタクリレート、アルキ

レンビスアクリルアミド、アルキレンビスメタクリルアミド、両末端アクリル変性ポリブタジエンオリゴマーなどの多官能性モノマーを単独で又はその他のモノマーと重合させて得られる網目状ポリマー；フェノールホルムアルデヒド樹脂、メラミンホルムアルデヒド樹脂、ベンゾグアナミンホルムアルデヒド樹脂、尿素ホルムアルデヒド樹脂等を挙げることができる。前記熱可塑性樹脂としては、例えば、エチレン／酢酸ビニル共重合体、エチレン／酢酸ビニル／不飽和カルボン酸共重合体、エチレン／エチルアクリレート共重合体、エチレン／メチルメタクリレート共重合体、エチレン／アクリル酸共重合体、エチレン／メタクリル酸共重合体、エチレン／無水マレイン酸共重合体、エチレン／アミノアルキルメタクリレート共重合体、エチレン／ビニルシラン共重合体、エチレン／グリシジルメタクリレート共重合体、エチレン／ヒドロキシエチルメタクリレート共重合体、（メタ）アクリル酸メチル／スチレン共重合体、アクリロニトリル／スチレン共重合体等を挙げることができる。

[0082] 上記粒子状物質の形状は、特に限定されないが、例えば、球状（真球状、略真球状、楕円球状など）、多面体状、棒状（円柱状、角柱状など）、平板状、りん片状、不定形状等を挙げることができる。本発明においては、なかでも、導電性繊維被覆粒子を高い生産性で製造でき、硬化性化合物と均一に分散しやすく、硬化物全体へ容易に導電性を付与することができる点で、球状が好ましく、特に好ましくは真球状である。

[0083] 上記粒子状物質の平均粒子径は、特に限定されないが、 $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、特に好ましくは $1 \sim 50 \mu\text{m}$ 、最も好ましくは $5 \sim 30 \mu\text{m}$ である。平均粒子径が上記範囲を下回ると、少量の導電性繊維被覆粒子の配合によって優れた導電性を発現させることが困難となる場合がある。平均粒子径が上記範囲を上回ると、有機EL素子の封止層の厚みよりも平均粒子径が大きくなり、均一な厚みの塗膜を形成することが困難となる傾向がある。尚、上記粒子状物質の平均粒子径は、レーザー回折・散乱法によるメディアン径（ d_{50} ）である。

- [0084] 上記粒子状物質は透明であることが好ましい。具体的には、上記粒子状物質の可視光波長領域における全光線透過率は、特に限定されないが、70%以上が好ましく、特に好ましくは80%以上である。全光線透過率が上記範囲を下回ると、硬化物（導電性繊維被覆粒子を含む）の透明性が低下する場合がある。
- [0085] 尚、上記粒子状物質の可視光波長領域における全光線透過率は、該粒子状物質の原料であるモノマーをガラス間で80～150℃の温度領域で重合させて厚さ1mmの平板を得、当該平板の可視光波長領域における全光線透過率をJIS K7361-1に準拠して測定することにより求められる。また、ガラスのみの全光線透過率を同様に測定し、得られた値をブランク（全光線透過率100%）とした。
- [0086] また、上記粒子状物質は柔軟性を有することが好ましく、各粒子の10%圧縮強度は例えば10kgf/mm²以下、好ましくは5kgf/mm²以下、特に好ましくは3kgf/mm²以下である。10%圧縮強度が上記範囲である粒子状物質を含む導電性繊維被覆粒子は加圧することにより微細な凹凸構造に追従して変形する。そのため、該導電性繊維被覆粒子を含有する封止用組成物を微細な凹凸構造を有する形状に硬化した場合、該粒子状物質を細部にまで行き渡らせることができ、導電性が不良となる部分の発生を防止することができる。
- [0087] 上記粒子状物質の屈折率は、特に限定されないが、1.4～2.7が好ましく、特に好ましくは1.5～1.8である。尚、上記粒子状物質の屈折率は、該粒子状物質がプラスチック粒子の場合には、粒子状物質の原料であるモノマーをガラス間で80～150℃の温度領域で重合させ、縦20mm×横6mmの試験片を切り出し、中間液としてモノプロモナフタレンを使用してプリズムと該試験片とを密着させた状態で、多波長アッペ屈折計（商品名「DR-M2」、（株）アタゴ製）を使用し、25℃、ナトリウムD線での屈折率を測定することにより求めることができる。
- [0088] また、上記粒子状物質は、成分（A）の硬化物との屈折率（25℃、波長

589.3 nmにおける)の差が小さいことが好ましく、導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と成分(A)の硬化物の屈折率差の絶対値は、例えば0.1以下(好ましくは0.05以下、特に好ましくは0.02以下)である。

すなわち、本発明の封止用組成物に含まれる導電性繊維被覆粒子と硬化性化合物は、下記式を満たすことが好ましい。

$$|\text{粒子状物質の屈折率} - \text{成分(A)の硬化物の屈折率}| \leq 0.1$$

[0089] 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と成分(A)の硬化物の屈折率差を上記範囲にすることにより、透明性に優れ、ヘイズが例えば10%以下(好ましくは6%以下、さらに好ましくは3%以下)、全光線透過率が90%以上(好ましくは93%以上)の硬化物を得ることができる。尚、本発明の硬化物のヘイズは、JIS K7136に準拠して測定することができる。また、本発明の硬化物の可視光波長領域における全光線透過率(厚さ:10 μm、波長:450 nm)は、JIS K7361-1に準拠して測定することができる。

[0090] さらに、本発明の導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質は、シャープな粒度分布を有すること(=粒子径のバラツキが少ないこと)が、より少ない使用量で優れた導電性を付与することができる点で好ましく、変動係数(CV値)が50%以下であることが好ましい。尚、変動係数とは、標準偏差を平均粒径で除した値であり、粒子サイズの均一性の指標となる値である。

[0091] 上記粒子状物質は、公知乃至慣用の方法により製造でき、その製造方法は特に限定されない。例えば、金属粒子の場合には、CVD法や噴霧熱分解法等の気相法や、化学的還元反応による湿式法などにより製造できる。また、プラスチック粒子の場合には、例えば、上記で例示した樹脂(ポリマー)を構成するモノマーを懸濁重合法、乳化重合法、シード重合法、分散重合法等の公知の重合方法により重合する方法などにより製造できる。

[0092] 本発明においては市販品を使用することもできる。熱硬化性樹脂から成る粒子状物質としては、例えば、商品名「テクポリマー MBXシリーズ」、

「テクポリマー BMXシリーズ」、「テクポリマー ABXシリーズ」、
「テクポリマー ARXシリーズ」、「テクポリマー AFXシリーズ」（
以上、積水化成品工業（株）製）、商品名「ミクロパールSP」、「ミクロ
パールSI」（以上、積水化学工業（株）製）；熱可塑性樹脂から成る粒子
状物質としては、例えば、商品名「ソフトビーズ」（住友精化（株）製）、
商品名「デュオマスター」（積水化成品工業（株）製）等を使用することが
できる。

[0093] （繊維状の導電性物質（導電性繊維））

本発明の導電性繊維被覆粒子を構成する導電性繊維は、導電性を有する繊維状の構造体（線状構造体）である。上記導電性繊維の形状は繊維状（ファイバー状）であればよく、特に限定されないが、その平均アスペクト比は例えば10以上、好ましくは20～5000、特に好ましくは50～3000、最も好ましくは100～1000である。平均アスペクト比が上記範囲を下回ると、少量の導電性繊維被覆粒子の配合によって優れた導電性を発現させることが困難となる場合がある。上記導電性繊維の平均アスペクト比は、粒子状物質の平均アスペクト比と同様の手順で求められる。尚、上記導電性繊維における「繊維状」の概念には、「ワイヤー状」、「ロッド状」等の各種の線状構造体の形状も含まれる。また、本明細書においては、平均太さが1000nm以下の繊維を「ナノワイヤ」と称する場合がある。

[0094] 上記導電性繊維の平均太さ（平均直径）は、特に限定されないが、1～400nmが好ましく、特に好ましくは10～200nm、最も好ましくは50～150nmである。平均太さが上記範囲を下回ると、導電性繊維同士が凝集しやすく、導電性繊維被覆粒子の製造が困難となる場合がある。一方、平均太さが上記範囲を上回ると、粒子状物質を被覆することが困難となり、効率的に導電性繊維被覆粒子を得ることが困難となる場合がある。上記導電性繊維の平均太さは、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、これらの導電性繊維の太さ（

直径)を計測し、算術平均することにより求められる。

- [0095] 上記導電性繊維の平均長さは、特に限定されないが、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、特に好ましくは $5 \sim 80 \mu\text{m}$ 、最も好ましくは $10 \sim 50 \mu\text{m}$ である。平均長さが上記範囲を下回ると、粒子状物質を被覆することが困難となり、効率的に導電性繊維被覆粒子を得ることができなくなる場合がある。一方、平均長さが上記範囲を上回ると、導電性繊維同士がからまりやすくなる。上記導電性繊維の平均長さは、電子顕微鏡 (SEM、TEM) を用いて十分な数 (例えば100個以上、好ましくは300個以上; 特に、100個、300個) の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、これらの導電性繊維の長さを計測し、算術平均することにより求められる。尚、導電性繊維の長さについては、直線状に伸ばした状態で計測すべきであるが、現実には屈曲しているものが多いため、電子顕微鏡像から画像解析装置を用いて導電性繊維の投影径及び投影面積を算出し、円柱体を仮定して下記式から算出するものとする。

$$\text{長さ} = \text{投影面積} / \text{投影径}$$

- [0096] 上記導電性繊維を構成する材料 (素材) は、導電性を有する素材であればよく、例えば、金属、半導体、炭素材料、導電性高分子等を挙げることができる。
- [0097] 上記金属としては、例えば、金、銀、銅、鉄、ニッケル、コバルト、錫、及びこれらの合金等の公知乃至慣用の金属を挙げることができる。本発明においては、なかでも、導電性に優れる点で銀が好ましい。
- [0098] 上記半導体としては、例えば、硫化カドミウム、セレン化カドミウム等の公知乃至慣用の半導体を挙げることができる。
- [0099] 上記炭素材料としては、例えば、炭素繊維、カーボンナノチューブ等の公知乃至慣用の炭素材料を挙げることができる。
- [0100] 上記導電性高分子としては、例えば、ポリアセチレン、ポリアセン、ポリパラフェニレン、ポリパラフェニレンビニレン、ポリピロール、ポリアニリン、ポリチオフェン、及びこれらの誘導体 (例えば、共通するポリマー骨格

にアルキル基、ヒドロキシル基、カルボキシル基、エチレンジオキシ基等の置換基を有するもの；具体的には、ポリエチレンジオキシチオフェン等）等を挙げることができる。本発明においては、なかでも、ポリアセチレン、ポリアニリン及びその誘導体、ポリピロール及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体が好ましい。尚、上記導電性高分子には、公知乃至慣用のドーパント（例えば、ハロゲン、ハロゲン化物、ルイス酸等のアクセプター；アルカリ金属、アルカリ土類金属等のドナー等）が含まれていてもよい。

[0101] 本発明の導電性繊維としては導電性ナノワイヤが好ましく、特に、金属ナノワイヤ、半導体ナノワイヤ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、及び導電性高分子ナノワイヤからなる群より選択される少なくとも一種の導電性ナノワイヤが好ましく、特に導電性に優れる点で銀ナノワイヤが最も好ましい。

[0102] 上記導電性繊維は、公知乃至慣用の製造方法により製造することができる。例えば、上記金属ナノワイヤは、液相法や気相法等により製造することができる。より具体的には、銀ナノワイヤは、例えば、Mater.Chem.Phys.2009, 114, 333-338、Adv.Mater.2002, 14, P833-837や、Chem.Mater.2002, 14, P4736-4745、特表2009-505358号公報に記載の方法により製造することができる。また、金ナノワイヤは、例えば、特開2006-233252号公報に記載の方法により製造することができる。また、銅ナノワイヤは、例えば、特開2002-266007号公報に記載の方法により製造することができる。また、コバルトナノワイヤは、例えば、特開2004-149871号公報に記載の方法により製造することができる。更に、半導体ナノワイヤは、例えば、特開2010-208925号公報に記載の方法により製造することができる。上記炭素繊維は、例えば、特開平06-081223号公報に記載の方法により製造することができる。上記カーボンナノチューブは、例えば、特開平06-157016号公報に記載の方法により製造することができる。上記導電性高分子ナノワイヤは、例えば、特開2006-241334号公報、特開2010-76044号公報に記載の方法により製造することができる。上記導電性繊維としては、市販品を使用することも可

能である。

[0103] 本発明の導電性繊維被覆粒子は、上述の粒子状物質と導電性繊維とを溶媒中で混合することにより製造することができる。本発明の導電性繊維被覆粒子の製造方法として、具体的には、下記の（１）～（４）の方法等を挙げることができる。

（１）上記粒子状物質を溶媒に分散させた分散液（「粒子分散液」と称する）と、上記導電性繊維を溶媒に分散させた分散液（「繊維分散液」と称する）とを混合し、必要に応じて溶媒を除去して、本発明の導電性繊維被覆粒子（又は該導電性繊維被覆粒子の分散液）を得る。

（２）上記粒子分散液に上記導電性繊維を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、本発明の導電性繊維被覆粒子（又は該導電性繊維被覆粒子の分散液）を得る。

（３）上記繊維分散液に上記粒子状物質を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、本発明の導電性繊維被覆粒子（又は該導電性繊維被覆粒子の分散液）を得る。

（４）溶媒に上記粒子状物質及び上記導電性繊維を配合し、混合した後、必要に応じて溶媒を除去して、本発明の導電性繊維被覆粒子（又は該導電性繊維被覆粒子の分散液）を得る。

[0104] 本発明の導電性繊維被覆粒子を製造する際に使用される溶媒としては、例えば、水；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール等のアルコール；アセトン、メチルエチルケトン（MEK）、メチルイソブチルケトン（MIBK）等のケトン；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチル等のエステル；N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミド等のアミド；アセトニトリル、プロピオニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル等を挙げるができる。これらは一種を単独で、又は二種以上を組み合わせ（即ち、混合溶媒として

）使用することができる。本発明においては、なかでも、アルコール、ケトンが好ましい。

[0105] また、上記カチオン硬化性化合物（成分（A）等）が液状のものであれば（例えば、エポキシ化合物）、これを溶媒として使用することも可能である。液状の硬化性化合物を溶媒として使用することにより、溶媒を除去する工程を経ることなく、硬化性化合物と導電性繊維被覆粒子とを含む封止用組成物を得ることができる。

[0106] 上記溶媒の粘度は、特に限定されないが、導電性繊維被覆粒子を効率的に製造することができる点で、25℃における粘度が10cP以下（例えば、0.1～10cP）であることが好ましく、特に好ましくは0.5～5cPである。尚、溶媒の25℃における粘度は、例えば、E型粘度計（商品名「VISCONIC」、（株）トキメック製）を用いて測定することができる（ローター：1°34'×R24、回転数：0.5rpm、測定温度：25℃）。

[0107] 上記溶媒の1気圧における沸点は、導電性繊維被覆粒子を効率的に製造することができる点で、200℃以下が好ましく、特に好ましくは150℃以下、最も好ましくは120℃以下である。

[0108] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記粒子状物質の含有量は、溶媒100重量部に対して、例えば0.1～50重量部程度、好ましくは1～30重量部である。粒子状物質の含有量を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に生成することができる。

[0109] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記導電性繊維の含有量は、溶媒100重量部に対して、例えば0.1～50重量部程度、好ましくは1～30重量部である。導電性繊維の含有量を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に生成することができる。

[0110] 溶媒中で粒子状物質と導電性繊維とを混合する際の上記粒子状物質と上記導電性繊維の割合は、粒子状物質の表面積と導電性繊維の投影面積との比〔表面積／投影面積〕が、例えば100／1～100／100程度、好ましく

は $100/10 \sim 100/50$ となるような割合であることが好ましい。上記比を上記範囲に制御することにより、導電性繊維被覆粒子をより効率的に生成することができる。尚、上記粒子状物質の表面積は、BET法（JIS Z 8830に準拠）により求めた比表面積に粒子状物質の質量（使用量）を乗ずる方法により求められる。また、上記導電性繊維の投影面積は、上述のように、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個）の導電性繊維について電子顕微鏡像を撮影し、画像解析装置を用いてこれらの導電性繊維の投影面積を算出し、算術平均することにより求められる。

[0111] 粒子状物質と導電性繊維とを混合後、溶媒を除去することによって、本発明の導電性繊維被覆粒子を固体として得ることができる。溶媒の除去は、特に限定されず、例えば、加熱、減圧留去等の公知乃至慣用の方法により実施できる。尚、溶媒は必ずしも除去する必要はなく、例えば、本発明の導電性繊維被覆粒子の分散液としてそのまま使用することもできる。

[0112] 本発明の導電性繊維被覆粒子は、上述のように、原料（粒子状物質及び導電性繊維）を溶媒中で混合することによって製造することができ、複雑な工程を必要としないため、製造コストの面で有利である。このように、溶媒中での混合という簡便な方法により製造することができるのは、原材料として使用する繊維状の導電性物質（特に、平均アスペクト比が10以上の導電性繊維）の表面エネルギーが大きく、表面エネルギーを下げて安定化するために優先的に粒子表面へ付着乃至吸着することによるものと推測される。

[0113] 特に、粒子状物質と導電性繊維の組み合わせとして、平均粒子径 A [μm] の粒子状物質と平均長さ $A \times 0.5$ [μm] 以上（好ましくは $A \times 1.0$ [μm] 以上、特に好ましくは $A \times 1.5$ [μm] 以上）の導電性繊維を使用することによって、より効率的に本発明の導電性繊維被覆粒子を製造することができる。特に、真球状又は略真球状の粒子状物質の場合には、平均周長 B [μm] の粒子状物質と平均長さ $(B \times 1/6)$ [μm] 以上（好ましくは、 B [μm] 以上）の導電性繊維を使用することが好ましい。尚、上記

粒子状物質の平均周長は、電子顕微鏡（SEM、TEM）を用いて十分な数（例えば100個以上、好ましくは300個以上；特に、100個、300個等）の粒子状物質について電子顕微鏡像を撮影し、これらの粒子状物質の周長を計測し、算術平均することにより求められる。

[0114] 本発明の導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と導電性繊維の割合は、粒子状物質の表面積と導電性繊維の投影面積との比〔表面積／投影面積〕が、例えば100／1～100／100程度（特に100／10～100／50）となるような割合であることが、硬化物の透明性を確保しつつ、より効率的に導電性を付与することができる点で好ましい。尚、上記粒子状物質の表面積及び導電性繊維の投影面積は、それぞれ上述の方法により求められる。

[0115] 本発明の導電性繊維被覆粒子は上記構成を有するため、硬化物に少量を添加することで優れた導電性（特に、厚み方向への導電性）を付与することができ、透明性と導電性に優れた硬化物を形成することができる。

[0116] そして、本発明の導電性繊維被覆粒子が柔軟性を有する場合（例えば、10％圧縮強度が3kgf／mm²以下の場合）は、当該導電性繊維被覆粒子を含む封止用組成物を微細な凹凸を有する形状に成形した際、導電性繊維被覆粒子が前記凹凸構造に追従して変形し細部にまで行き渡るため、導電性が不良となる部分の発生を防止することができ、導電性能に優れた硬化物を形成することができる。

[0117] 封止用組成物における粒子状物質（導電性繊維被覆微粒子に含まれる粒子状物質）の含有量（配合量）は、硬化性化合物100重量部に対して、例えば0.09～6.0重量部程度、好ましくは0.1～4.0重量部、より好ましくは0.3～3.5重量部、さらに好ましくは0.3～3.0重量部、特に好ましくは0.3～2.5重量部、最も好ましくは0.5～2.0重量部である。前記粒子状物質の含有量が上記範囲を下回ると、用途によっては、得られる硬化物の導電性が不十分となる場合がある。一方、前記粒子状物質の含有量が上記範囲を上回ると、用途によっては、得られる硬化物の透明

性が不十分となる場合がある。

[0118] 封止用組成物における前記粒子状物質の含有量は、封止用組成物の全量（100体積％）に対して、例えば0.02～7体積％程度、好ましくは0.1～5体積％、特に好ましくは0.3～3体積％、最も好ましくは0.4～2体積％である。

[0119] 封止用組成物における導電性繊維の含有量（配合量）は、硬化性化合物100重量部に対して、例えば0.01～1.0重量部程度、好ましくは0.02～0.8重量部、より好ましくは0.03～0.6重量部、特に好ましくは0.03～0.4重量部、最も好ましくは0.03～0.2重量部である。前記導電性繊維の含有量が上記範囲を下回ると、用途によっては、得られる硬化物の導電性が不十分となる場合がある。一方、前記導電性繊維の含有量が上記範囲を上回ると、用途によっては、得られる硬化物の透明性が不十分となる場合がある。

[0120] 封止用組成物における前記導電性繊維の含有量は、封止用組成物の全量（100体積％）に対して、0.01～1.1体積％が好ましく、より好ましくは0.02～0.9体積％、特に好ましくは0.03～0.7体積％、最も好ましくは0.03～0.4体積％である。

[0121] 本発明の封止用組成物は、成分（A）、成分（B）、成分（C）、及び必要に応じて成分（D）、成分（E）、及び添加剤（例えば、導電性繊維被覆粒子等）を、自公転式攪拌脱泡装置、ホモジナイザー、プラネタリーミキサー、3本ロールミル、ビーズミル等の一般的に知られる混合用機器を使用して均一に混合することにより製造することができる。尚、各成分は、同時に混合してもよいし、逐次混合してもよい。

[0122] 本発明の封止用組成物は、光照射を施し、その後加熱処理を施すことにより硬化することができる。光照射は、厚み100 μ mの塗膜の場合、水銀ランプ等で500mJ/cm²以上の光を照射することが好ましい。また、加熱処理は、オープン等により、例えば40～150℃（特に好ましくは60～120℃、最も好ましくは80～110℃）で、10～200分間（特に好

ましくは30～120分間)加熱することが好ましい。

[0123] 本発明の封止用組成物はカチオントラップ作用を有する上記成分(C)を含有するため、光照射を施してもカチオン重合開始剤から発生したカチオンは成分(C)にトラップされるため、光照射後、加熱処理を施すまではカチオン重合の進行が抑制される。すなわち、硬化遅延効果が発揮される。そして、光照射後に加熱処理を施すことで、成分(C)にトラップされたカチオンが放出され、カチオン硬化性化合物のカチオン重合が進行して、硬化を完了させることができる。すなわち、加熱処理を施すタイミングを調整することにより硬化の進行を任意にコントロールすることができる。

[0124] 本発明の封止用組成物に200W/cmの水銀ランプで紫外線を照射(照射量:2000mJ/cm²)後30分の粘度(25℃、せん断速度:20(1/s))は、例えば5000～100mPa・s程度、好ましくは1000～100mPa・sである。

[0125] そして、上記方法により硬化して得られる硬化物は水蒸気透過性が低く(すなわち、防湿性に優れ)、硬化物(厚さ:100μm、硬化度:50%以上)の透湿量は、例えば150g/m²・day・atm以下、好ましくは100g/m²・day・atm以下、特に好ましくは80g/m²・day・atm以下、最も好ましくは50g/m²・day・atm以下である。尚、硬化物の水蒸気透過性又は防湿性は、JIS L 1099およびJIS Z 0208に準じて、厚み100μmに調整した硬化物の透湿量を、60℃、90%RHの条件下で測定することにより算出することができる。また、硬化物の硬化度は、DSCにより測定することができる。

[0126] また、上記方法により硬化して得られる硬化物(60mg)の硬化遅延剤由来のアウトガス量は90ppm以下程度(好ましくは70ppm以下、特に好ましくは50ppm以下)であり、低アウトガス性を示す。尚、アウトガス量はヘッドスペースGC/MSにより測定することができる。

[0127] また、本発明の封止用組成物が上記導電性繊維被覆粒子を含有する場合、それを硬化して得られる硬化物は導電性に優れ、電気抵抗率(25℃、1気

圧における)は $0.1\Omega\cdot\text{cm}\sim 10\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ 程度、好ましくは $0.1\Omega\cdot\text{cm}\sim 1\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ である。

[0128] 本発明の封止用組成物は、硬化遅延性を有し硬化開始時期を任意に調整できる。そのため封止用組成物に光照射し、その後有機EL素子に貼り合わせて加熱することにより有機EL素子をUVに曝すことなく、且つ貼り合わせが困難となる場合を生じることなく有機EL素子を封止することができる。また、本発明の封止用組成物は低アウトガス性及び防湿性を併せて有する硬化物を形成することができる。そのため、本発明の封止用組成物を使用すれば、水分やアウトガスから有機EL素子を保護することができ、水分やアウトガスによって引き起こされる有機EL素子の劣化を防止することができる。

[0129] [有機ELデバイス]

本発明の有機ELデバイスは、有機EL素子を備えたデバイスであって前記有機EL素子が本発明の封止用組成物で封止されているものである。

[0130] 本発明の封止用組成物を使用すれば、下記工程を経て有機EL素子（特に、トップ・エミッション型有機EL素子）を封止することにより、光照射による素子の劣化を防止しつつ、素子を封止することができ、長寿命で信頼性の高い有機ELデバイスを提供することができる。尚、光照射、及び加熱処理方法は上記方法により行うことができる。

工程1：本発明の有機EL素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

工程2：素子を設置した基板の素子設置面に、光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[0131] 本発明の有機EL素子の封止方法としては、より詳細には、下記方法1、2を挙げることができる。

<方法1：図2参照>

工程1-1：リッド上に本発明の封止用組成物を塗布して塗膜／リッド積層体を形成する

工程 1 - 2 : 塗膜に光照射を施す

工程 2 - 1 : 基板上に有機 E L 素子を設置し、有機 E L 素子設置面に光照射後の塗膜／リッド積層体を塗膜面が素子設置面に相対するように貼り合わせる

工程 2 - 2 : 加熱処理を施すことにより塗膜を硬化させる

[0132] <方法 2>

工程 1 - 1' : 剥離紙等の表面に本発明の封止用組成物を塗布して封止用シート又はフィルムを形成する

工程 1 - 2' : 封止用シート又はフィルムに光照射を施す

工程 2 - 1 : 基板上に有機 E L 素子を設置し、有機 E L 素子設置面側に光照射後の封止用シート又はフィルムを介してリッドを貼り合わせる

工程 2 - 2 : 加熱処理を施すことにより封止用シート又はフィルムを硬化させる

[0133] 前記リッド（蓋）や基板としては、防湿性基材を使用することが好ましく、例えば、ソーダガラス、無アルカリガラス等のガラス基板；ステンレス・アルミニウム等の金属基板；三フッ化ポリエチレン、ポリ三フッ化塩化エチレン（PCTFE）、ポリビニリデンフルオライド（PVDF）、PCTFEとPVDFとの共重合体、PVDFとポリフッ化塩化エチレンとの共重合体等のポリフッ化エチレン系ポリマー、ポリイミド、ポリカーボネート、ジシクロペンタジエン等のシクロオレフィン系樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリエチレン、ポリスチレン等の樹脂基板等を挙げることができる。

[0134] 前記有機 E L 素子には、陽極／発光層／負極の積層体が含まれる。必要に応じて SiN 膜等のパッシベーション膜を設けてもよい。

[0135] 本発明の封止用組成物からなる塗膜は、例えば、リッド（蓋）上にダム材を塗布してダムを形成し、そのダム内にディスペンサー等を使用して本発明の封止用組成物を吐出することにより形成することができる。塗膜の厚みは、素子を水分等から保護する目的を達成することができる範囲であれば特に

制限されることはない。

[0136] また、導電性繊維被覆粒子を含有する封止用組成物をディスペンサー等の吐出機で封止用組成物を吐出する際には、導電性繊維被覆粒子を封止用組成物中に高分散した状態で吐出することが好ましく、例えば、スクリー等の回転駆動構造を有する吐出機を使用して、スクリーの回転により封止用組成物を吐出するスクリー式吐出方法等により、攪拌しつつ吐出することが好ましい。スクリーの回転速度やスクリーの羽のサイズ等は、封止用組成物の粘度や、それに含まれる導電性繊維被覆粒子のサイズ等に応じて適宜調整することが好ましい。

[0137] 上記方法によれば、本発明の封止用組成物からなる塗膜に光照射を施した後で、有機EL素子に前記塗膜を貼り合わせるため、有機EL素子が直にUVに曝されることがなく、UVによる有機EL素子の劣化を防止することができる。また、低アウトガス性及び防湿性を併せて有する硬化物を形成する本発明の封止用組成物を使用して封止するため、水分やアウトガスから有機EL素子を保護することができる。

[0138] 上記方法により得られる有機ELデバイスは、有機EL素子が封止時にUVに曝されることにより引き起こされる劣化を有さず、低アウトガス性及び防湿性を併せて有する硬化物で保護されているため、長寿命で信頼性が高い。

実施例

[0139] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。尚、粘度は、レオメーター（商品名「Physica MCR301」、Anton Paar社製）を使用して測定した、25℃、せん断速度が20（1/s）の時の粘度である。

[0140] 実施例1

化合物（a-1）60重量部、化合物（d-1）40重量部、光カチオン重合開始剤（b-1）2重量部、及び硬化遅延剤（c-1）0.4重量部を、自転・公転ミキサー（商品名「あわとり練太郎 ARE-310」、（株）シンキー製

）内に投入して攪拌して封止用組成物（１）（粘度： $265\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ）を得た。

[0141] ガラス基板上に、得られた封止用組成物（１）を塗布して塗膜（１）（厚さ： $100\text{ }\mu\text{m}$ ）を形成し、水銀ランプで紫外線を照射（照射量： $1600\text{ mJ}/\text{cm}^2$ ）した。

紫外線照射直後の粘度は $892\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 、紫外線照射後３０分の粘度は $4540\text{ mPa}\cdot\text{s}$ であった。

その後、紫外線照射後の塗膜（１）を 100°C で１時間加熱して、硬化度５０％以上の硬化物（１）を得た。

得られた硬化物（１）について、下記方法によりアウトガス量及び水蒸気透過性を評価した。

[0142] 実施例２～１０、比較例１～５

下記表に示すように、処方を変更した以外は実施例１と同様にして封止用組成物を得、塗膜を得、硬化物（硬化度５０％以上）を得た。

得られた硬化物について、下記方法によりアウトガス量及び水蒸気透過性を評価した。

[0143] ＜アウトガス量＞

実施例及び比較例で得られた硬化物の硬化遅延剤由来のアウトガス量（単位： ppm ）は、バイアル瓶に硬化物 60 mg を入れ、UV照射（ $2000\text{ mJ}/\text{cm}^2$ ）して 100°C の条件下で１時間静置した後、バイアル瓶中のアウトガス量を測定した。尚、トルエン標準液〔標準物質としてのトルエン： 100 ppm 、溶媒：ヘキサン（ 60 mg ）〕を用いて検量線を作成した。また、測定機器としては、商品名「HP-6890N」（ヒューレットパッカート社製）を使用し、カラムは商品名「DB-624」（アジレント社製）を使用した。

[0144] ＜水蒸気透過性＞

実施例及び比較例で得られた硬化物の水蒸気透過性は、硬化物（厚み： $100\text{ }\mu\text{m}$ ）の透湿量（ $\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}\cdot\text{atm}$ ）を、JIS L 1099

及び J I S Z 0208 (カップ法) に準じて、60℃、90%RH 条件下で測定した。

[0145] [表1]

表 1

			実施例										比較例					
封止用組成物	硬化性化合物	a-1	60	40	60	50							10	40		40	40	
		a-2				40												
		a-3					70											
		a-4						35										
		a-5							60									
	光カチオン重合開始剤	b-1	2	2	2	2	2	2	2	2				2	2	2	2	2
		b-2									2							
		b-3										2						
	硬化遅延剤	c-1	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.15	0.1	0.15	0.4	0.4	0.4					
		c-2												3	1	3	1	
		c-3													30		50	
	他の硬化性化合物	d-1	40		15	20	25		35	40								
		d-2		10							10	10	60	10		50		
		d-3		50			35	30			50	50	40	50	30	50	50	
		d-4							30									
	硬化遅延安定剤	e-1			25													
		e-2				30												
粘度 (mPa・s)	UV照射前		265	178	114	167	228	993	3220	83	169	185	1100	166	250	717	534	
	UV照射直後		892	338	260	320	287	1080	3330	111	361	722	1100	硬化	硬化	784	713	
	UV照射後30分		4540	363	326	529	362	1080	3580	156	651	1320	1100	硬化	硬化	784	1090	
	硬化遅延剤由来のアウトガス量(ppm)		検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	検出無し	99	156	213	189	
	水蒸気透過性(g/m ² ・day・atm)		41	24	56	69	137	78	68	104	38	25	未硬化	29	55	44	未硬化	

[0146] 実施例 1 1

(導電性繊維被覆粒子の製造)

粒子状物質（プラスチック粒子、商品名「テクポリマー SM10X-8 JH」、メタクリル酸メチルスチレン共重合体、積水化成工業（株）製、10%圧縮強度：2.5 kgf/mm²、平均粒子径8.3 μm、屈折率：1.565）0.15重量部と2-ブタノール29.15重量部を混合して、粒子状物質の分散液を調製した。

得られた粒子状物質の分散液に、銀ナノワイヤ（アルドリッチ社製、平均長さ：20-50 μm、平均直径：115 nm）の分散液5.22重量部（銀ナノワイヤ0.15重量部）を混合し、その後、濾過することによって溶媒を除去して、導電性繊維被覆粒子（1）を得た〔プラスチック微粒子の表面積（総表面積）／銀ナノワイヤの投影面積（総投影面積）を算出すると、約100／15〕。

得られた導電性繊維被覆粒子を走査型電子顕微鏡（SEM）により観察した。その結果、プラスチック微粒子の表面に銀ナノワイヤが吸着している（プラスチック微粒子の表面が銀ナノワイヤにより被覆されている）ことが確認された（図1参照）。

[0147] (封止用組成物の調製)

得られた導電性繊維被覆粒子（1）1.0重量部と、バインダー樹脂としての化合物（a-1）5.2重量部と、化合物（d-2）1.9重量部と、硬化遅延剤（c-1）0.4重量部、及び硬化遅延安定剤（e-1）2.9重量部とを混合した後、光カチオン重合開始剤（b-1）2重量部を添加して封止用組成物（バインダー樹脂硬化後の屈折率：1.56）を得た。

[0148] 実施例12

(導電性繊維被覆粒子の製造)

銀ナノワイヤ（アルドリッチ社製、平均長さ：20-50 μm、平均直径：115 nm）に代えて、銀ナノワイヤ（Nanopyxis Co.Ltd、平均長さ：5-10 μm、平均直径：80 nm）を使用した以外は実施例11と同様にして、導電性繊維被覆粒子（2）を得た。

[0149] (封止用組成物の調製)

得られた導電性繊維被覆粒子(2)を使用した以外は実施例11と同様に
して、封止用組成物を得た。

[0150] (導電性の評価)

実施例11、12で得られた封止用組成物を、2枚の導電性ガラス基板(Luminescence Technology社製、サイズ:25mm×25mm、ITO厚み:0.14μm)の間に挟み、加重をかけながら、UV照射(2000mJ/cm²)して100℃の条件下で1時間熱処理を行うことにより、膜厚8.8μmの硬化物を得た。

得られた硬化物の体積抵抗率(=厚み方向の電気抵抗値)を、デジタルテスター又はエレクトロンメーター(ケースレー社製)を使用して測定した。

[0151] 上記結果をまとめて示す。

[表2]

表2

			実施例	
			11	12
封止用組成物	硬化性化合物	a-1	52	52
		a-2		
		a-3		
		a-4		
		a-5		
	光カチオン重合開始剤	b-1	2	2
		b-2		
		b-3		
	硬化遅延剤	c-1	0.4	0.4
		c-2		
		c-3		
	他の硬化性化合物	d-1		
		d-2	19	19
		d-3		
		d-4		
	硬化遅延安定剤	e-1	29	29
		e-2		
	導電性繊維被覆粒子	粒子状物質	0.85	0.85
		銀ナノワイヤ (アルドリッチ)	0.15	
		銀ナノワイヤ (Nanopyxis Co. Ltd)		0.15
粘度 (mPa・s)	UV照射前		162	177
	UV照射直後		180	192
	UV照射後30分		405	420
硬化遅延剤由来のアウトガス量(ppm)			検出無し	検出無し
水蒸気透過性(g/m ² ・day・atm)			52	53
体積抵抗率(Ω・cm)			2.0×10 ⁵	2.1×10 ⁵

[0152] 実施例及び比較例で用いた化合物は、以下の通りである。

(カチオン硬化性化合物)

a-1: (3, 4, 3', 4' -ジエポキシ) ビシクロヘキシル

a-2: ビス (3, 4 -エポキシシクロヘキシルメチル) エーテル

a-3: 4, 4' -ビス [(3 -エチル -3 -オキセタニル) メチル] ビフェニル、商品名「ETERNACOLL OXBP」、宇部興産 (株) 製

a-4: エピスルフィド末端フルオレン化合物、商品名「CS-500」、大阪ガスケミカル (株) 製

a-5: オキシノルボルネンジビニルエーテル、商品名「ONB-DVE」、(株) ダイセル製

(光カチオン重合開始剤)

b-1: ボレート系スルホニウム塩、4-(4-ビフェニルチオ)フェニル-4-ビフェニル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

b-2: 特殊リン系スルホニウム塩、ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウム トリス(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート

b-3: アンチモン系スルホニウム塩、商品名「HS-1A」、サンアプロ(株)製

(硬化遅延剤)

c-1: 3, 5-ジメチルピラゾール

c-2: クラウンエーテル、商品名「18-クラウン-6」、日本曹達(株)製

c-3: ポリオキシアルキレンビスフェノールAジグリシジルエーテル、商品名「リカレジンBEO-60E」、新日本理化(株)製

(他のカチオン硬化性化合物)

d-1: ビスフェノールEジグリシジルエーテル、商品名「R1710」、プリンテック(株)製

d-2: ビスフェノールFジグリシジルエーテル、商品名「YL-983U」、三菱化学(株)製

d-3: o-フェニルフェノールグリシジルエーテル、商品名「SY-OPG」、阪本薬品工業(株)製

d-4: フェニルグリシジルエーテル、商品名「PGE」、阪本薬品工業(株)製

(硬化遅延安定剤)

e-1: 2, 2-ビス(4-アリルオキシフェニル)プロパン、商品名「BPA-AE」、小西化学工業(株)製

e-2: トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、商品名「YH-300」、

新日鉄住金化学（株）製

産業上の利用可能性

[0153] 本発明の有機ＥＬ素子封止用組成物は、塗膜にＵＶを照射しても加熱処理を施すまでは硬化の進行を抑制することができ、加熱処理を施すタイミングを調整することにより硬化の開始をコントロールすることができる。また、本発明の有機ＥＬ素子封止用組成物は、防湿性と低アウトガス性を兼ね備えた硬化物を形成することができる。

そのため、本発明の有機ＥＬ素子封止用組成物を使用すれば、有機ＥＬ素子をＵＶに直に曝すこと無く、低アウトガス性及び防湿性を有する硬化物で封止することができる。

従って、本発明の有機ＥＬ素子封止用組成物は、トップ・エミッション型有機ＥＬ素子の封止材として好適に使用することができる。

符号の説明

- [0154]
- | | |
|---|---------|
| 1 | リッド |
| 2 | ダム |
| 3 | ディスペンサー |
| 4 | 封止用組成物 |
| 5 | 基板 |
| 6 | 陰極 |
| 7 | 発光層 |
| 8 | 陽極 |

請求の範囲

- [請求項1] 下記成分（A）、成分（B）、及び成分（C）を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 成分（A）：脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有するカチオン硬化性化合物
- 成分（B）：光カチオン重合開始剤
- 成分（C）：アゾール系化合物
- [請求項2] 成分（B）100重量部に対して、成分（C）を5～25重量部含有する請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- [請求項3] さらに、下記成分（D）を含有する請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 成分（D）：グリシジルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く）
- [請求項4] さらに、下記成分（E）を含有する請求項1～3の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 成分（E）：アリルエーテル基を1分子中に1個以上有する化合物（脂環エポキシ基、オキセタン環含有基、エピスルフィド基、及びビニルエーテル基から選択される1種又は2種以上の基を1分子中に2個以上有する化合物を除く）
- [請求項5] さらに、下記導電性繊維被覆粒子を含有する請求項1～4の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。
- 導電性繊維被覆粒子：粒子状物質と、該粒子状物質を被覆する繊維状の導電性物質とを含む導電性繊維被覆粒子
- [請求項6] 導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質が導電性ナノワ

イヤである請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項7] 導電性ナノワイヤが、金属ナノワイヤ、半導体ナノワイヤ、炭素繊維、カーボンナノチューブ、及び導電性高分子ナノワイヤからなる群より選択される少なくとも一種である請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項8] 導電性ナノワイヤが銀ナノワイヤである請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項9] 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質と成分(A)の硬化物の屈折率(25℃、波長589.3nmにおける)が下記式を満たすことを特徴とする請求項5～8の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

| 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の屈折率－成分(A)の硬化物の屈折率 | ≤ 0.1

[請求項10] 導電性繊維被覆粒子を構成する繊維状の導電性物質の平均直径が1～400nmであり、平均長さが1～100μmである請求項5～9の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項11] 導電性繊維被覆粒子を構成する粒子状物質の平均粒子径が0.1～100μmである請求項5～10の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項12] トップ・エミッション型有機エレクトロルミネッセンス素子封止用である請求項1～11の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物。

[請求項13] 下記工程を経て有機エレクトロルミネッセンス素子を封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法。

工程1：請求項1～11の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用組成物からなる塗膜に、光照射を施す

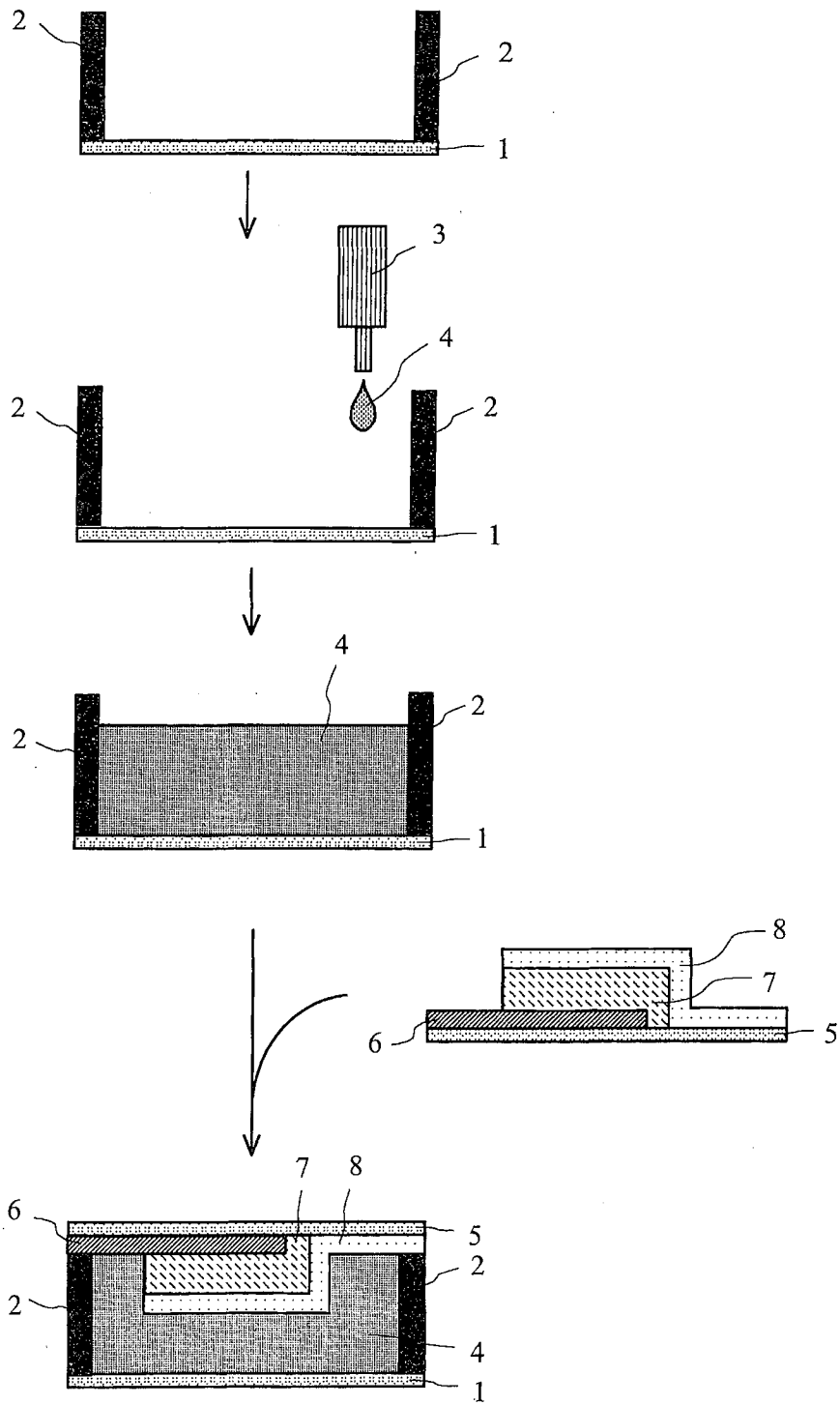
工程 2 : 素子を設置した基板の素子設置面に、光照射後の塗膜を貼り合わせて加熱処理を施す

[請求項14] 請求項 1 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンスデバイスの製造方法により得られる有機エレクトロルミネッセンスデバイス。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/051155

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/04(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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)

H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2013-157204 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 15 August 2013 (15.08.2013), paragraphs [0002], [0034], [0035], [0049], [0082] (Family: none)	1, 12 13-14 2-11
Y	JP 2012-82266 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 26 April 2012 (26.04.2012), paragraph [0070] (Family: none)	13-14
A	JP 2013-170223 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 02 September 2013 (02.09.2013), paragraph [0102], example 9 (Family: none)	1-14

☐ 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
19 March 2015 (19.03.15)

Date of mailing of the international search report
31 March 2015 (31.03.15)

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

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H05B33/04(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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. H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10

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 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	J P 2 0 1 3 - 1 5 7 2 0 4 A （積水化学工業株式会社） 2 0 1 3 . 0 8 . 1 5、段落【0 0 0 2】、【0 0 3 4】、【0 0 3 5】、【0 0 4 9】、	1、1 2
Y	【0 0 8 2】	1 3 - 1 4
A	（ファミリーなし）	2 - 1 1
Y	J P 2 0 1 2 - 8 2 2 6 6 A （三井化学株式会社） 2 0 1 2 . 0 4 . 2 6、段落【0 0 7 0】	1 3 - 1 4
	（ファミリーなし）	

☒ 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

1 9 . 0 3 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

3 1 . 0 3 . 2 0 1 5

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）

中山 佳美

2 0

3 9 1 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 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
A	J P 2013-170223 A (積水化学工業株式会社) 2013. 09.02、段落【0102】実施例9 (ファミリーなし)	1-14