

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4180450号  
(P4180450)

(45) 発行日 平成20年11月12日 (2008.11.12)

(24) 登録日 平成20年9月5日 (2008.9.5)

(51) Int.Cl.

F I

G O 2 F 1/1333 (2006.01)

G O 2 F 1/1333 5 0 0

G O 2 B 1/04 (2006.01)

G O 2 B 1/04

C O 8 L 33/04 (2006.01)

C O 8 L 33/04

C O 8 L 63/00 (2006.01)

C O 8 L 63/00

C O 8 J 5/18 (2006.01)

C O 8 J 5/18 C E Y

請求項の数 3 (全 7 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-182047 (P2003-182047)

(22) 出願日 平成15年6月26日 (2003.6.26)

(65) 公開番号 特開2005-15624 (P2005-15624A)

(43) 公開日 平成17年1月20日 (2005.1.20)

審査請求日 平成17年12月8日 (2005.12.8)

(73) 特許権者 000002141

住友ベークライト株式会社

東京都品川区東品川2丁目5番8号

(72) 発明者 坂本 真伸

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友

ベークライト株式会社内

(72) 発明者 柴原 澄夫

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友

ベークライト株式会社内

審査官 阪野 誠司

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 透明複合シート

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

透明樹脂 (a) と繊維状無機フィラー (b)、粉末状無機フィラー (c) からなる透明複合シートであって、透明樹脂 (a) の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー (b)、及び粉末状無機フィラー (c) の屈折率の差が 0.01 以下であり、繊維状無機フィラー (b) がガラス繊維布であり、透明樹脂 (a) が 2 つ以上の官能基を有する (メタ) アクリレート又は 2 つ以上の官能基を有するエポキシ樹脂であり、波長 550 nm における光線透過率が 80 % 以上である透明複合シートから構成される表示素子用基板。

【請求項 2】

前記粉末状無機フィラー (c) が球相当平均直径 0.5 μm 以下の粉末である請求項 1 記載の表示素子用基板。

【請求項 3】

30 ~ 150 の平均線膨張係数が 40 ppm 以下である請求項 1 又は 2 記載の表示素子用基板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、線膨張係数が小さく、高い剛性を有し、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガラスに代替可能な透明複合シートに関する。この透明複合組成物は、例えば、液晶表示用基板、有機 EL 表示素子基板、カラーフィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電

池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、LED封止材等に好適に用いることができる。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

一般に、液晶表示素子用基板、カラーフィルター基板、有機EL表示素子用基板、太陽電池用基板等としては、ガラス板が多く用いられている。しかし、割れ易い、曲げられない、比重が大きく軽量化に不向き等の問題から、近年、ガラス板の代わりにプラスチック素材を用いる試みが数多く行われるようになってきた。例えば、特許文献1や特許文献2には、エポキシ樹脂、酸無水物系硬化剤及び硬化触媒を含むエポキシ樹脂組成物を硬化して得られる硬化体からなる液晶表示素子用透明樹脂基板が記載されている。しかしながら、従来のガラス代替用プラスチック材料は、線膨張係数が大きいため、例えばアクティブマトリックス表示素子基板に用いるとその製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じ、適用が困難である。そこで、線膨張係数を低減するために樹脂と同等の屈折率を有する無機フィラーを樹脂と複合化することがよく行われている。

10

ガラス繊維布等と樹脂を複合した場合、線膨張係数は低減され、曲げても割れにくくなるが、基板が剛直性に欠けることがある。また、ガラス繊維の構成に応じて線膨張係数に異方性が生じることがある。これらを回避するためには複数枚の基板を積層して用いるなどする必要があった。

一方、粉末状の無機フィラーと樹脂とを複合した場合、線膨張係数の異方性は生じないものの、線膨張係数の低減が十分でない、曲げた際に割れやすいという問題があった。

20

#### 【0003】

##### 【特許文献1】

特開平6-337408号公報

##### 【特許文献2】

特開平7-120740号公報

#### 【0004】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、低線膨張係数で透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、高い剛性を有し、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等に好適に用いられる透明複合シートを提供することを目的とするものである。

30

#### 【0005】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を達成すべく鋭意検討した結果、透明樹脂(a)とガラス繊維布(b)、粉末無機フィラー(c)からなる透明複合シートが、ガラス繊維布による線膨張低減効果と、粉末無機フィラーによる剛性向上効果、線膨張係数の異方性の低減効果により、低線膨張係数で高い剛性を有し、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等に好適に用いられることを見出し、本発明に至った。

40

すなわち本発明は、

(1) 透明樹脂(a)と繊維状無機フィラー(b)、粉末状無機フィラー(c)からなる透明複合シートであって、透明樹脂(a)の硬化後の屈折率と、繊維状無機フィラー(b)、及び粉末状無機フィラー(c)の屈折率の差が0.01以下であり、繊維状無機フィラー(b)がガラス繊維布であり、透明樹脂(a)が2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレート又は2つ以上の官能基を有するエポキシ樹脂であり、波長550nmにおける光線透過率が80%以上である透明複合シートから構成される表示素子用基板、

(2) 前記粉末状無機フィラー(c)が球相当平均直径0.5μm以下の粉末である(1)の表示素子用基板、

(3) 30~150の平均線膨張係数が40ppm以下である(1)又は(2)の表示

50

素子用基板、  
である。

【 0 0 0 6 】

【 発 明 の 実 施 の 形 態 】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明中の透明樹脂（a）とは、可視光線の透過性を有する樹脂を示す。本発明の透明樹脂の透明性は、シートにした際の550nmでの光線透過率が80%以上のものが好ましく、より好ましくは85%以上、最も好ましくは90%以上である。表示素子用基板として用いる場合には、85%以上が好ましい。例としては、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂、アクリレートなどの反応性モノマーを活性エネルギー線で架橋させた樹脂などがあげられ、耐溶剤性に優れていることからアクリレートやエポキシ樹脂などの反応性モノマーを活性エネルギー線および/または熱によって架橋させた樹脂が好ましい。反応性モノマーとしては、熱や活性エネルギー線で架橋させることができるものであれば特に制限されないが、透明性や耐熱性の面から2つ以上の官能基を有する（メタ）アクリレートや2つ以上の官能基を有するエポキシ樹脂が好ましく、特に2つ以上の官能基を有する（メタ）アクリレートが好ましい。これら樹脂は、単独で用いても2種以上を併用してもよい。

【 0 0 0 7 】

本発明で用いる繊維状無機フィラー（b）としては、ガラス繊維、ガラスクロスやガラス不織布などのガラス繊維布があげられ、中でも線膨張係数の低減効果が高いことから、ガラスクロスが最も好ましい。繊維の厚みは特に限定されるものではないが、30~300μmであることが好ましい。ガラスの種類としては、Eガラス、Cガラス、Aガラス、Sガラス、Dガラス、NEガラス、Tガラスなどがあげられ、中でもアルカリ金属が少ないEガラス、Sガラス、Tガラス、NEガラスが好ましい。繊維状無機フィラー（b）の屈折率は特に制限されないが、透明複合シートが優れた透明性を示すには、透明樹脂（a）の架橋後の屈折率との差が0.01以下であることが望ましく、0.005以下がより好ましい。

繊維状無機フィラー（b）の含有量は、1~90重量%が好ましく、より好ましくは10~80重量%、さらに好ましくは30~70重量%である。繊維状無機フィラー（b）の含有量がこの範囲であれば、成形し易く、複合化による低線膨張化の効果が認められる。本発明においては、繊維状無機フィラー（b）と樹脂とが密着しているほど、本発明の複合シートの透明性が良くなるため、無機フィラー表面をシランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理することが好ましい。シランカップリング剤としては、エポキシシランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アミノシランカップリング剤及びシリコンオイル型カップリング剤等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用いてもよい。

【 0 0 0 8 】

本発明で用いる粉末状無機フィラー（c）としては、ガラス粉末、シリカ粉末、アルミナ粉末等が挙げられ、種々の屈折率を持つ品種が入手可能であることから、ガラス粉末が好ましい。粉末の形状はビーズ、フレーク、破砕状等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用いてもよい。

粉末状無機フィラー（c）の球相当直径は0.5mm以下であることが好ましく、より好ましくは0.1mm以下、さらに好ましくは0.05mm以下である。0.5mmより粒径が大きい場合表面平滑性が悪化するため好ましくない。粉末状無機フィラー（c）の含有量は10~80重量%が好ましく、より好ましくは20~80重量%、さらに好ましくは30~80重量%である。粉末状無機フィラー（c）の含有量がこの範囲であれば、シート剛性の向上、縦横の線膨張係数差の低減効果が認められる。

粉末状無機フィラー（c）の屈折率は特に制限されないが、透明複合シートが優れた透明性を示すには、透明樹脂（a）の架橋後の屈折率との差が0.01以下であることが望ましく、0.005以下がより好ましい。

粉末状無機フィラー（c）は、シートの透明性、機械的強度を向上させるためにその表面

をシランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理して用いてもよい。シランカップリング剤としては、エポキシシランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アミノシランカップリング剤及びシリコンオイル型カップリング剤等が挙げられ、これらを単独で用いても数種複合して用いてもよい。

#### 【0009】

本発明の複合透明シートを、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材等として用いる場合は、波長550nmの光線透過率が80%以上であることが好ましく、さらに好ましくは、85%以上である。波長550nmの光線透過率が80%以下の場合は、光を利用する効率が低下するので、光効率が重要な用途には好ましくない。

10

#### 【0010】

本発明の透明複合シートを、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材等として用いる場合は、30~150の平均線膨張係数が40ppm以下であることが好ましく、より好ましくは30ppm以下、最も好ましくは20ppm以下である。例えば、この複合体組成物をアクティブマトリックス表示素子基板に用いた場合、この上限値を越えると、その製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じる恐れがある。

本発明の透明複合シートは、平滑性を向上させるために両面に樹脂のコート層を設けても良い。コートする樹脂としては、優れた透明性、耐熱性、耐薬品性を有していることが好ましく、具体的には多官能アクリレートやエポキシ樹脂などをあげることができる。コートする樹脂の厚みとしては、0.1~50μmが好ましく、0.5~30μmがより好ましい。

20

本発明の透明複合シートは、必要に応じて水蒸気や酸素に対するガスバリア層や透明電極層を設けても良い。

また、本発明の透明複合シート中には、必要に応じて、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、少量の酸化防止剤、紫外線吸収剤、染料、他の無機フィラー等の充填剤等を含んでも良い。

#### 【0011】

30

#### 【実施例】

以下、本発明の内容を実施例により詳細に説明するが、本発明は、その要旨を越えない限り以下の例に限定されるものではない。

#### （実施例1）

脂環式エポキシ樹脂（ダイセル化学工業製EHPE3150）80重量部、ビスフェノールS型エポキシ樹脂（大日本インキ化学工業製エピクロンEXA1514）20重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸（新日本理化製リカシッドMH-700）75重量部、テトラフェニルホスホニウムブロマイド（北興化学工業製TPP-PB）0.5重量部、屈折率1.50で球相当平均直径10μmの破碎ガラス粉末90重量部、1,3ジオキソラン60重量部を混合してワニスとした。これを、厚さ80μmで屈折率1.503のNEガラス系ガラスクロス（日東紡績製NEA2319E）を焼きだしして有機物を除去した後、グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（エポキシシラン）で処理したものに含浸し、125℃で5分間乾燥した後、離型処理したガラス板に挟み込み、真空プレス機を用いて30kg/cm<sup>2</sup>の圧力でプレスしながら200℃で2時間加熱して硬化させ、厚さ0.1mmの透明複合シートを得た。

40

#### 【0012】

#### （実施例2）

トリグリシジルイソシアヌレート（日産化学工業製TEPIC）100重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸（新日本理化製リカシッドMH-700）147重量部、テトラフェニルホスホニウムブロマイド（北興化学工業製TPP-PB）2重量部を110℃

50

熔融混合した樹脂に、屈折率 1.50 で球相当平均直径 10  $\mu\text{m}$  の破砕ガラス粉末 124 重量部を加え混合した。これを、実施例 1 記載のガラスクロスに含浸し、脱泡した後離型処理したガラス板に挟み込み、オープン中で 100  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 120  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 150  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 175  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間加熱し、厚さ 0.1 mm の透明複合シートを得た。

【0013】

(比較例 1)

トリグリシジルイソシアヌレート (日産化学工業製 TEPI C) 100 重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸 (新日本理化製 リカシッド MH-700) 147 重量部、テトラフェニルホスホニウムブロマイド (北興化学工業製 TPP-PB) 2 重量部を 110 で熔融混合した樹脂を、実施例 1 記載のガラスクロスに含浸した後離型処理したガラス板に挟み込み、真空プレス機を用いて 30 kg/cm<sup>2</sup> の圧力でプレスしながら 200 で 2 時間加熱して硬化させ、厚さ 0.1 mm の透明複合シートを得た。

【0014】

(比較例 2)

トリグリシジルイソシアヌレート (日産化学工業製 TEPI C) 100 重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸 (新日本理化製 リカシッド MH-700) 147 重量部、テトラフェニルホスホニウムブロマイド (北興化学工業製 TPP-PB) 2 重量部を 110 で熔融混合した樹脂に、屈折率 1.50 で球相当平均直径 10  $\mu\text{m}$  の破砕ガラス粉末 90 重量部を加え混合し、離型処理したガラス板に挟み込んで、オープン中で 100  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 120  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 150  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間 + 175  $^{\circ}\text{C}$  \* 2 時間加熱して、0.1 mm の透明シートを得た。

【0015】

以上のようにして作製した透明複合シートについて、下記に示す方法により、各種特性を評価した。

a) 光線透過率

分光光度計 U3200 (日立製作所製) で 550 nm の光線透過率を測定した。

b) 平均線膨張係数

セイコー電子 (株) 製 TMA/SS120C 型熱応力歪測定装置を用いて、窒素雰囲気下、1 分間に 5  $^{\circ}\text{C}$  の割合で温度を 30 から 400  $^{\circ}\text{C}$  まで上昇させて 20 分間保持し、30 ~ 150  $^{\circ}\text{C}$  の時の値を測定して求めた。荷重を 5 g にし、引張モードで測定を行った。測定は、独自に設計した石英引張チャック (材質: 石英, 線膨張係数 0.5 ppm) を用いた。一般に使われているインコネル製のチャックは、それ自体の線膨張が高いことやサンプルの支持形態に不具合があり、100  $\mu\text{m}$  を超える厚いシートに適用すると線膨張係数が圧縮モードで測定した結果よりも大きくなったり、測定ばらつきが大きくなる問題があった。したがって、石英引張チャックを独自に設計し、それを用いて線膨張係数を測定することにした。この引張チャックを用いることにより、圧縮モードで測定した場合とほぼ同様の値で測定できることを確認している。

また、実施例 1、2、比較例 1 については、ガラスクロスの幅方向を X、巻取り方向を Y と定義し、比較例 2 については任意の直行する 2 方向をそれぞれ X、Y と定義し、それぞれの方向に引張を加えた測定を行い、X 方向と Y 方向の線膨張係数の差を評価した。

c) 剛性

シートに曲げを加え、剛直性、割れやすさを外観、触感により評価した。

【0016】

実施例 1 は、光線透過率が 80 %、平均線膨張係数が 18 ppm で、X-Y 方向の線膨張係数差が無く、剛直性に優れ、表示素子用基板として使用できるものであった。

実施例 2 は、光線透過率が 83 %、平均線膨張係数が 19 ppm で、X-Y 方向の線膨張係数差が 1 ppm と小さく、剛直性に優れ、表示素子用基板として使用できるものであった。

比較例 1 は、光線透過率が 86 %、平均線膨張係数が 17 ppm であったが、X-Y 方向の線膨張係数差が 4 ppm と大きく、剛直性に欠け、表示素子用基板として使用するには

10

20

30

40

50

不十分であった。

比較例 2 は、光線透過率が 8 4 %、平均線膨張係数が 3 2 p p m で、X - Y 方向の線膨張係数差は無かったが、基板が剛性に欠け、曲げた際に割れやすく、表示素子用基板として使用するには不十分であった。

【 0 0 1 7 】

【発明の効果】

本発明により得られる複合複合シートは、光学シート、表示素子用プラスチック基板又はアクティブマトリックス表示素子用基板として好適に用いることができる。

---

 フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
<b>C 0 8 K</b>	<b>3/00</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>C 0 8 J</b>	<b>5/18</b>	<b>C F C</b>
<b>C 0 8 K</b>	<b>7/04</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>C 0 8 K</b>	<b>3/00</b>	
			<b>C 0 8 K</b>	<b>7/04</b>	

(56)参考文献 特開昭 6 0 - 2 4 8 7 7 1 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 1 - 3 2 9 0 8 0 ( J P , A )  
 特開平 0 7 - 2 5 8 4 3 9 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 2 - 2 2 0 4 3 5 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 2 - 0 1 2 7 4 3 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 4 - 0 5 1 9 6 0 ( J P , A )  
 特開平 0 5 - 2 2 2 1 6 5 ( J P , A )  
 特開昭 4 9 - 0 2 3 8 4 7 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 2 - 1 8 8 0 1 4 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)  
 IPC C08K 3/00-13/08  
 C08L 1/00-101/14