(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 10 月 6 日(06.10.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/158770 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 23/08 (2006.01) *C09K 3/10* (2006.01)
C08L 23/26 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01) *H05B 33/04* (2006.01)
C08L 101/12 (2006.01) *H05B 33/10* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/059664

(22) 国際出願日: 2016 年 3 月 25 日(25.03.2016)

(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 2015-066859 2015 年 3 月 27 日(27.03.2015) 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１５番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 高瀬 舞(TAKASE, Mai); 〒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). 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). 本間 達也(HOMMA, Tatsuya); 〒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). 中嶋 聡(NAKAJIMA, Satoshi); 〒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). 馬場 英治(BABA, Eiji); 〒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

(54) 発明の名称 : 封止用樹脂組成物

(57) **Abstract**: To provide: a resin composition for sealing, which has excellent adhesiveness, wet heat resistance of adhesion and workability; and a resin composition sheet for sealing, which is obtained from this resin composition for sealing. A resin composition for sealing, which is characterized by containing (A) a polyolefin resin which is modified by an alkyl (meth)acrylate ester and an acid anhydride, (B) an epoxy resin and (C) a tackifying resin.

(57) 要約: 接着性、接着湿熱耐性および加工性に優れた封止用樹脂組成物およびそれから得られる封止用樹脂組成物シートを提供すること。 （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂、（Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（Ｃ）粘着付与樹脂を含有することを特徴とする封止用樹脂組成物。

WO 2016/158770 A1

明　細　書

発明の名称 ： 封止用樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、封止用樹脂組成物及び封止用シート等に関し、特に有機ＥＬ素子の封止等に好適に使用できる、封止用樹脂組成物及び封止用シート等に関する。

背景技術

[0002] 有機ＥＬ（Electroluminescence）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近年脚光を浴びている素材である。しかしながら、有機ＥＬ素子は水分に極めて弱く、有機材料自体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、電極と有機ＥＬ層との界面が水分の影響で剥離したり、電極の金属が酸化して高抵抗化してしまう問題があることから、有機ＥＬ素子を封止することが行われている。

[0003] 熱硬化樹脂組成物を、有機ＥＬ素子を有する基板の全面封止材料として使用する場合、硬化前の材料粘度が低いことから積層作業が容易であることや、熱硬化後の硬化物の耐透湿性が高いことが利点として挙げられる。しかし、その一方で、熱硬化時の加熱温度によって有機ＥＬ素子が劣化するという問題がある。

[0004] 有機ＥＬ素子の熱劣化を回避する方法としては感圧接着剤を封止材料として用いる方法が挙げられる。例えば、特許文献１には、ポリイソブチレン樹脂、エポキシ基と反応し得る官能基を持つポリイソプレン樹脂および／またはポリイソブチレン樹脂、粘着付与樹脂、並びにエポキシ樹脂を含有する樹脂組成物にて封止する技術が開示されている。また、特許文献２には、スチレン－イソブチレン変性樹脂および粘着付与樹脂を含有する樹脂組成物にて封止する技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開2011/062167号パンフレット

特許文献2：国際公開2013/108731号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 支持体上に感圧接着剤層を形成して封止用シートとする場合、熱硬化樹脂組成物を使用する場合と比較し、耐透湿性がより重要な課題となる。特に有機ＥＬ素子等の封止用途にはより高度な耐透湿性が要求される。また封止後の吸湿による感圧接着剤の基板との接着強度低下も課題となり、接着湿熱耐性の改善も望まれていた。よって本発明が解決しようとする課題は、接着湿熱耐性および耐透湿性に優れた封止用樹脂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

[0007] 本発明者は上記課題の解決のために鋭意検討した結果、（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂、（Ｂ）エポキシ樹脂および（Ｃ）粘着付与樹脂を含有することを特徴とする封止用樹脂組成物が、封止前の加熱により良好な架橋構造が形成され、接着湿熱耐性、耐透湿性に優れる感圧接着性の組成物となることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0008] すなわち本発明は以下の態様を含む。

［１］ （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂、（Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（Ｃ）粘着付与樹脂を含有することを特徴とする封止用樹脂組成物。

［２］ （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂が、ポリオレフィン系樹脂の主鎖に（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位及び酸無水物単位を含むグラフトポリマーが結合したグラフト変性体であり、該グラフトポリマーの数平均分子量が１００以上である、上記［１］に記載の封止用樹脂組成物。

［３］　（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂における、（メタ）アクリル酸アルキルエステルのアルキル基の炭素原子数が１～１８である、上記［１］または［２］に記載の封止用樹脂組成物。

［４］　（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂における酸無水物基の濃度が０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇである、上記［１］～［３］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［５］　（Ｂ）エポキシ樹脂が、エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂である、上記［１］～［４］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［６］　エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂におけるエポキシ基濃度が０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇである、上記［５］に記載の封止用樹脂組成物。

［７］　（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂および（Ｂ）エポキシ樹脂の合計の含有量が、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５～８０質量％である、上記［１］～［６］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［８］　（Ｃ）粘着付与樹脂の含有量が、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５～８０質量％である、上記［１］～［７］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［９］　（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂の酸無水物基と（Ｂ）エポキシ樹脂のエポキシ基が反応して生じるエステル結合が形成されている、上記［１］～［８］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［１０］　有機ＥＬ素子の封止用である、上記［１］～［９］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物。

［１１］　支持体上に接着層が形成された封止用シートであって、該接着層が、上記［１］～［９］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物により形成されている、封止用シート。

［１２］　有機ＥＬ素子の封止用である上記［１１］記載の封止用シート。

［１３］　有機ＥＬ素子が封止層により封止されている有機ＥＬデバイスであって、該封止層が、上記［１］～［１０］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物により形成されている、有機ＥＬデバイス。

［１４］　有機ＥＬ素子が封止層により封止されている有機ＥＬデバイスであって、該封止層が、上記［１１］または［１２］に記載の封止用シートの接着層により形成されている、有機ＥＬデバイス。

［１５］　上記［１］～［９］のいずれか１つに記載の封止用樹脂組成物を含む樹脂ワニスを、支持体上に塗布および加熱乾燥し、（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂の酸無水物基と（Ｂ）エポキシ樹脂のエポキシ基とが反応によりエステル結合した接着層を形成することを特徴とする、封止用シートの製造方法。

発明の効果

[0009]　本発明によれば、接着湿熱耐性および耐透湿性に優れた封止用樹脂組成物およびそれから得られる封止用シート、並びに、該封止用樹脂組成物で封止された有機ＥＬデバイスが提供される。

発明を実施するための形態

[0010]　以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の封止用樹脂組成物（以下、単に「樹脂組成物」とも略称する）は、（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂、（Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（Ｃ）粘着付与樹脂を含有することが主たる特徴である。

[0011]＜（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂＞

本発明の樹脂組成物には、（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂（以下、「変性ポリオレフィン系樹脂」または「（Ａ）成分」と称することがある。）が使用される。

[0012]（ポリオレフィン系樹脂）

本発明で使用する変性ポリオレフィン系樹脂の主骨格（変性成分を除いた骨格）のポリオレフィン系樹脂としては、オレフィンモノマー由来の骨格を有するものであれば特に限定されない。例えば、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂、ポリブテン系樹脂、ポリイソブチレン系樹脂等が挙げられる。なかでも、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂、ポリブテン系樹脂が好ましく、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂が特に好ましい。なお、ここでいう、ポリエチレン系樹脂とは、エチレンのホモポリマーか、或いは、主たる単量体単位（５０質量%超の単量体単位）がエチレンからなる、少なくとも、エチレンと、エチレン以外の単量体単位（例えば、エチレンを除くオレフィン、非共役ジエン、（メタ）アクリル酸アルキルエステル等の単量体単位）を含む共重合体を意味し、ポリプロピレン系樹脂とは、プロピレンのホモポリマーか、或いは、主たる単量体単位（５０質量%超の単量体単位）がプロピレンからなる、少なくとも、プロピレンと、プロピレン以外の単量体単位（例えば、プロピレンを除くオレフィン、非共役ジエン、（メタ）アクリル酸アルキルエステル等の単量体単位）を含む共重合体を意味し、ポリブテン系樹脂とは、ブテンのホモポリマーか、或いは、主たる単量体単位（５０質量%超の単量体単位）がブテンからなる、少なくとも、ブテンと、ブテン以外の単量体単位（例えば、ブテンを除くオレフィン、非共役ジエン、（メタ）アクリル酸アルキルエステル等の単量体単位）を含む共重合体を意味し、ポリイソブチレン系樹脂とは、イソブチレンのホモポリマーか、或いは、主たる単量体単位（５０質量%超の単量体単位）がイソブチレンからなる、少なくとも、イソブチレンと、イソブチレン以外の単量体単位（例えば、イソブチレンを除くオレフィン、非共役ジエン、（メタ）アクリル酸アルキルエステル等の単量体単位）を含む共重合体を意味する。

例えば、加工性の観点、樹脂組成物を封止シートの接着層としたときの接着層の埋め込み性の観点からは、ポリエチレン系樹脂がポリプロピレン系樹脂より優れている。ここで「加工性」とは、特に変性ポリオレフィン系樹脂

をフィルム（層）に形成する際の加工性であり、フィルム（層）形成を可能にするための樹脂ワニスの流動性の持続性（経時安定性）等を含む。一方、耐熱性の観点からは、ポリプロピレン系樹脂がポリエチレン系樹脂より優れている。

[0013] ポリオレフィン系樹脂をより好ましい特性にする等の理由から、ポリオレフィン系樹脂には、ランダム共重合体、ブロック共重合体等の共重合体を使用することが好ましい。共重合体としては、（ｉ）２種以上のオレフィンの共重合体、（ｉｉ）オレフィンと非共役ジエンの共重合体、または（ｉｉｉ）オレフィンとスチレン等のオレフィン以外のモノマー（非共役ジエンを除く）との共重合体が挙げられる。ここで、（ｉｉ）の共重合体及び（ｉｉｉ）の共重合体において、オレフィンは１種または２種以上を使用できる。

[0014] ポリオレフィン系樹脂における共重合体の具体例としては、例えば、エチレン－非共役ジエン共重合体、エチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン－ブテン共重合体、エチレン－ブテン－非共役ジエン共重合体、エチレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン－プロピレン共重合体、エチレン－プロピレン－非共役ジエン共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン共重合体、エチレン－プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、プロピレン－非共役ジエン共重合体、プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン－非共役ジエン共重合体、プロピレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、イソブチレン－非共役ジエン共重合体、イソブチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、イソブチレン－ブテン共重合体、イソブチレン－ブテン－非共役ジエン共重合体、イソブチレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、スチレン－イソブチレン共重合体、スチレン－イソブチレン－スチレン共重合体等が挙げられる。

なかでも、エチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン－ブテン共重合体、エチレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエ

ステル共重合体、エチレン－プロピレン共重合体、エチレン－プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、イソブチレン－ブテン共重合体、イソブチレン－ブテン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体等が好ましい。

[0015] なお、上記の例示の共重合体は、単量体成分を並記する形式で記載しており、共重合体の形態は特定していない。即ち、いずれの共重合体も、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。また、二元共重合体のブロック共重合体の場合、ブロック共重合体は、ジブロック共重合体であっても、トリブロック共重合体であってもよい。即ち、例えば、エチレン－ブテン共重合体のブロック共重合体は、ポリエチレンブロック（ポリエチレン骨格）－ポリブテンブロック（ポリブテン骨格）からなるジブロック共重合体（ポリエチレンブロックとポリブテンブロックの交互の繰り返しからなるマルチブロック共重合体を含む）、ポリエチレンブロック（ポリエチレン骨格）－ポリブテンブロック（ポリブテン骨格）－ポリエチレンブロック（ポリエチレン骨格）からなるトリブロック共重合体、ポリブテンブロック（ポリブテン骨格）－ポリエチレンブロック（ポリエチレン骨格）－ポリブテンブロック（ポリブテン骨格）からなるトリブロック共重合体を含む。エチレン－ブテン共重合体以外の二元共重合体においても同様である。

[0016] ポリエチレン系樹脂は、例えば、耐熱性等を向上させる観点から、エチレン－プロピレン共重合体、エチレン－ブテン共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン共重合体等を使用することができる。また、プロピレン系樹脂は、例えば、加工性、埋め込み性等を向上させる観点から、プロピレン－エチレン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン共重合体を使用することができ、さらに耐熱性を向上させる観点からはプロピレン－ブテン共重合体を使用することができる。

[0017] 本発明で使用するブテンとしては特に限定はなく、１－ブテン、ｃｉｓ－

２－ブテン、ｔｒａｎｓ－２－ブテン、イソブテン（別称：２－メチルプロペン）等を挙げることができ、これらは１種または２種以上を組合せて用いることができるが、好ましくは、１－ブテンである。なお、２種以上のブテンが使用される場合、例えば、エチレン－ブテン共重合体においては、エチレンと２種以上のブテンが共重合した共重合体であってもよいし、ブテン単位が互いに異なるブテンからなる２種以上のエチレン－ブテン共重合体の混合物であってもよい。また、エチレン－ブテン共重合体の形態は、特に限定されず、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよいが、なかでも、加工性を向上させる観点から、ランダム共重合体が好ましい。

[0018] ポリオレフィン系樹脂の単量体単位として含まれていてもよい他のオレフィン（すなわち、エチレン、プロピレン、ブテンおよびイソブチレン以外のオレフィン）としては、１－ペンテン、３－メチル－１－ヘキセン、３－メチル－１－ペンテン、４－メチル－１－ペンテン、３－エチル－１－ペンテン、１－セプテン、１－オクテン、1－ノネン、１－デセン、１－ウンデセン等の炭素数が２～１１のα－オレフィン（プロピレンおよび１－ブテンを除く）を挙げることができる。なかでも、１－ヘキセンが好ましい。かかるα－オレフィンは１種または２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0019] また、他のオレフィンとして、メチルヘキサジエン（２－メチル－１，５－ヘキサジエン、３－メチル－２，４－ヘキサジエン等）、１，９－デカジエン、１，１３－テトラデカジエン等の炭素数が１０～１４の非共役ジオレフィン化合物を挙げることができる。なかでも、メチルヘキサジエンが好ましく、２－メチル－１，５－ヘキサジエンが特に好ましい。かかる非共役ジオレフィン化合物は１種または２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0020] 本発明の変性ポリオレフィン系樹脂における主骨格のポリオレフィン系樹脂としては、オレフィンと（メタ）アクリル酸アルキルエステルの共重合体を使用することができる。ここでいう、「（メタ）アクリル酸アルキルエステル」は、アクリル酸アルキルエステル及びメタクリル酸アルキルエステル

を意味する。アクリル酸アルキルエステル及びメタクリル酸アルキルエステルはいずれか一方を使用しても、両方を使用してもよい。また、（メタ）アクリル酸アルキルエステルにおけるアルキル基は、非置換アルキル基であっても、置換アルキル基（例えば、アラルキル基）であってもよいが、非置換アルキル基が好ましく、また、該アルキル基は炭素原子数が１～２０が好ましく、より好ましくは１～１０である。（メタ）アクリル酸アルキルエステルの具体例としては、例えば、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸エチルヘキシル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸ベンジル、アクリル酸フェノキシエチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル、メタクリル酸エチルヘキシル、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸ベンジル、メタクリル酸フェノキシエチル等が挙げられる。なかでも、メタクリル酸メチルが好ましい。（メタ）アクリル酸アルキルエステルは１種または２種以上を使用することができる。

[0021] 例えば、本発明の変性ポリオレフィン系樹脂において、エチレン－ブテン共重合体、イソブチレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体等の少なくともブテンを単量体単位として含む共重合体は、樹脂組成物の接着性、耐透湿性等の性能のバランスの観点から、例えば、エチレン－ブテン共重合体であれば、エチレン単位の含有量は共重合体全体当たり、２０質量％以上であるのが好ましく、３０質量％以上がより好ましく、４０質量％以上がさらに一層好ましく、５０質量％以上が最も好ましい。また、同理由により、９５質量％以下が好ましく、９０質量％以下がより好ましい。なお、イソブチレン－ブテン共重合体におけるイソブチレン単位の含有量、プロピレン－ブテン共重合体におけるプロピレン単位の含有量等も同様である。

[0022] また、本発明の変性ポリオレフィン系樹脂において、エチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、イソブチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体等の、少なくとも（メタ）アクリル酸アルキルエステルを単量体単位として含む、オレフィンと（メタ）アクリル酸アルキルエステルとの

共重合体は、樹脂組成物の接着性、耐透湿性等の性能のバランスの観点から、例えば、エチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体であれば、エチレン単位の含有量は、共重合体全体当たり、３０質量％以上が好ましく、４０質量％以上がより好ましく、５０質量％以上がさらに一層好ましい。また、同理由により、９５質量％以下が好ましく、９０質量％以下がより好ましい。なお、イソブチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体におけるイソブチレン単位の含有量、プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体におけるプロピレンの含有量等も同様である

[0023] また、本発明の変性ポリオレフィン系樹脂において、エチレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、イソブチレン－ブテン共重合体等に、エチレン、プロピレン、イソブチレン及びブテンを除く他のオレフィンがさらに共重合した共重合体が使用される場合、該共重合体中のエチレン単位、プロピレン単位、イソブチレン単位、ブテン単位等の特徴を生かす上では、他のオレフィン単位の割合は、エチレン単位とブテン単位と他のオレフィン単位の総量、プロピレン単位とブテン単位と他のオレフィン単位の総量、或いは、イソブチレン単位とブテン単位と他のオレフィン単位の総量に対して、２０質量％以下が好ましく、１０質量％以下がより好ましく、５質量％以下がとりわけ好ましく、３質量％以下が最も好ましい。

[0024] また、本発明の変性ポリオレフィン系樹脂において、エチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、イソブチレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、プロピレン－（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体等に、エチレン、プロピレン及びイソブチレンを除く他のオレフィンがさらに共重合した共重合体が使用される場合、該共重合体中のエチレン単位、プロピレン単位、イソブチレン単位等の特徴を生かす上では、他のオレフィン単位の割合は、エチレン単位と（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位と他のオレフィン単位の総量、プロピレン単位と（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位と他のオレフィン単位の総量、或いは、イソブチレン単位と（メタ）アクリル酸アルキルエステルブテン単位と他のオレフィ

ン単位の総量に対して、２０質量％以下が好ましく、１０質量％以下がより好ましく、５質量％以下がとりわけ好ましく、３質量％以下が最も好ましい。

[0025] （変性ポリオレフィン系樹脂）

本発明における変性ポリオレフィン系樹脂は、接着湿熱耐性、耐湿性等の優れた物性を付与する観点から、ポリオレフィン系樹脂が（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたものである。すなわち、本発明における変性ポリオレフィン系樹脂は、ポリオレフィン系樹脂の主鎖に（メタ）アクリル酸アルキルエステル由来の単位及び酸無水物由来の単位を含むグラフト鎖が結合したグラフト変性体である。ここでいう、（メタ）アクリル酸アルキルエステルは、アクリル酸アルキルエステル又はメタクリル酸アルキルエステルを意味し、各々単独で使用してもよく、アクリル酸アルキルエステルおよびメタクリル酸アルキルエステルを混合して用いてもよい。

[0026] （メタ）アクリル酸アルキルエステルにおけるアルキル基の炭素原子数は好ましくは１～１８、より好ましくは１～１４、さらに好ましくは１～１２、特に好ましくは１～１０、最も好ましくは１～８である。（メタ）アクリル酸アルキルエステルの具体例としては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ｎ－プロピル、アクリル酸ｉ－プロピル、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸ｉ－ブチル、アクリル酸２－ブチル、アクリル酸ｔ－ブチル、アクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸２－エチルヘキシル、アクリル酸ｎ－オクチル、アクリル酸ｎ－ドデシル、アクリル酸ｎ－オクタデシル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ｎ－プロピル、メタクリル酸ｉ－プロピル、メタクリル酸ｎ－ブチル、メタクリル酸ｉ－ブチル、メタクリル酸２－ブチル、メタクリル酸ｔ－ブチル、メタクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸２－エチルヘキシル、メタクリル酸ｎ－オクチル、メタクリル酸ｎ－ドデシル、メタクリル酸ｎ－オクタデシル、アクリル酸ベンジル、アクリル酸フェノキシエチル等が挙げられる。なかでも、アク

リル酸２－エチルヘキシル、メタクリル酸ｎ－ブチル等が好ましく、より好ましくはアクリル酸２－エチルヘキシルである。（メタ）アクリル酸アルキルエステルは１種または２種以上を使用することができる。

[0027] 酸無水物としては、例えば、無水コハク酸、無水マレイン酸、無水グルタル酸等が挙げられる。特に無水コハク酸が好ましい。酸無水物は１種または２種以上を使用することができる。

[0028] （メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂は、例えば、ポリオレフィン系樹脂を、ラジカル反応条件下にて、酸無水物基を有する不飽和化合物および（メタ）アクリル酸アルキルエステルでグラフト変性することによって得られる（例えば、特開２００２－１７３５１４号公報、特開２００６－２１９６２７号公報等参照）。

[0029] （メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物により形成されるグラフト鎖（グラフトポリマー）の数平均分子量は１００以上が好ましく、より好ましくは２００以上、さらに好ましくは３００以上である。（メタ）アクリル酸アルキルエステルによる変性がない場合（すなわち、グラフト鎖に（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位が含まれない場合）、適切な長さのグラフト鎖が形成されにくい傾向となる。グラフト鎖（グラフトポリマー）の数平均分子量の平均値が小さすぎる場合、エポキシ樹脂、特にエポキシ変性ポリオレフィン樹脂との架橋構造が形成されにくい傾向となる。グラフト鎖（グラフトポリマー）の数平均分子量の平均値の上限は、本発明の樹脂組成物の封止性能、接着耐湿熱性、耐透湿性等の機能が発揮される限り、特に限定されないが、一般には５０００以下であり、好ましくは３０００以下である。また、グラフト鎖（グラフトポリマー）は（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位を２０重量％以上８０重量％以下含有することが好ましく、３０重量％以上７０重量％以下含有することがより好ましく、４０重量％以上６０重量％以下含有することが一層好ましい。

[0030] グラフト鎖（グラフトポリマー）の数平均分子量は、グラフト変性体の粘度、グラフト変性体の化学構造解析、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）などによる分子量測定によって求めることが出来る。ポリオレフィン系樹脂の存在下、（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物をラジカル重合して、グラフト変性体が製造される場合、グラフト鎖長は、ポリオレフィン樹脂へのグラフトに寄与していないフリーポリマーの鎖長と同じとみなして、ポリオレフィン系樹脂の主鎖に結合していない、添加した（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物のみで形成されるポリマー成分の分子量をＧＰＣ法などで測定することで簡便に求めることができる。ＧＰＣ法による数平均分子量は、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、移動相としてトルエン等を用いて、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。

[0031] （Ａ）成分は１種を使用しても、２種以上を混合して使用してもよい。すなわち、主骨格のポリオレフィン系樹脂および／またはグラフトポリマーが互いに相違する２種以上のグラフト変性体を混合して使用することができる。

[0032] （Ａ）成分が２種以上のグラフト変性体の混合物の場合、以下に記載の（Ａ）成分の酸無水物基の濃度および数平均分子量は、２種以上のグラフト変性体の混合物全体における値であり、また、前記グラフト鎖（グラフトポリマー）の数平均分子量も混合物が有する総グラフトポリマーの数平均分子量である。

[0033] （Ａ）成分における、酸無水物基の濃度は、０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇが好ましく、０．１～５ｍｍｏｌ／ｇがより好ましい。酸無水物基の濃度はＪＩＳ Ｋ ２５０１の記載に従い、樹脂１ｇ中に存在する酸を中和するのに必要な水酸化カリウムのｍｇ数として定義される酸価の値より得られる。

[0034] （Ａ）成分の数平均分子量は特に限定はされないが、樹脂組成物のワニスの良好な塗工性と樹脂組成物における他の成分との良好な相溶性をもたらすという観点から、５００００以下が好ましく、３００００以下がより好

ましく、１５００００以下が更に好ましい。一方、樹脂組成物のワニスの塗工時のハジキを防止し、形成される樹脂組成物層の耐透湿性を発現させ、機械強度を向上させるという観点から、１００００以上が好ましく、３００００以上がより好ましく、５００００以上が更に好ましい。なお、本発明における数平均分子量は、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法による数平均分子量は、具体的には、測定装置として社島津製作所製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、移動相としてトルエン等を用いて、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。

[0035] （Ａ）成分は、加工性を良好なものとする観点から、結晶性が低いものが好ましく、特に非結晶性であることが好ましい。ここで、非結晶性とは、当該（Ａ）成分が明確な融点を有しないことを意味し、例えば、当該（Ａ）成分の融点をＤＳＣ（示差走査熱量測定）で測定した場合に明確なピークが観察されないことである。

[0036] 本発明の樹脂組成物中の（Ａ）成分の含有量は特に制限はないが、樹脂組成物のワニスの良好な塗工性と相溶性をもたらし、形成される樹脂組成物層において良好な湿熱耐性と取り扱い性（タック抑制）を確保できるという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、４５質量％以下が好ましく、４０質量％以下がより好ましく、３５質量％以下が更に好ましい。一方、耐透湿性を向上させ、透明性も向上させるという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５質量％以上が好ましく、１０質量％以上がより好ましく、１５質量％以上が更に好ましい。

[0037] ＜（Ｂ）エポキシ樹脂＞

本発明の樹脂組成物は、エポキシ樹脂（以下、「（Ｂ）成分」とも略称する）を含有する。エポキシ樹脂は（Ａ）成分が有する酸無水物基との反応により架橋構造を形成する。エポキシ樹脂としては、特に限定されるものではなく、平均して１分子当り２個以上のエポキシ基を有するものであればよい

。例えば、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－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、ポリアルキレングリコール骨格含有エポキシ樹脂、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。上記エポキシ樹脂の中では、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、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、芳香族グリシジルアミン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン構造を有するエポキシ樹脂、ポリプロピレングリコール骨格含有エポキシ樹脂等が好ましく、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ポリプロピレングリコール骨格含有エポキシ樹脂が特に好ましい。

[0038] 上記エポキシ樹脂の市販品としては、三菱化学社製「８２８ＥＬ」（液状ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂）、ＤＩＣ社製「ＨＰ４０３２」、「ＨＰ４０３２Ｄ］（いずれもナフタレン型２官能エポキシ樹脂）、ＤＩＣ社製「ＨＰ４７００」（ナフタレン型４官能エポキシ樹脂）、ＤＩＣ社製「ＨＰ７２００シリーズ」（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂）、東都化成社製「ＥＳＮ－４７５Ｖ」、「ＥＳＮ－１８５Ｖ」（いずれもナフトール型エポキシ樹脂）、ダイセル化学工業社製「ＰＢ－３６００」（ブタジエン構造を有するエポキシ樹脂）、日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、「ＮＣ３０００

Ｌ」、「ＮＣ３１００」、「ＮＣ３０００」、「ＮＣ３０００ＦＨ－７５Ｍ」（いずれもビフェニル型エポキシ樹脂）、三菱化学社製「ＹＸ４０００」（ビフェニル型エポキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン社製「ＹＸ８８００」（アントラセン骨格含有型エポキシ樹脂）、ＤＩＣ社製「ＥＰＩＣＬＯＮ ＥＸＡ４８５０－１０００」（ポリプロピレングリコール骨格含有エポキシ樹脂）、などが挙げられる。

[0039] 上記エポキシ樹脂は、液状であっても、固体状であってもよく、液状物と固体状物の両方を用いてもよい。ここで、「液状」および「固体状」とは、室温（２５℃）でのエポキシ樹脂の状態である。また、（Ｂ）成分は、エポキシ当量が１００～１５００ｇ／ｅｑの範囲が好ましく、１５０～１０００ｇ／ｅｑの範囲がより好ましく、２００～８００ｇ／ｅｑの範囲が更に好ましい。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/eq）であり、ＪＩＳ Ｋ ７２３６に規定された方法に従って測定される。

[0040] かかる（Ｂ）成分のエポキシ樹脂としては、特にエポキシ変性ポリオレフィン系樹脂、すなわち、エポキシ基を有するポリオレフィン樹脂が好ましい。エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂としては、例えば、ポリオレフィン系樹脂の主鎖にエポキシ基含有不飽和化合物の単位を含むグラフトポリマーが結合したグラフト変性体が挙げられる。該グラフト変性体は、ポリオレフィン系樹脂を、ラジカル反応条件下で、エポキシ基含有不飽和化合物でグラフト変性することで得られる。エポキシ基含有不飽和化合物としては、グリシジル（メタ）アクリレート、β－メチルグリシジル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチルアクリレートグリシジルエーテル、２－ヒドロキシエチルアクリレートグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル等が挙げられる。好ましくは、グリシジルメタクリレートである。これらは１種または２種以上を使用することができる。また、グラフト変性体におけるポリオレフィン系樹脂の具体例としては、（Ａ）成分におけるポリオレフィン系樹脂の具体例として例示したものと同じものが挙げられる。

[0041] また、エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂としては、上記のエポキシ基含有不飽和化合物から選ばれる１種または２種以上と、１種または２種以上のオレフィンとをラジカル共重合して、エポキシ基含有不飽和化合物単位とオレフィン単位を含む共重合体として得るようにしてもよい。該オレフィンの具体例としては、前述の（Ａ）成分の変性ポリオレフィン系樹脂における主骨格のポリオレフィン系樹脂の構成単量体単位として例示したものと同じものを挙げることができる。

[0042] エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂におけるエポキシ基の濃度は、０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇが好ましく、０．１～５ｍｍｏｌ／ｇがより好ましい。エポキシ基濃度はＪＩＳ Ｋ ７２３６－１９９５に基づいて得られるエポキシ当量から求められる。

[0043] エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂の数平均分子量は特に限定はされないが、樹脂組成物のワニスの良好な塗工性と樹脂組成物における他の成分との良好な相溶性をもたらすという観点から、５００００以下が好ましく、３００００以下がより好ましく、１５００００以下が更に好ましい。一方、樹脂組成物のワニスの塗工時のハジキを防止し、形成される樹脂組成物層の耐透湿性を発現させ、機械強度を向上させるという観点から、１００００以上が好ましく、３００００以上がより好ましく、５００００以上が更に好ましい。なお、ここでいう数平均分子量は、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法による数平均分子量は、具体的には、測定装置として社島津製作所製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、移動相としてトルエン等を用いて、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。

[0044] エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂は、加工性を良好なものとする観点から、結晶性が低いものが好ましく、特に非結晶性であることが好ましい。ここで、非結晶性とは、当該エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂が明確な融点

を有しないことを意味し、例えば、当該エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂のＤＳＣ（示差走査熱量測定）で融点を測定した場合に明確なピークが観察されないことである。

[0045] （Ｂ）成分は１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。樹脂組成物中の（Ｂ）成分の含有量は特に制限はないが、良好な耐透湿性を確保できるという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、４５質量％以下が好ましく、４０質量％以下がより好ましく、３５質量％以下が更に好ましい。一方、良好な取り扱い性（タック抑制）を確保できるという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５質量以上％が好ましく、１０質量％以上がより好ましく、１５質量％以上が更に好ましい。

[0046] 本発明の樹脂組成物中の（Ａ）成分と（Ｂ）成分の量比は、本発明の効果が発揮される範囲で任意に選ばれるが、良好な架橋構造を形成し、未反応の活性な官能基の含有量を減らし、安定的に性能を発揮させる観点から、（Ａ）成分の酸無水物当量（Ｅａ）と（Ｂ）成分のエポキシ当量（Ｅｂ）との比（Ｅａ／Ｅｂ）が、好ましくは０．７～１．４５、より好ましくは０．８～１．２５、さらに好ましくは０．９～１．１５、一層好ましくは０．９５～１．０６となる比である。なお、「酸無水物当量」とは１グラム当量の酸無水物基を含む樹脂のグラム数（g/eq）である。

[0047] 本発明の樹脂組成物において、（Ａ）成分と（Ｂ）成分の合計含有量は、特に制限はされないが、接着性、加工性等の観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、８０質量％以下が好ましく、７５質量％以下がより好ましく、７０質量％以下が更に好ましい。一方、湿熱耐性の観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５質量％以上が好ましく、１０質量％以上がより好ましく、１５質量％以上が更に好ましい。

[0048] ＜（Ｃ）粘着付与樹脂＞

本発明において使用される（Ｃ）粘着付与樹脂（以下、「（Ｃ）成分」と

も略称する）は、タッキファイヤーとも呼ばれ、可塑性高分子に配合して粘着性を付与させる樹脂である。（Ｃ）成分としては、特に限定されるものではなく、テルペン樹脂、変性テルペン樹脂（水素添加テルペン樹脂、テルペンフェノール共重合樹脂、芳香族変性テルペン樹脂等）、クマロン樹脂、インデン樹脂、石油樹脂（脂肪族系石油樹脂、水添脂環式石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂、脂環族系石油樹脂、ジシクロペンタジエン系石油樹脂およびその水素化物等）が好ましく使用される。

[0049] なかでも、樹脂組成物の接着性、耐透湿性、相溶性等の観点から、テルペン樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、テルペンフェノール共重合樹脂、水添脂環式石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂、脂環族系石油樹脂がより好ましく、脂環族系石油樹脂が更に好ましく、脂環族飽和炭化水素樹脂が更に一層好ましく、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂、ジシクロペンタジエン変性炭化水素樹脂が特に好ましい。

[0050] （Ｃ）成分として使用できる市販品としては、テルペン樹脂として、ＹＳレジンＰＸ、ＹＳレジンＰＸＮ（いずれもヤスハラケミカル社製）等が挙げられ、芳香族変性テルペン樹脂として、ＹＳレジンＴＯ、ＴＲシリーズ（いずれもヤスハラケミカル社製）等が挙げられ、水素添加テルペン樹脂として、クリアロンＰ、クリアロンＭ、クリアロンＫシリーズ（いずれもヤスハラケミカル社製）等が挙げられ、テルペンフェノール共重合樹脂として、ＹＳポリスター２０００、ポリスターＵ、ポリスターＴ、ポリスターＳ、マイティエースＧ（いずれもヤスハラケミカル社製）等が挙げられ、水添脂環式石油樹脂として、Ｅｓｃｏｒｅｚ５３００シリーズ、５６００シリーズ（いずれもエクソンモービル社製）等が挙げられ、芳香族系石油樹脂としてＥＮＤＥＸ１５５（イーストマン社製）等が挙げられ、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂としてＱｕｉｎｔｏｎｅＤ１００（日本ゼオン社製）等が挙げられ、脂環族系石油樹脂としてＱｕｉｎｔｏｎｅ１３２５、Ｑｕｉｎｔｏｎｅ１３４５（いずれも日本ゼオン社製）等が挙げられ、水添脂環式石油樹脂としてアルコンＰ１００、アルコンＰ１２５、アルコンＰ１４０（いずれも荒川化学

社製）等が挙げられ、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂としてＴＦＳ１３－０３０（荒川化学社製）等が挙げられる。

[0051] （Ｃ）成分の軟化点は、樹脂組成物シートの積層工程でシートが軟化し、かつ所望の耐熱性を持つという観点から、５０～２００℃が好ましく、９０～１８０℃がより好ましく、１００～１５０℃が更に好ましい。なお、軟化点の測定は、ＪＩＳ Ｋ２２０７に従い環球法により測定される。

[0052] （Ｃ）成分は１種または２種以上を組み合わせて使用してもよい。樹脂組成物中の（Ｃ）成分の含有量は特に制限はないが、樹脂組成物の良好な耐透湿性を維持するという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、８０質量％以下が好ましく、６０質量％以下がより好ましく、５０質量％以下が更に好ましい。一方、十分な接着性を有するという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５質量％以上が好ましく、１０質量％以上がより好ましく、１５質量％以上が更に好ましい。

[0053] 本発明の参考例となる封止用樹脂組成物の態様として、以下の樹脂組成物が挙げられる。すなわち、酸無水物基及び／又はエポキシ基を有する、ポリオレフィン系樹脂、及び、粘着付与樹脂を含有する封止用樹脂組成物、好ましくは、酸無水物基を有するポリオレフィン系樹脂及びエポキシ基を有するポリオレフィン系樹脂、並びに粘着付与樹脂を含有する封止用樹脂組成物が挙げられる。酸無水物基を有するポリオレフィン系樹脂は、酸無水物変性により酸無水物基を有する樹脂であれば特に限定はなく、上記（Ａ）成分の（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂でもよく、またその他の変性により他の官能基を含んでいてもよい。すなわち、「酸無水物基を有するポリオレフィン系樹脂」は、（メタ）アクリル酸アルキルエステル変性を必須としない点を除き、その他の特徴は上記（Ａ）成分の（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂に踏襲される。例えば、ポリオレフィン系樹脂は共重合体であってもよく、共重合体の具体例としては、例えば、エチレン－非共役ジエン共重合体、エチレン－ブテン共重合体、エチレン－ブテン

－非共役ジエン共重合体、エチレン－プロピレン共重合体、エチレン－プロピレン－非共役ジエン共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、プロピレン－ブテン－非共役ジエン共重合体、イソブチレン－ブテン共重合体、イソブチレン－ブテン－非共役ジエン共重合体、スチレン－イソブチレン共重合体、スチレン－イソブチレン－スチレン共重合体等が挙げられる。また、粘着付与樹脂は上記（Ｃ）成分の粘着付与樹脂と同義である。酸無水物基及び／又はエポキシ基を有する、ポリオレフィン系樹脂の酸無水物基及び／又はエポキシ基の官能基濃度は０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇが好ましい。酸無水物基及び／又はエポキシ基を有する、プロピレン－ブテン共重合体の含有量が、樹脂組成物中の不揮発分の合計１００質量％当たり、３５～８０質量％であるのが好ましい。ここにおける封止用樹脂組成物は好ましくは 有機ＥＬ素子の封止用に用いることができる。ここにおける封止材用樹脂組成物は封止用シートの形態で、例えば有機ＥＬ封止用に用いることができる。

[0054] ＜硬化促進剤＞

本発明の樹脂組成物（上記（Ａ）～（Ｃ）成分を含有する樹脂組成物）及び上記参考例の樹脂組成物には、良好な架橋構造を形成させる観点から、更に硬化促進剤を含有させてもよい。硬化促進剤としては、特に限定はされないが、アミン系硬化促進剤、グアニジン系硬化促進剤、イミダゾール系硬化促進剤、ホスホニウム系硬化促進剤などが挙げられる。硬化促進剤は１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0055] アミン系硬化促進剤としては、特に制限はないが、テトラメチルアンモニウムブロマイド、テトラブチルアンモニウムブロマイド等の４級アンモニウム塩；ＤＢＵ（１，８－ジアザビシクロ［５．４．０]ウンデセン－７）、ＤＢＮ（１，５－ジアザビシクロ[４．３．０]ノネン－５）、ＤＢＵ－フェノール塩、ＤＢＵ－オクチル酸塩、ＤＢＵ－ｐ－トルエンスルホン酸塩、ＤＢＵ－ギ酸塩、ＤＢＵ－フェノールノボラック樹脂塩等のジアザビシクロ化合物；ベンジルジメチルアミン、２－（ジメチルアミノメチル）フェノール、

２，４，６－トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール等の３級アミンおよびそれらの塩、芳香族ジメチルウレア、脂肪族ジメチルウレア、芳香族ジメチルウレア等のジメチルウレア化合物；等が挙げられる。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0056] グアニジン系硬化促進剤としては、特に制限はないが、ジシアンジアミド、１－メチルグアニジン、１－エチルグアニジン、１－シクロヘキシルグアニジン、１－フェニルグアニジン、１－（ｏ－トリル）グアニジン、ジメチルグアニジン、ジフェニルグアニジン、トリメチルグアニジン、テトラメチルグアニジン、ペンタメチルグアニジン、１，５，７－トリアザビシクロ［４．４．０］デカ－５－エン、７－メチル－１，５，７－トリアザビシクロ［４．４．０］デカ－５－エン、１－メチルビグアニド、１－エチルビグアニド、１-ｎ－ブチルビグアニド、１－ｎ－オクタデシルビグアニド、１，１－ジメチルビグアニド、１，１－ジエチルビグアニド、１－シクロヘキシルビグアニド、１－アリルビグアニド、１－フェニルビグアニド、１－（ｏ－トリル）ビグアニド等が挙げられる。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0057] イミダゾール系硬化促進剤としては、特に制限はないが、１Ｈ－イミダゾール、２－メチル-イミダゾール、２－フェニル－４－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチル－イミダゾール、２－フェニル－４，５－ビス（ヒドロキシメチル）－イミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－ベンジル－２－フェニルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－フェニル－イミダゾール、２－ドデシル－イミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、１，２－ジメチル－イミダゾール等が挙げられる。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0058] ホスホニウム系硬化促進剤としては、特に制限はないが、トリフェニルホスフィン、ホスホニウムボレート化合物、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、ｎ－ブチルホスホニウムテトラフェニルボレート、テ

トラブチルホスホニウムデカン酸塩、（４－メチルフェニル）トリフェニルホスホニウムチオシアネート、テトラフェニルホスホニウムチオシアネート、ブチルトリフェニルホスホニウムチオシアネート等が挙げられる。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0059] 硬化促進剤は１種または２種以上を組み合わせて使用してもよい。樹脂組成物中の硬化促進剤の含有量は特に制限はないが、耐透湿性の低下を防止するという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５質量％以下が好ましく、１質量％以下がより好ましい。一方、タックを抑制させるという観点から、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、０．０１質量％以上が好ましく、０．０５質量％以上がより好ましい。

[0060] ＜吸湿性金属化合物＞

本発明の樹脂組成物は、耐透湿性をより向上させるために、さらに吸湿性金属酸化物を含有させることができる。ここで、「吸湿性金属酸化物」とは、水分を吸収する能力をもち、吸湿した水分と化学反応して水酸化物になる金属酸化物を意味する。具体的には、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化ストロンチウム、酸化アルミニウム、酸化バリウム等から選ばれる１種か、または、２種以上の混合物若しくは固溶物である。２種以上の混合物若しくは固溶物の例としては、具体的には、焼成ドロマイト（酸化カルシウムおよび酸化マグネシウムを含む混合物）、焼成ハイドロタルサイト（酸化カルシウムと酸化アルミニウムの固溶物）等が挙げられる。中でも、吸湿性が高い点、コスト、原料の安定性の点から、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、焼成ハイドロタルサイトが好ましく、より好ましくは焼成ハイドロタルサイトである。焼成ハイドロタルサイトは、天然ハイドロタルサイト（$Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$）および合成ハイドロタルサイト（ハイドロタルサイト様化合物）を焼成して化学構造中のＯＨ量を減少乃至消失させたものである。また、樹脂組成物の硬化体の透明性を向上させる観点から、ＢＥＴ比表面積６５m^2/g以上の焼成ハイドロタルサイトが特に好ましい。ＢＥＴ比表面積６５m^2/g以上の焼成ハイドロタルサイトは、ＢＥＴ比表面積

が８０ｍ^2/ｇ以上が好ましく、１００ｍ^2/ｇ以上がより好ましい。また、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2/ｇ以下が好ましく、１５０ｍ^2/ｇ以下がより好ましい。

[0061] 吸湿性金属酸化物は、種々の技術分野において吸湿材として公知であり、市販品を使用することができる。具体的には、酸化カルシウム（三共製粉社製「モイストップ＃１０」等）、酸化マグネシウム（協和化学工業社製「キョーワマグＭＦ－１５０」、「キョーワマグＭＦ－３０」、タテホ化学工業社製「ピュアマグＦＮＭＧ」等）、軽焼酸化マグネシウム（タテホ化学工業社製の「TATEHOMAG＃５００」、「TATEHOMAG＃１０００」、TATEHOMAG＃５００」等）、焼成ドロマイト（吉澤石灰社製「ＫＴ」等）、焼成ハイドロタルサイト（協和化学工業社製「ＤＨＴ－４Ａ」、ＤＨＴ－４Ａ－２、ＤＨＴ－４Ｃ等）等が挙げられる。

[0062] 吸湿性金属酸化物は、表面処理剤で表面処理したものを用いることができる。表面処理に使用する表面処理剤としては、例えば、高級脂肪酸、アルキルシラン類、シランカップリング剤等を使用することができ、なかでも、高級脂肪酸、アルキルシラン類が好適である。表面処理剤は、１種または２種以上を使用できる。

[0063] 高級脂肪酸としては、例えば、ステアリン酸、モンタン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸などの炭素数１８以上の高級脂肪酸が挙げられ、中でも、ステアリン酸が好ましい。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。アルキルシラン類としては、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、オクチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、ｎ－オクタデシルジメチル（３－（トリメトキシシリル）プロピル）アンモニウムクロライド等が挙げられる。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。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１１－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。これらは１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0064] 吸湿性金属酸化物の表面処理は、例えば、未処理の吸湿性金属酸化物を混合機で常温にて攪拌分散させながら、表面処理剤を添加噴霧して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砕する際に、前記の高級脂肪酸、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吸湿性金属酸化物の種類または表面処理剤の種類等によっても異なるが、吸湿性金属酸化物に対して１～１０質量％が好ましい。

[0065] 吸湿性金属酸化物は１種または２種以上を組み合わせて使用してもよい。本発明の樹脂組成物が吸湿性金属化合物を含有する場合、その含有量は特に限定されるものではないが、硬化物の強度が低下して脆くなるのを防止するという観点から、樹脂組成物中の不揮発分１００質量％に対し、５０質量％以下が好ましく、４０質量％以下がより好ましく、３０質量％以下が更に好ましい。また、吸湿性金属酸化物を配合することの効果を十分得るという観点から、樹脂組成物中の不揮発分１００質量％に対し、１質量％以上が好ましく、５質量％以上がより好ましく、１０質量％以上が更に好ましい。

[0066] ＜可塑剤＞

本発明の樹脂組成物は、更に可塑剤を含有させることにより、樹脂組成物の柔軟性や成形性を向上させることができる。可塑剤としては、特に限定はされないが、室温で液状の材料が好適に用いられる。可塑剤の具体例としては、パラフィン系プロセスオイル、ナフテン系プロセスオイル、流動パラフィン、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、ワセリン等の鉱物油、ヒマシ油、綿実油、菜種油、大豆油、パーム油、ヤシ油、オリーブ油等の植物油、液状ポリブテン、水添液状ポリブテン、液状ポリブタジエン、水添液状ポリブタジエン等の液状ポリαオレフィン類等が挙げられる。本発明に使用する可塑剤としては、液状ポリαオレフィン類が好ましく、特に液状ポリブタジエンが好ましい。また液状ポリαオレフィンとしては接着性の観点から分子量が低いものが好ましく、重量平均分子量で５００～５０００、更には１０００～３０００の範囲のものが好ましい。これら可塑剤は１種を

単独で使用してもよく、２種以上を組み合わせて使用してもよい。なお、ここで「液状」とは、室温（２５℃）での可塑剤の状態である。本発明の樹脂組成物が可塑剤を含有する場合、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、有機ＥＬ素子への悪影響を及ぼさないという観点から、５０質量％以下の範囲内で使用される。

[0067] ＜その他の添加剤＞

本発明の樹脂組成物には、本発明の効果を阻害しない程度に、上述した成分以外の各種添加剤を任意で含有させても良い。このような添加剤としては、例えば、シリカ、硫酸バリウム、タルク、クレー、雲母粉、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、ジルコン酸バリウム、ジルコン酸カルシウム等の無機充填材；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。

[0068] 本発明の樹脂組成物の調製方法は、特に限定されるものではなく、配合成分を、必要により溶媒等を添加し、混練ローラーや回転ミキサーなどを用いて混合する方法などが挙げられる。

[0069] 本発明の樹脂組成物は、半導体、太陽電池、高輝度ＬＥＤ、ＬＣＤ、ＥＬ素子等の電子部品の封止に使用される。特に有機ＥＬ素子の封止に好適に使用され、具体的には、有機ＥＬ素子の発光部の上部および／または周囲（側部）に適用して有機ＥＬ素子の発光部を外部から保護するために用いることができる。

[0070] 本発明の樹脂組成物を有機ＥＬ素子に適用する場合、樹脂組成物により形成される封止層の透明性は、分光光度計により測定することができる。透明

性は有機ＥＬ素子の発光効率を向上させるという点で高いほど良い。具体的には、３０μｍの厚さの封止層において、４５０ｎｍにおける平行線透過率が８０％以上が好ましく、８２％以上がより好ましく、８４％以上が更に好ましく、８６％以上が更に一層好ましく、８８％以上が殊更好ましく、９０％以上が特に好ましい。

[0071] 本発明の樹脂組成物は、（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂の酸無水物基と（Ｂ）エポキシ樹脂のエポキシ基が反応して生じるエステル結合が形成されているのが好ましい。このように架橋構造を形成することで、接着湿熱耐性、耐透湿性等に優れた封止層を形成することができる。エステル結合を形成させるには、例えば、樹脂組成物に有機溶剤を含有させ、ワニス状の樹脂組成物を調製し、該ワニスを加熱乾燥することで形成させることができる。有機溶剤の乾燥は熱風吹きつけ等によって行うことができる。

[0072] 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；ソルベントナフサ等の芳香族系混合溶剤を挙げることができる。芳香族系混合溶剤として「スワゾール」（丸善石油社製、商品名）、「イプゾール」（出光興産社製、商品名）が挙げられる。有機溶剤は１種または２種以上組み合わせて使用してもよい。

[0073] 乾燥条件は特に制限はないが、５０～１００℃で１～６０分が好ましい。５０℃以上とすることで、樹脂組成物層中に残存する溶剤量を低下させ易くなる。

[0074] ＜封止用シート＞

本発明の封止用シートは、支持体上に接着層が形成された封止用シートで

あり、接着層が本発明の樹脂組成物により形成されたものである。接着層は、例えば、有機溶剤に本発明の樹脂組成物を溶解したワニスを調製し、支持体上に、ワニスを塗布、乾燥することで形成される。有機溶剤の乾燥は熱風吹きつけ等によって行うことができ、この乾燥時に樹脂組成物中の（Ａ）成分の酸無水物基と（Ｂ）成分のエポキシ基が反応して生じるエステル結合が形成されているのが好ましい。このようなエステル結合による架橋構造が形成されることで、樹脂組成物は接着湿熱耐性、耐透湿性等に優れた感圧接着性の樹脂組成物になる。有機溶剤の具体例としては、前記有機溶剤と同様のものを挙げることができ、乾燥条件も前記の乾燥条件と同じ条件を用いることができる。

[0075] 封止用シートにおける接着層の厚さは、３μｍ～２００μｍが好ましく、５μｍ～１００μｍがより好ましく、５μｍ～５０μｍが更に好ましい。

[0076] なお、後述のように、目的とする最終的な封止構造が、接着層（樹脂組成物層）に封止基材が積層された構造の場合、水分が浸入し得る部分は接着層の側部のみになるため、接着層の層厚を薄くすることで、側部の外気と接触する面積が小さくなる。従って、接着層の層厚を薄くすることが、水分を遮断する上で望ましい。しかし、接着層の層厚が小さすぎると、封止基材を貼り合わせる際に素子にダメージを与える虞があり、また、封止基材を貼り合わせる際の作業性が低下する傾向にある。また、接着層の厚みを上記の好適範囲とすることは、封止対象（例えば、有機ＥＬ素子等の素子が形成された基板）に接着層を転写した後の接着層の厚みの均一性を保つ上でも有効である。

封止用シートに使用する支持体としては、防湿性を有する支持体が好ましい。防湿性を有する支持体としては、防湿性を有するプラスチックフィルムや、銅箔、アルミニウム箔などの金属箔等が挙げられる。防湿性を有するプラスチックフィルムとしては、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表面に蒸着させたプラスチックフィルム等が挙げられる。ここで、表面に無機物が蒸着されるプラスチックフィ

ルムとしては、例えば、ポリオレフィン（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等）、ポリエステル（例えば、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）、ポリカーボネート、ポリイミド等のプラスチックフィルムが好適であり、ＰＥＴフィルムが特に好ましい。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）や、該テックバリアＨＸ、ＡＸ、ＬＸ、Ｌシリーズよりも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。また、防湿性を有する支持体として、２層以上の複層構造を有するもの、例えば、上記のプラスチックフィルムと上記の金属箔とを接着剤を介して張り合わせたものも使用できる。このものは安価であり、ハンドリング性の観点からも有利である。なお、樹脂組成物シートの支持体には、防湿性を有しない支持体（例えば、上記の表面に無機物が蒸着されていないプラスチックフィルムの単体）も使用できる。

[0077] 支持体の厚さは特に限定されないが、封止用シートの取り扱い性等の観点から、１０～１５０μｍが好ましく、２０～１００μｍがより好ましい。

[0078] また、本発明の封止用シートは実際に封止構造の形成に使用する前までは、接着層（樹脂組成物層）表面へのゴミ等の付着やキズを防止するために接着層表面が保護フィルムで保護されているのが好ましく、保護フィルムとしては、上記の支持体で例示したプラスチックフィルムを用いることができる。保護フィルムは予めマット処理、コロナ処理の他、離型処理を施してあってもよい。離型剤としては、具体的には、フッ素系離型剤、シリコーン系離型剤、アルキッド樹脂系離型剤等が挙げられる。離型剤は異なる種類のものを混合して用いてもよい。保護フィルムの厚さも特に制限されないが、１～４０μｍが好ましく、１０～３０μｍがより好ましい。

[0079] 本発明の封止用シートは、封止対象にラミネートして使用される。ここでいう、「ラミネート」は支持体を備えたままの封止用シートで封止対象が被覆された状態の他、封止対象が封止用シートから転写された接着層（樹脂組

成物層）で被覆された状態を含む。支持体が防湿性を有しない支持体（例えば、上記の表面に無機物が蒸着されていないプラスチックフィルムの単体）である封止用シートを使用する場合、封止対象に封止用シートをラミネートした後、支持体を剥離し（すなわち、接着層（樹脂組成物層）を転写し）、その後、接着層上に、別途、封止基材を積層するのが好ましい。特に、封止対象が有機ＥＬ素子が形成された基板（以下、「有機ＥＬ素子形成基板」ともいう）である場合、かかる封止基材を積層する態様が好ましい。なお、本発明でいう「封止基材」は、封止用シートに用いた防湿性を有する支持体を、それに接着層（樹脂組成物層）を形成せずに、それ単体で使用するものである。また、封止用シートの支持体として使用するには不向きな、ガラス板、金属板、鋼板等の可とう性を有しないが、防湿性の高い板も「封止基材」に含まれる。

[0080] ＜有機ＥＬデバイス＞

本発明の有機ＥＬデバイスは、有機ＥＬ素子が封止層により封止されている有機ＥＬデバイスであり、封止層が本願の樹脂組成物により形成されているものである。たとえば、有機ＥＬ素子を有する基板に本発明の封止用シートをラミネートすることで、本発明の有機ＥＬデバイスが得られる。封止用シート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、接着層（樹脂組成物層）が有機ＥＬ素子を有する基板に直接接するように、封止用シートを該有機ＥＬ素子を有する基板上にラミネートする。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。

[0081] 封止用シートの支持体が防湿性を有する支持体である場合は、封止用シートを有機ＥＬ素子を有する基板上にラミネートした後、支持体を剥離せず、そのまま有機ＥＬ素子の封止工程が完了する。封止工程後に熱硬化が必要な場合は、熱硬化を行う。こうすることで、有機ＥＬ素子が本発明の樹脂組成物により形成された封止層により封止された有機ＥＬデバイスが得られる。

[0082] 一般的に、有機ＥＬ素子の封止用材料は、封止作業の前に乾燥させて、吸水した水分を除去することが必要であり、その作業が煩雑であるが、防湿性

を有する支持体を使用した本発明の封止用シートは耐透湿性が高いため、保存時やデバイス製造作業時における吸水率も低い。また、封止作業時の有機ＥＬ素子に与えるダメージも著しく軽減される。

[0083] 防湿性を有しない支持体を使用した封止用シートを使用する場合、有機ＥＬ素子を有する基板に封止用シートをラミネート後、支持体を剥離し、露出した接着層（樹脂組成物層）に封止基材を圧着することで、有機ＥＬ素子の封止工程が完了する。封止基材は、防湿効果が上がるという観点から、２枚またはそれ以上を貼り合わせて使用してもよい。また、封止基材の厚みは有機ＥＬデバイス自体を薄くかつ軽くするという観点から５ｍｍ以下が好ましく、１ｍｍ以下がより好ましく、１００μｍ以下が更に好ましくい。また、水分透過を防ぐ観点から、５μｍ以上が好ましく、１０μｍ以上がより好ましく、２０μｍ以上が更に好ましい。封止基材の圧着時の圧力は０．３～１０ｋｇｆ／ｃｍ^{2}程度が好適であり、加熱下に圧着する場合、２５℃～１３０℃が好適である。

[0084] 有機ＥＬ素子を有する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、封止用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素子を有する基板が有機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

[0085] 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、「部」は「質量部」、「％」は「質量％」を意味する。

[0086] まず、実施例および比較例に用いた使用材料について説明する。

（Ａ）変性ポリオレフィン系樹脂

・Ｔ－ＹＰ４２９（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（エチレン単位／メチルメタクリレート単位＝６８質量％／３２質量％、無水マレイン酸基濃度０．４６mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量２３００、グラフト鎖の数平均分子量３８６、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量％）

・Ｔ－ＹＰ４３０（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（エチレン単位／メチルメタクリレート単位＝６８質量％／３２質量％、無水マレイン酸基濃度１．１８mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量４５００、グラフト鎖の数平均分子量３８６、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量％）

・Ｔ－ＹＰ９５３（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体８０質量％とアクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－エチレン共重合体２０質量％の混合物（無水マレイン酸基濃度０．４４mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量３３２００、グラフト鎖の数平均分子量８５６、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量％）

・Ｔ－ＹＰ９５５（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体質量６７％とアクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－エチレン共重合体３３質量％の混合物（無水マレイン酸基濃度０．９４mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量２２７００、グラフト鎖の数平均分子量６２０、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量％）

・Ｔ－ＹＰ９５６（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－プロピレン－ブテンランダム共重合体（無水マレイン酸基濃度１．８０mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量３０００、グラフト鎖の数平均分子量４２３、グラフト鎖中のアクリル酸２－エ

チルヘキシル単位の含有量５０質量%）

・Ｔ－ＹＰ２７９（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテンランダム共重合体（プロピレン単位／ブテン単位＝６４質量%／３６質量%、無水マレイン酸基濃度０．４６４mmol／ｇ、数平均分子量３５０００グラフト鎖の数平均分子量６４４、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量%）

・Ｔ－ＹＰ３１２（星光ＰＭＣ社製）：アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（プロピレン単位／ブテン単位＝７１質量%／２９質量%、無水マレイン酸基濃度０．４６４mmol／ｇ、変性共重合体の数平均分子量６０９００、グラフト鎖の数平均分子量６１１、グラフト鎖中のアクリル酸２－エチルヘキシル単位の含有量５０質量%）（Ｂ）エポキシ樹脂

・８２８ＥＬ（三菱化学社製）：ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、エポキシ当量１９０ｇ／ｅｑ

・ＥＰＩＣＬＯＮ ＥＸＡ４８５０－１０００（ＤＩＣ社製）：ポリプロピレングリコール骨格含有エポキシ樹脂、エポキシ当量３５０ｇ／ｅｑ

・Ｔ－ＹＰ４３１（星光ＰＭＣ社製）：グリシジルメタクリレート変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（エポキシ基濃度０．６４mmol/g、数平均分子量２４００）

・Ｔ－ＹＰ４３２（星光ＰＭＣ社製）：グリシジルメタクリレート変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（エポキシ基濃度１．６３mmol/g、数平均分子量３１００）

・ＢＯＮＤＦＡＳＴ ＢＦ-７Ｍ（住友化学社製）：エチレン－グリシジルメタクリレート共重合体（エポキシ基濃度０．４mmol/g）

・Ｔ－ＹＰ２５２（星光ＰＭＣ社製）：グリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブランダム共重合体８０%とグリシジルメタクリレート変性プロピレン－エチレンランダム共重合体２０%の混合物（エポキシ基濃度０．６４mmol／ｇ、数平均分子量３４０００）

・Ｔ－ＹＰ３１３（星光ＰＭＣ社製）：グリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテンランダム共重合体（プロピレン単位／ブテン単位＝７１質量％／２９質量％、エポキシ基濃度０．６３８mmol／ｇ、数平均分子量１５５０００）

・Ｔ－ＹＰ２７６（星光ＰＭＣ社製）：グリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテンランダム共重合体（プロピレン単位／ブテン単位＝６４質量％／２９質量％、エポキシ基濃度０．６３８mmol/g、数平均分子量５７０００）

（Ｃ）粘着付与樹脂

・ＴＦＳ１３－０３０（荒川化学社製）：シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂、軟化点１２５℃

（Ｄ）硬化促進剤

・アニオン重合型硬化促進剤：２，４，６－トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール（以下「ＴＡＰ」と略記）

（Ｆ）吸湿性金属酸化物

・焼成ハイドロタルサイト（協和化学工業製「ＤＨＴ－４Ｃ」）

（その他の材料）

・ＡＣＲＹＦＴ　ＣＭ５０２２（住友化学（株）製）：エチレン－メチルメタクリレート共重合体

・Ｌ－ＭＯＤＵ　Ｓ４００（出光興産社製）：ポリプロプレン樹脂、平均分子量４５０００

・ＳＩＢＳＴＡＲ－１０２Ｔ（カネカ社製）：スチレン－イソブチレン－スチレンブロック共重合体、平均分子量１００００

・スワゾール＃１０００（丸善石油社製）：芳香族系混合溶剤

・トルエン

[0087] ［測定方法・評価方法］

各種測定方法・評価方法について説明する。

[0088] ＜接着湿熱耐性の評価＞

支持体にＰＥＴフィルムを使用した封止用シート（長さ５０ｍｍ、幅２０ｍｍ）をバッチ式真空ラミネーター（ニチゴー・モートン社製、Ｍｏｒｔｏｎ－７２４）を用いて、アルミニウム箔（長さ１００ｍｍ、幅２０ｍｍ、厚さ５０μｍ、住軽アルミ箔社製、品番ＳＡ５０）にラミネートした。ラミネートは、温度８０℃、時間３００秒、圧力０．３ＭＰａの条件で行った。そしてＰＥＴフィルムを剥離し、露出した樹脂組成物層上に、さらにガラス板（長さ７６ｍｍ、幅２６ｍｍ、厚さ１．２ｍｍ、マイクロスライドガラス）を上記と同じ条件でラミネートした。得られた積層体について、アルミニウム箔の長さ方向に対して、９０度方向に、引張り速度を５０ｍｍ／分として剥離したときの接着強度を測定した（初期接着強度）。また、上記と同様にして作製した試験片を８５℃、８５％ＲＨの条件下で２４時間保持した後に、上記の方法で接着強度を測定した（高温高湿環境試験後の接着強度）。

[0089] ＜加工性の評価＞

樹脂組成物ワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布する際に、ワニスの流動性の持続性（経時安定性）が良好で安定した塗工が可能である場合を○、増粘等により安定した塗工が不可な場合を×と評価した。

[0090] ＜耐透湿性の評価＞

実施例及び比較例で作製した樹脂組成物シートの樹脂組成物層（厚み：４５μｍ）を支持体（ＰＥＴフィルム）から剥離した粘着層に対し、ＪＩＳＺ０２０８に準拠する方法にて、温度４０℃、湿度９０％ＲＨ、２４時間の条件にて、水蒸気透過量を測定し、１ｍ２あたりの水蒸気透過量を求めた。水蒸気透過量が１００ｇ／ｍ^2・２４ｈｒ以上の場合は耐透湿性は不良「×」と判定し、１００ｇ／ｍ^2・２４ｈｒ未満の場合を良好「○」とした。

[0091] 以下に記載する方法で封止用シートを得た。なお、特に記載のない限り、各部の値は不揮発分で換算した値である。

[0092] ＜実施例１＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－メチ

ルメタクリレート共重合体（Ｔ－ＹＰ４２９、２０％トルエン溶液）３７部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３５部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性エチレン－メチメタクリレート共重合体（Ｔ－ＹＰ４３１、２０％トルエン溶液）２７部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0093] ＜実施例２＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（Ｔ－ＹＰ４３０、２０％トルエン溶液）３７部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３５部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（Ｔ－ＹＰ４３２、２０％トルエン溶液）２７部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0094] ＜実施例３＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－メチルメタクリレート共重合体（Ｔ－ＹＰ４２９、２０％スワゾール溶液）３０部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３５部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にエチレン－グリシジルメタクリレート共重

合体（ＢＯＮＤＦＡＳＴ　ＢＦ－７Ｍ、２０％スワゾール溶液）３４部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0095] ＜実施例４＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－プロピレン共重合体とアクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体の混合物（Ｔ－ＹＰ９５３、３０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）３７部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３６部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性エチレン－プロピレン共重合体とグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重合体の混合物（Ｔ－ＹＰ２５２、３０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）２６部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0096] ＜実施例５＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－プロピレン共重合体とアクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体の混合物（Ｔ－ＹＰ９５５、３０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）２５部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３６部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシ

ジルメタクリレート変性エチレン－プロピレン共重合体とグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重合体の混合物（Ｔ－ＹＰ２５２、３０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）３８部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0097] ＜実施例６＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性エチレン－プロピレン－ブテンランダム共重合体（Ｔ－ＹＰ９５６、５０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）１６部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３６部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性エチレン－プロピレン共重合体とグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重合体の混合物（Ｔ－ＹＰ２５２、３０％メチルシクロヘキサン＋酢酸ブチル溶液）４７部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0098] ＜実施例７＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ２７９、４０％スワゾール溶液）２８部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重

合体（Ｔ－ＹＰ２７６、４０％スワゾール溶液）２１部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0099] ＜実施例８＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ２７９、４０％スワゾール溶液）３５部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（８２８ＥＬ）２部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0100] ＜実施例９＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ２７９、４０％スワゾール溶液）３５部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にポリプロピレングリコール骨格含有エポキシ樹脂（ＥＰＩＣＬＯＮ ＥＸＡ４８５０－１０００）２部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シート

を得た。

[0101] ＜実施例１０＞

アクリル酸２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ２７９、４０％スワゾール溶液）２０部と焼成ハイドロタルサイト１４部を混合し３本ロールで混練した後、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ２７６、４０％スワゾール溶液）１４部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0102] ＜実施例１１＞

アクリル酸－２－エチルヘキシルおよび無水マレイン酸変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ３１２、４０％スワゾール溶液）２８部に、シクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にグリシジルメタクリレート変性プロピレン－ブテン共重合体（Ｔ－ＹＰ３１３、４０％スワゾール溶液）２１部と、アニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部とを高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0103] ＜比較例１＞

ポリプロピレン樹脂（Ｌ－ＭＯＤＵ Ｓ４００、４５％スワゾール溶液）５０部とシクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０

、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にアニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部を高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0104] ＜比較例２＞

スチレン－イソブチレン－スチレンブロック共重合体（ＳＩＢＳＴＡＲ－１０２Ｔ、４５％スワゾール溶液）５０部とシクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）５０部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にアニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部を高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの樹脂組成物シートを得た。

[0105] ＜比較例３＞

ポリエチレン樹脂（ＡＣＲＹＦＴ　ＣＭ５０２２、２０％トルエン溶液）６４部とシクロヘキサン環含有飽和炭化水素樹脂精製物（ＴＦＳ１３－０３０、６０％トルエン溶液）３５部を混合し、高速回転ミキサーで混合して均一混合溶液を得た。この混合溶液にアニオン重合型硬化促進剤（ＴＡＰ）０．５部を高速回転ミキサーで均一に混合し、ワニスを得た。得られたワニスをシリコーン系離型剤で処理されたＰＥＴフィルム（厚さ３０μｍ）の離型処理面上に、ダイコーターにて均一に塗布し、１３０℃で６０分間加熱硬化させることにより、樹脂組成物層厚２０μｍの封止用シートを得た。

[0106] 実施例および比較例の評価結果を表１に示す。

[0107]

[表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	比較例1	比較例2	比較例3
初期接着強度(kgf/cm)	0.25	0.18	0.17	0.51	0.75	0.39	0.39	0.60	0.56	0.37	0.55	0.04	0.06	0.44
環境試験後の接着強度(kgf/cm)	0.31	0.12	0.14	0.87	0.63	0.85	0.39	0.40	0.55	0.38	0.53	0.01	0.01	0.02
耐透湿性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×
加工性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○

[0108] 実施例の結果から、本発明の封止用樹脂組成物は、接着湿熱耐性および耐透湿性が良好であることが分かる。また加工性も良好で、安定した塗工が可能であった。

産業上の利用可能性

[0109] 本発明の樹脂組成物は、良好な、接着性、接着湿熱耐性を併せ持ち、半導体、太陽電池、高輝度ＬＥＤ、ＬＣＤ、ＥＬ素子等の電子部品の封止に好適に使用され、特に有機ＥＬ素子の封止に好適に使用される。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂、（Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（Ｃ）粘着付与樹脂を含有することを特徴とする封止用樹脂組成物。

[請求項2] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂が、ポリオレフィン系樹脂の主鎖に（メタ）アクリル酸アルキルエステル単位及び酸無水物単位を含むグラフトポリマーが結合したグラフト変性体であり、該グラフトポリマーの数平均分子量が１００以上である、請求項１記載の封止用樹脂組成物。

[請求項3] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂における、（メタ）アクリル酸アルキルエステルのアルキル基の炭素原子数が１～１８である、請求項１または２記載の封止用樹脂組成物。

[請求項4] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂における酸無水物基の濃度が０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇである、請求項１～３のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項5] （Ｂ）エポキシ樹脂が、エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂である、請求項１～４のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項6] エポキシ変性ポリオレフィン系樹脂におけるエポキシ基濃度が０．０５～１０ｍｍｏｌ／ｇである、請求項５に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項7] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂および（Ｂ）エポキシ樹脂の合計の含有量が、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５～８０質量％である、請求項１～６のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項8] （Ｃ）粘着付与樹脂の含有量が、樹脂組成物中の不揮発分を１００質量％とした場合、５～８０質量％である、請求項１～７のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項9] （Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂の酸無水物基と（Ｂ）エポキシ樹脂のエポキシ基が反応して生じるエステル結合が形成されている、請求項１～８のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項10] 有機ＥＬ素子の封止用である、請求項１～９のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物。

[請求項11] 支持体上に接着層が形成された封止用シートであって、該接着層が、請求項１～９のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物により形成されている、封止用シート。

[請求項12] 有機ＥＬ素子の封止用である請求項１１記載の封止用シート。

[請求項13] 有機ＥＬ素子が封止層により封止されている有機ＥＬデバイスであって、該封止層が、請求項１～１０のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物により形成されている、有機ＥＬデバイス。

[請求項14] 有機ＥＬ素子が封止層により封止されている有機ＥＬデバイスであって、該封止層が、請求項１１または１２に記載の封止用シートの接着層により形成されている、有機ＥＬデバイス。

[請求項15] 請求項１～９のいずれか１項に記載の封止用樹脂組成物を含む樹脂ワニスを、支持体上に塗布および加熱乾燥し、（Ａ）（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび酸無水物で変性されたポリオレフィン系樹脂の酸無水物基と（Ｂ）エポキシ樹脂のエポキシ基とが反応によりエステル結合した接着層を形成することを特徴とする、封止用シートの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/059664

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L23/08(2006.01)i, *C08L23/26*(2006.01)i, *C08L63/00*(2006.01)i, *C08L101/12*(2006.01)i, *C09K3/10*(2006.01)i, *H01L51/50*(2006.01)i, *H05B33/04*(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)
C08L1/00-101/14, C08K3/00-13/08, C08C19/00-19/44, C08F6/00-246/00, C08F301/00, C08F251/00-283/00, C08F283/02-289/00, C08F291/00-297/08, C09K3/10, H01L51/50, H05B33/04, 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 1996-2016
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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-222896 A (Seiko PMC Corp.), 25 September 2008 (25.09.2008), claims; paragraphs [0030] to [0031], [0051] to [0052], [0107]; examples (Family: none)	1-15
Y	JP 2011-124458 A (Kaneka Corp.), 23 June 2011 (23.06.2011), claims; paragraphs [0012], [0030] to [0032], [0033] to [0037] (Family: none)	1-15
Y	JP 2011-254022 A (Kaneka Corp.), 15 December 2011 (15.12.2011), claims; paragraphs [0014], [0029] to [0031], [0032] to [0037] (Family: none)	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
24 May 2016 (24.05.16)	31 May 2016 (31.05.16)
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/JP2016/059664

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2014-237813 A (Unitika Ltd.), 18 December 2014 (18.12.2014), entire text (Family: none)	1-15
A	JP 2013-221124 A (Tosoh Corp.), 28 October 2013 (28.10.2013), entire text (Family: none)	1-15
A	JP 2011-102350 A (Kaneka Corp.), 26 May 2011 (26.05.2011), entire text (Family: none)	1-15

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０５９６６４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L23/08(2006.01)i, C08L23/26(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, C08L101/12(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/04(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L1/00-101/14, C08K3/00-13/08, C08C19/00-19/44, C08F6/00-246/00, C08F301/00, C08F251/00-283/00, C08F283/02-289/00, C08F291/00-297/08, C09K3/10, H01L51/50, H05B33/04, 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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６年

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

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	JP 2008-222896 A (星光ＰＭＣ株式会社) 2008.09.25, 特許請求の範囲、段落［0030］～［0031］、［0051］～［0052］、［0107］、実施例 (ファミリーなし)	1-15
Y	JP 2011-124458 A (株式会社カネカ) 2011.06.23, 特許請求の範囲、段落[0012]、[0030]～[0032]、[0033]～［0037］ (ファミリーなし)	1-15

☑　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	国際調査報告の発送日
２４．０５．２０１６	３１．０５．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
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）　４Ｊ　５０８０
柳本　航佑
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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
Y	JP 2011-254022 A (株式会社カネカ) 2011.12.15, 特許請求の範囲、段落[0014]、[0029]～[0031]、[0032]～[0037] (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2014-237813 A (ユニチカ株式会社) 2014.12.18, 全文 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2013-221124 A (東ソー株式会社) 2013.10.28, 全文 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2011-102350 A (株式会社カネカ) 2011.05.26, 全文 (ファミリーなし)	1-15