

(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1月21日(21.01.2016)



(10) 国際公開番号
WO 2016/010043 A1

- (51) 国際特許分類:
C09J 127/12 (2006.01) *C09J 11/06* (2006.01)
C08F 216/14 (2006.01) *H01L 33/58* (2010.01)
C09J 11/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/070172
- (22) 国際出願日: 2015年7月14日(14.07.2015)
- (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 2014-144975 2014年7月15日(15.07.2014) JP
- (71) 出願人: 旭硝子株式会社 (ASAHI GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 中山 史子 (NAKAYAMA, Fumiko); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 坂根 好彦 (SAKANE, Yoshihiko); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 伊藤 昌宏 (ITO, Masahiro); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 畑中 百紀 (HATANAKA, Yuki); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5

番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 小柳 篤史 (KOYANAGI, Atsushi); 〒9630215 福島県郡山市待池台1-8 A G Cエレクトロニクス株式会社内 Fukushima (JP).

(74) 代理人: 泉名 謙治, 外 (SENMYO, Kenji et al.); 〒1010035 東京都千代田区神田紺屋町1-7番地 S I A神田スクエア4階 Tokyo (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.

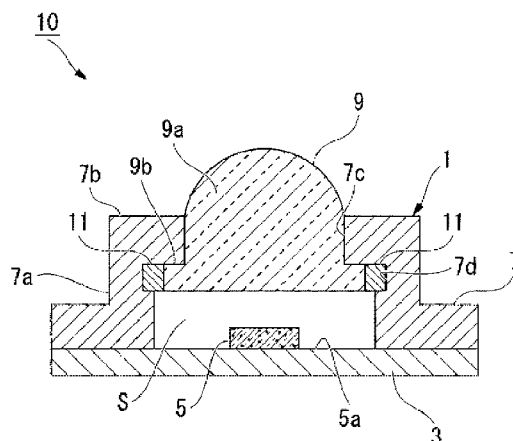
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,

[続葉有]

(54) Title: ADHESIVE FOR ULTRAVIOLET-LIGHT-EMITTING DEVICE, AND ULTRAVIOLET-LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 紫外線発光装置用接着剤および紫外線発光装置

[図1]



(57) Abstract: Provided is an adhesive for an ultraviolet-light-emitting device, the adhesive being used in an ultraviolet-light-emitting device which uses ultraviolet rays having a wavelength of 200-400 nm as a light source, and the adhesive being capable of bonding a member comprising a fluoropolymer having a fluorine-containing alicyclic structure with excellent adhesion, and not being prone to decreased adhesion even when exposed to heat or the ultraviolet rays. An adhesive for forming a bonded part in an ultraviolet-light-emitting device, the adhesive comprising either of an adhesive (A) and an adhesive (B) which include a fluoropolymer having a fluorine-containing alicyclic structure. Adhesive (A): an adhesive in which the glass transition temperature of the fluoropolymer is 30-100°C, and which does not include an ultraviolet-shielding agent. Adhesive (B): an adhesive including the fluoropolymer and an ultraviolet-shielding agent.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2016/010043 A1

MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, 添付公開書類:
TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

波長 200～400 nm の紫外線を光源とする紫外線発光装置に用いられる、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーからなる部材を、優れた密着性で接着でき、前記紫外線や熱に曝されても密着性が低下しにくい紫外線発光装置用接着剤の提供。紫外線発光装置の接着部を形成するための接着剤であって、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーを含む下記接着剤 (A) または下記接着剤 (B) のいずれかからなる、接着剤。接着剤 (A) : 前記フルオロポリマーのガラス転移温度が 30～100℃であり、かつ、紫外線遮断剤を含まない接着剤。接着剤 (B) : 前記フルオロポリマーと紫外線遮断剤とを含む接着剤。

明 細 書

発明の名称：紫外線発光装置用接着剤および紫外線発光装置

技術分野

[0001] 本発明は、波長200～400nmの紫外線を光源とする紫外線発光装置に用いられる接着剤および該接着剤を用いた紫外線発光装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、波長200～400nmの紫外線を放出する発光ダイオード（以下、「LED」ともいう。）が医療用殺菌やセンサー等の用途に使用される。該LEDとしては、たとえば、基板と、基板表面に実装された発光チップと、基板上に発光チップを囲むように配置された枠状の支持台と、発光チップの上方に支持台の開口を塞ぐように配置された光学部材（レンズ、透光窓等）とを備えるものが知られている。支持台と光学部材とは、通常、接着剤を用いて接着される。

[0003] 波長400nm以下の紫外線が放出されるLEDに用いられる光学部材には、波長400nm以下の紫外線に対する透明性および耐光性が求められる。そのため、光学部材の材料としては通常、石英が用いられる。しかし、石英はガラス転移温度が高く、射出成形が困難なため、レーザ加工でレンズ等の形状に成形される。そのため、石英製の光学部材は生産性が悪い。そこで、含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーをレンズ等の光学部材に用いる技術が提案されている（たとえば特許文献1～2）。含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーは、石英に比べて熔融温度が低く、熔融成形等の加工性に優れる。また、波長400nm以下の紫外線に対する透明性、耐光性にも優れる。

[0004] 含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーを、光学部材用の接着剤に用いることも提案されている。

たとえば前記特許文献2では、特定のA群から選択されたホモポリマーまたはB、C、D群からのコポリマーであるフルオロポリマーを接着剤組成物

の成分として用いることが提案されている。

特許文献3では、ペルフルオロアリルビニルエーテルの環化重合により得られるポリマーやペルフルオロブテニルビニルエーテルの環化重合により得られるポリマーを含む接着剤が、石英製のレンズの貼り合わせに使用されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許第2 5 2 6 6 4 1号公報

特許文献2：特表2 0 0 4－5 3 6 1 7 1号公報

特許文献3：特開平2－8 4 4 5 6号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献2に記載の接着剤から形成される接着部は、光学部材との密着性が不十分であり、光学部材が支持台等から剥離する懸念がある。また、該フルオロポリマーは、主鎖に $-CH_2-$ を有しているため、波長4 0 0 nm以下の紫外線に対する耐光性や耐熱性が不十分である。波長4 0 0 nm以下の光や熱に長期に渡って曝されると、劣化、分解が起こり、HF等の酸性の分解ガスによる周辺機器の腐食、ダメージが懸念される。

特許文献3に記載の接着剤においては、本発明者によれば、光学素子や光学部材の種類によっては、密着性が不十分になることがある。

[0007] 本発明は、波長2 0 0～4 0 0 nmの紫外線を光源とする紫外線発光装置に用いられる、含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーからなる部材を、優れた密着性で接着でき、前記紫外線や熱に曝されても密着性が低下しにくい紫外線発光装置用接着剤を提供することを目的とする。

本発明は、波長2 0 0～4 0 0 nmの紫外線を光源とし、含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーからなる部材が優れた密着性で接着され、前記紫外線や熱に曝されても前記部材の密着性が低下しにくい紫外線発光装置を提供

することを他の目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、以下の〔１〕～〔１４〕の構成を有する紫外線発光装置用接着剤および紫外線発光装置を提供する。

〔１〕 下記紫外線発光装置の接着部を形成するための接着剤であって、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーを含む下記接着剤（Ａ）または下記接着剤（Ｂ）のいずれかからなることを特徴とする接着剤。

紫外線発光装置：波長２００～４００ｎｍの紫外線を発生させる発光素子と、前記発光素子から発生する紫外線が透過する光学部材と、前記発光素子と前記光学部材とを接着する、接着剤から形成される接着部と、を備える。

接着剤（Ａ）：前記フルオロポリマーのガラス転移温度が３０～１００℃であり、かつ、紫外線遮断剤を含まない接着剤。

接着剤（Ｂ）：前記フルオロポリマーと紫外線遮断剤とを含む接着剤。

[0009] 〔２〕 前記接着剤（Ｂ）における前記フルオロポリマーのガラス転移温度が３０～１００℃である、〔１〕の接着剤。

〔３〕 前記接着剤（Ｂ）における紫外線遮断剤の含有量が、前記フルオロポリマーに対して０．１～２０質量％である、〔１〕または〔２〕の接着剤。

〔４〕 前記接着剤（Ｂ）における紫外線遮断剤が無機粒子および有機粒子からなる群から選択される少なくとも１種である、〔１〕～〔３〕のいずれかの接着剤。

〔５〕 前記フルオロポリマーが、側鎖または主鎖末端に反応性官能基を有し、該反応性官能基を有する部分を除いて炭素原子に結合した水素原子を有しないフルオロポリマーである、〔１〕～〔４〕のいずれかの接着剤。

[0010] 〔６〕 前記光学材料が含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーから形成されている、〔１〕～〔５〕のいずれかの接着剤。

〔７〕 前記光学材料中のフルオロポリマーのガラス転移温度が、前記接着剤中のフルオロポリマーのガラス転移温度以上である、〔６〕の接着剤。

〔 8 〕 前記光学材料中のフルオロポリマーのガラス転移温度が 1 0 0 ～ 1 8 0 ° C である、〔 6 〕 または〔 7 〕 の接着剤。

[0011] 〔 9 〕 前記含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーが、含フッ素脂肪族環構造を有する単位 (a) を有するポリマーである、〔 1 〕 ～〔 8 〕 のいずれかの接着剤。

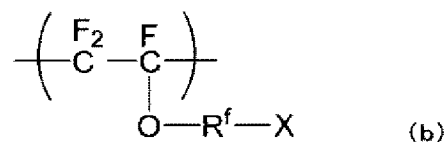
〔 1 0 〕 前記単位 (a) における含フッ素脂肪族環の環を構成する炭素原子の少なくとも 1 つが、ポリマーの主鎖を構成する炭素原子である、〔 9 〕 の接着剤。

〔 1 1 〕 前記単位 (a) が、炭素原子に結合した水素原子を有しない単位である、〔 9 〕 または〔 1 0 〕 の接着剤。

〔 1 2 〕 前記単位 (a) が、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位である、〔 9 〕 ～〔 1 1 〕 のいずれかの接着剤。

[0012] 〔 1 3 〕 前記ガラス転移温度が 3 0 ～ 1 0 0 ° C のフルオロポリマーが、前記単位 (a) と下式 (b) で表される単位 (b) とを有し、前記単位 (a) と前記単位 (b) との合計の含有量が、全単位の合計に対し 5 0 ～ 1 0 0 モル % であるフルオロポリマーである、〔 9 〕 ～〔 1 2 〕 のいずれかの接着剤。

[化1]



(ただし、 R^f は、エーテル性酸素原子を有してもよいペルフルオロアルキレン基であり、 X は、 COOH 、 COOR 、 SO_2F 、 SO_3R または SO_3H であり、 R は、炭素数 1 ～ 5 のアルキル基である。)

[0013] 〔 1 4 〕 波長 2 0 0 ～ 4 0 0 n m の紫外線を発生する発光素子、および、波長 2 0 0 ～ 4 0 0 n m の紫外線が透過する光学部材、を有する紫外線発光装置であって、

記発光素子と前記光学部材とは、〔 1 〕 ～〔 1 3 〕 の接着剤から形成され

る接着部で接着されることを特徴とする紫外線発光装置。

発明の効果

[0014] 本発明の紫外線発光装置用接着剤は、波長200～400nmの紫外線を光源とする紫外線発光装置に用いられる、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマー等からなる部材を、優れた密着性で接着でき、前記紫外線や熱に曝されても密着性が低下しにくい。

本発明の紫外線発光装置は、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマー等からなる部材が優れた密着性で接着され、波長200～400nmの紫外線や熱に曝されても前記部材の密着性が低下しにくい。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明における紫外線発光装置の一例を示す概略断面図である。

[図2]本発明における紫外線発光装置の他の一例を示す概略断面図である。

[図3]本発明における紫外線発光装置の他の一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下の用語の定義は、本明細書および請求の範囲にわたって適用される。

ポリマーの「単位」は、単量体が重合することによって形成された、該単量体に由来する、ポリマーの構成部分を示す。単位は、重合反応によって直接形成された単位であってもよく、重合反応によって得られた重合体を化学変換することによって該単位の一部の構造が別の構造に変換された単位であってもよい。

「含フッ素脂肪族環構造」とは、環の主骨格を構成する炭素原子の少なくとも一部に、フッ素原子またはフッ素含有基が結合している脂肪族環構造を意味する。フッ素含有基としては、ペルフルオロアルキル基、ペルフルオロアルコキシ基、 $=CF_2$ 等が挙げられる。該環の主骨格を構成する炭素原子の一部に、含フッ素基以外の置換基が結合していてもよい。

「脂肪族環構造」とは、芳香族性を有さない飽和または不飽和の環構造を意味する。

「エーテル性酸素原子」とは、炭素－炭素原子間に1個存在する酸素原子

($-\text{C}-\text{O}-\text{C}-$)である。

「ペルフルオロアルキル基」とは、アルキル基の水素原子のすべてがフッ素原子に置換された基である。「ペルフルオロアルキレン基」とは、アルキレン基の水素原子のすべてがフッ素原子に置換された基である。

「ペルフルオロポリマー」とは、炭素原子に結合した水素原子を有しない含フッ素ポリマーをいう。

「ガラス転移温度」（以下、「 T_g 」ともいう。）とは、JIS K 7121：2012年版に準拠して測定される中間点ガラス転移温度（ T_{mg} ）を意味する。

本明細書においては、式（１）で表される化合物を「化合物（１）」とも記し、式（１）で表される単位を「単位（１）」とも記す。他の式で表される化合物、単位等についても同様に記す。

[0017] 〔接着剤〕

本発明の接着剤は、下記紫外線発光装置の接着部を形成するための接着剤であって、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーを含む下記接着剤（Ａ）または下記接着剤（Ｂ）のいずれかからなることを特徴とする接着剤。

紫外線発光装置：波長200～400nmの紫外線を発生させる発光素子と、前記発光素子から発生する紫外線が透過する光学部材と、前記発光素子と前記光学部材とを接着する、接着剤から形成される接着部と、を備える。

接着剤（Ａ）：前記フルオロポリマーのガラス転移温度が30～100℃であり、かつ、紫外線遮断剤を含まない接着剤。

接着剤（Ｂ）：前記フルオロポリマーと紫外線遮断剤とを含む接着剤。

[0018] 前記発光素子としては、LED素子、半導体レーザ、低圧水銀灯、高圧水銀灯、メタルハライドランプ、キセノンランプ等が挙げられる。前記光学部材としては、レンズ、光ファイバ、透光窓、プリズム、導光板、樹脂ファイバ、光学ミラー、回折格子等が挙げられる。光学部材は、フルオロポリマーからなるかまたは少なくとも接着部に接する表面はフルオロポリマーからな

ることが好ましい。発光素子の接着部に接する表面部分もフルオロポリマーからなっているてもよい。発光素子や光学部材を形成するこのようなフルオロポリマーを、以下「ポリマー（Ⅰ）」という。

接着部が接する発光素子の表面および光学部材の表面は種々の部品からなる。該表面を形成する材料としては、光学特性に優れかつ接着部との親和性に優れる点から、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーが好ましい。

[0019] （接着剤（A））

接着剤（A）は、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーであって、ガラス転移温度が30～100℃であるポリマー（以下、「ポリマー（ⅠⅠ）」ともいう。）を有する。接着剤（A）は、必要に応じて、ポリマー（ⅠⅠ）および紫外線遮断剤以外の成分をさらに含んでもよい。接着剤（A）は、必要に応じて、溶媒をさらに含んでもよい。

接着剤（A）は、接着剤（A）中のポリマー（ⅠⅠ）のT_g以上の温度でベークすると、接着剤（A）中のポリマー（ⅠⅠ）が低粘性化し、発光素子または発光部材の表面の凹凸に浸透し、アンカー効果が得られる。

[0020] 従来、含フッ素脂肪族環構造を有するポリマーの主鎖末端にカルボキシ基、アルコキシカルボニル基等の反応性官能基を導入することで、他の材料との密着性を高める手法は提案されている。これらの反応性官能基は、初期の密着性の向上には有効であるが、波長200～400nmの紫外線に曝されると分解し、反応性官能基による密着性向上効果は失われる。しかし、接着剤（A）にあっては、アンカー効果等の物理的作用によって他の材料からなる部材と密着するため、反応性官能基が波長200～400nmの紫外線により分解しても、優れた密着性が維持される。

[0021] （ポリマー（ⅠⅠ））

ポリマー（ⅠⅠ）としては、下記単位（a）と下記単位（b）とを有するポリマーが好ましい。必要に応じて、単位（a）および単位（b）以外の単位（以下、「単位（c）」ともいう。）をさらに有してもよい。ポリマー（

11) が単位 (a) を有することで、後述するポリマー (1) からなる光学部材の表面との親和性に優れる。ポリマー (11) が単位 (b) を有することで、ポリマー (11) 中の反応性官能基が発光素子または発光部材を形成する材料と化学反応する。そのため、発光素子と光学部材との間に初期の優れた密着性が得られる。

ポリマー (11) は、接着性を高める反応性官能基の存在を除いて、ペルフルオロポリマーであることが好ましい。したがって、ポリマー (11) を構成する単位は、反応性官能基を有する単量体に基づく単位を除いて、ペルフルオロ単量体（すなわち、炭素原子に結合した水素原子を有しない含フッ素単量体）に基づく単位（以下、「ペルフルオロ単位」ともいう。）であることが好ましい。反応性官能基を有する含フッ素単量体に基づく単位についても、その反応性官能基の部分（たとえば、単位 (b) における X）を除いて、炭素原子に結合した水素原子を有しないことが好ましい。

反応性官能基については後で詳述する。

[0022] <単位 (a)>

単位 (a) は、含フッ素脂肪族環構造を有する単位である。

単位 (a) はペルフルオロ単位であることが好ましい。

含フッ素脂肪族環構造における含フッ素脂肪族環は、環骨格が炭素原子のみから構成される炭素環構造のものであってもよく、環骨格に炭素原子以外の原子（ヘテロ原子）を含む複素環構造のものであってもよい。該ヘテロ原子としては酸素原子、窒素原子等が挙げられる。

含フッ素脂肪族環の環骨格を構成する原子の数は、4～7個が好ましく、5または6個が特に好ましい。すなわち、脂肪族環は4～7員環であることが好ましく、5または6員環が特に好ましい。

[0023] 単位 (a) における含フッ素脂肪族環構造は、ポリマー (11) の主鎖を構成してもよく、側基に含まれてもよい。接着部の機械的強度と化学的安定性に優れる点で、ポリマー (11) の主鎖を構成することが好ましい。

含フッ素脂肪族環構造が「主鎖を構成する」とは、含フッ素脂肪族環構造

の環骨格を構成する炭素原子のうち、少なくとも1つが、ポリマーの主鎖を構成する炭素原子であることを意味する。重合性二重結合に由来する2個の炭素原子がポリマーの主鎖を構成することより、言い換えれば、含フッ素脂肪族環構造の環を構成する炭素原子の1個または隣接する2個が1つの重合性二重結合に由来する炭素原子であることを意味する。

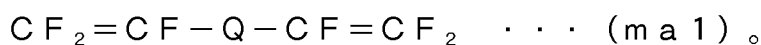
たとえば、単位(a)が、モノエン系単量体が付加重合することによって形成されたものである場合、重合性二重結合に由来する2個の炭素原子が主鎖を構成し、その2個の炭素原子が環骨格の隣接する2個の炭素原子であるか、または、その2個の炭素原子のうちの1個が環骨格の炭素原子である。また、単位(a)が、ジエン系単量体が環化重合することによって形成されたものである場合、2つの重合性二重結合に由来する合計4個の炭素原子が主鎖を構成し、その4個の炭素原子のうちの2～4個が環骨格を構成する炭素原子である。

[0024] 単位(a)のうち、含フッ素脂肪族環構造が主鎖を構成するものとしては、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位、環状含フッ素単量体に基づく単位等が挙げられる。

[0025] ジエン系含フッ素単量体とは、2個の重合性二重結合およびフッ素原子を有する単量体である。ジエン系含フッ素単量体の場合、環化重合により単位(a)が形成される。

重合性二重結合としては、特に限定されないが、ビニル基、アリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基が好ましい。これらの重合性二重結合においては、炭素原子に結合した水素原子の一部または全部がフッ素原子で置換されていてもよい。

ジエン系含フッ素単量体としては、下記化合物(m a 1)が好ましい。



(ただし、Qは、フッ素原子の一部がフッ素原子以外のハロゲン原子で置換されていてもよく、エーテル性酸素原子を有していてもよい炭素数1～6のペルフルオロアルキレン基である。)

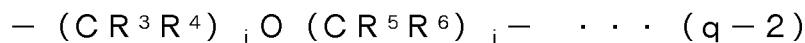
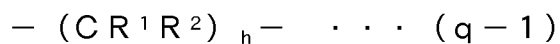
[0026] 式 (ma1) 中、Qにおけるペルフルオロアルキレン基の炭素数は1～6であり、1～5が好ましく、1～3が特に好ましい。該ペルフルオロアルキレン基は、直鎖状または分岐鎖状が好ましく、直鎖状が特に好ましい。

該ペルフルオロアルキレン基は、フッ素原子の一部がフッ素原子以外のハロゲン原子で置換されていてもよい。フッ素原子以外のハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

該ペルフルオロアルキレン基は、エーテル性酸素原子を有していてもよい。

Qとしては、エーテル性酸素原子を有するペルフルオロアルキレン基が好ましい。その場合、該ペルフルオロアルキレン基におけるエーテル性酸素原子は、該ペルフルオロアルキレン基の一方の末端に存在していてもよく、該ペルフルオロアルキレン基の両末端に存在していてもよく、該ペルフルオロアルキレン基の炭素原子間に存在していてもよい。環化重合性の点から、該ペルフルオロアルキレン基の一方の末端に存在していることが好ましい。

[0027] Qは下式 (q-1) および下式 (q-2) で表される基が好ましい。

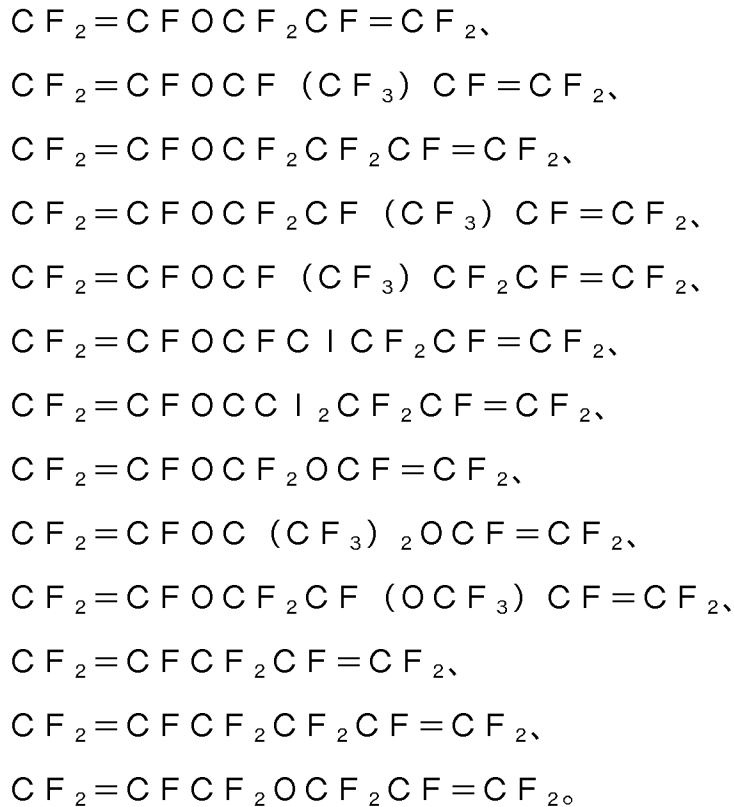


(ただし、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 および R^6 は、それぞれ独立に、フッ素原子、塩素原子、トリフルオロメチル基またはトリフルオロメトキシ基である。 h は2～4の整数であって複数の R^1 および R^2 はそれぞれ異なっているもよく、 i および j はそれぞれ0～3の整数であって、 $i+j$ は1～3の整数であり、 i が2または3の場合複数の R^3 および R^4 はそれぞれ異なっているもよく、 j が2または3の場合複数の R^5 および R^6 はそれぞれ異なっているもよい。)

h は2または3であることが好ましく R^1 および R^2 はすべてフッ素原子であるか1つまたは2つを除いてすべてフッ素原子であることが好ましい。 i は0であってかつ j は1または2であることが好ましく、 R^5 および R^6 はすべてフッ素原子であるか1つまたは2つを除いてすべてフッ素原子であるこ

とが好ましい。

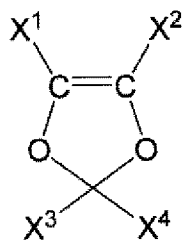
[0028] 化合物 (ma 1) の具体例としては、下記化合物が挙げられる。



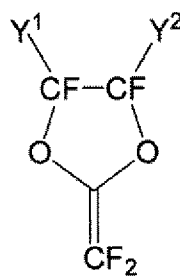
[0029] 環状含フッ素単量体としては、含フッ素脂肪族環を含み、該含フッ素脂肪族環を構成する炭素原子間に重合性二重結合を有する単量体、含フッ素脂肪族環を含み、該含フッ素脂肪族環を構成する炭素原子と含フッ素脂肪族環外の炭素原子との間に重合性二重結合を有する単量体等が挙げられる。

環状含フッ素単量体としては、下記の化合物 (ma 2) または化合物 (ma 3) が好ましい。

[0030] [化2]



(ma2)



(ma3)

(ただし、 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 はそれぞれ独立に、フッ素原子、エーテル性酸素原子が介在してもよいペルフルオロアルキル基、またはエーテル性酸素原子が介在してもよいペルフルオロアルコキシ基であり、 X^3 および X^4 は相互に結合して環を形成してもよい。)

[0031] 式 (ma2) および (ma3) 中、 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 におけるペルフルオロアルキル基の炭素数は、1～7が好ましく、1～5がより好ましく、1～4が特に好ましい。該ペルフルオロアルキル基は、直鎖状または分岐鎖状が好ましく、直鎖状が特に好ましい。該ペルフルオロアルキル基としては、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基等が好ましく、トリフルオロメチル基が特に好ましい。

X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 におけるペルフルオロアルコキシ基としては、前記ペルフルオロアルキル基に酸素原子(—O—)が結合したものが挙げられ、トリフルオロメトキシ基が特に好ましい。

前記ペルフルオロアルキル基またはペルフルオロアルコキシ基の炭素数が2以上である場合、該ペルフルオロアルキル基またはペルフルオロアルコキシ基の炭素原子間にエーテル性酸素原子(—O—)が介在してもよい。

[0032] 式 (ma2) 中、 X^1 はフッ素原子であることが好ましい。

X^2 はフッ素原子、トリフルオロメチル基または炭素数1～4のペルフルオロアルコキシ基であることが好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメトキシ基が特に好ましい。

X^3 および X^4 はそれぞれ独立に、フッ素原子または炭素数1～4のペルフルオロアルキル基であることが好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメチル基が特に好ましい。

X^3 および X^4 は相互に結合して環を形成してもよい。前記環の環骨格を構成する原子の数は、4～7個が好ましく、5～6個であることがより好ましい。

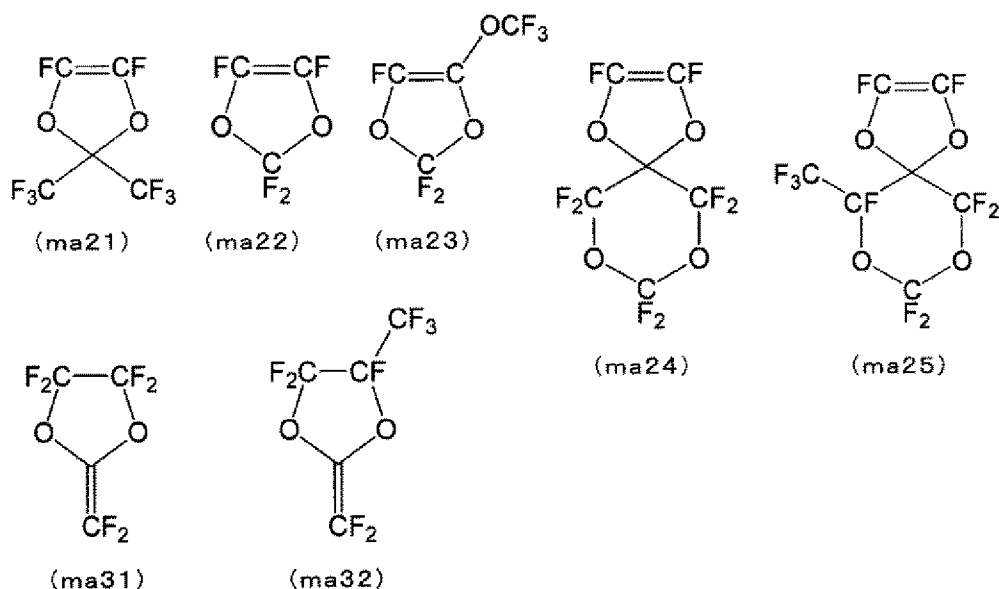
[0033] 式 (ma3) 中、 Y^1 および Y^2 はそれぞれ独立に、フッ素原子、炭素数1～4のペルフルオロアルキル基または炭素数1～4のペルフルオロアルコキシ

シ基が好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメチル基が特に好ましい。

[0034] 化合物 (ma 2) の好ましい具体例として、化合物 (ma 2 1) ~ (ma 2 5) が挙げられる。

化合物 (ma 3) の好ましい具体例として、化合物 (ma 3 1) ~ (ma 3 2) が挙げられる。

[0035] [化3]

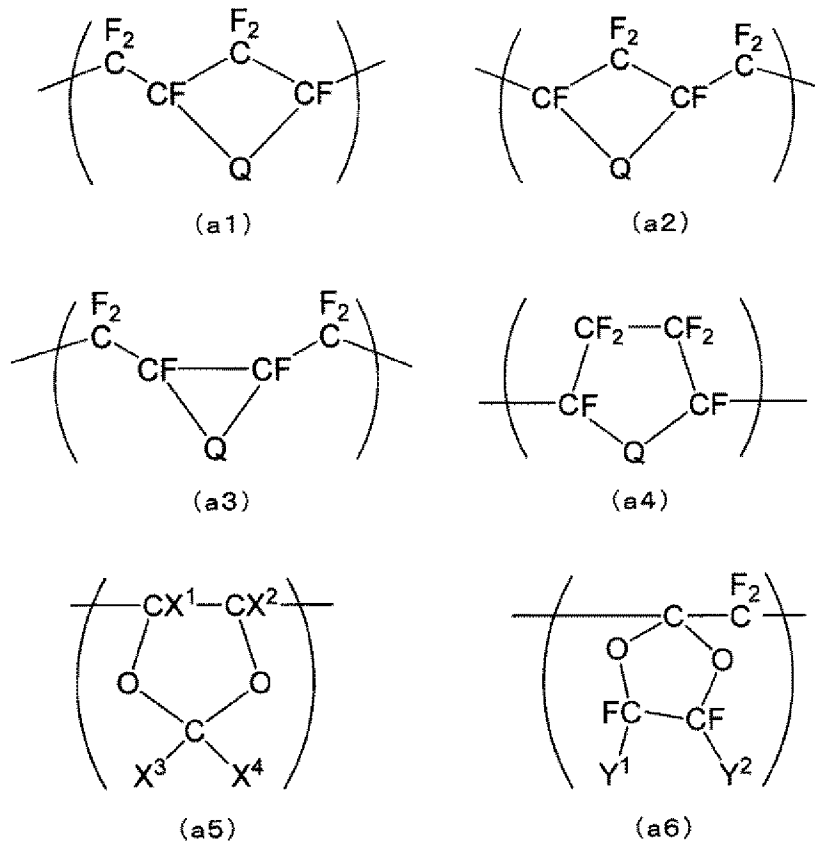


[0036] 単位 (a) としては、下記単位 (a 1) ~ (a 6) からなる群から選択される少なくとも1種が好ましい。

下記単位 (a 1) ~ (a 4) は化合物 (ma 1) の環化重合により形成された単位であり、化合物 (ma 1) の環化重合により下記単位 (a 1) ~ (a 4) の少なくとも1種が生成する。その際、下記単位 (a 1) ~ (a 4) のうち、脂肪族環の環骨格を構成する原子の数が5または6個となる構造の単位が生成しやすい。それらの単位の2種以上が含まれるポリマーが生成することもある。言い換えれば、化合物 (ma 1) としては、下記単位 (a 1) ~ (a 4) における、Q中の原子を含めた環骨格を構成する原子の数が5または6個となる構造の化合物 (ma 1) が好ましい。

下記単位 (a 5) は化合物 (ma 2) から形成された単位であり、下記単位 (a 6) は化合物 (ma 3) から形成された単位である。

[0037] [化4]



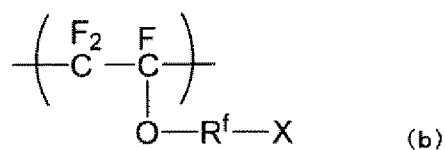
[0038] 単位 (a) としては、発光素子と光学部材とを接着する際に、ポリマー (I I) が、後述するポリマー (I) からなる光学部材の表面との親和性に優れる点、およびポリマー (I I) の化学的安定性に優れる点で、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位が好ましい。

ポリマー (I I) が有する単位 (a) は1種でも2種以上でもよい。

[0039] <単位 (b)>

単位 (b) は、下式 (b) で表される単位である。

[0040] [化5]



(ただし、 R^f は、エーテル性酸素原子を有してもよいペルフルオロアルキレン基であり、 X は、 COOH 、 COOR 、 SO_2F 、 SO_3R または SO_3H で

あり、Rは、炭素数1～5のアルキル基である。)

[0041] 式(b)中、R^fにおけるペルフルオロアルキレン基は、直鎖状または分岐鎖状が好ましい。該ペルフルオロアルキレン基の炭素数は、2～10が好ましく、2～7がより好ましく、2～5が特に好ましい。

該ペルフルオロアルキレン基はエーテル性酸素原子を有していてもよい。この場合、ペルフルオロアルキレン基中のエーテル性酸素原子の数は、1個でもよく2個以上でもよい。

R^fの具体例としては、下記のものが挙げられる。

—CF₂CF₂CF₂—、

—CF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂—、

—CF₂CF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂—、

—CF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂CF₂—。

[0042] COOR、SO₃RにおけるRのアルキル基は、直鎖状または分岐鎖状が好ましい。該アルキル基は、炭素数1～6のアルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。

Xとしては、COOCH₃、SO₂F、COOH、SO₃Hが好ましい。

[0043] 単位(b)としては、式中の—O—R^f—Xが下記のいずれかであるものが好ましい。

—OCF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂COOCH₃、

—OCF₂CF₂CF₂COOCH₃、

—OCF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂SO₂F、

—OCF₂CF₂CF₂COOH、

—OCF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂CF₂COOCH₃、

—OCF₂CF(CF₃)OCF₂CF₂SO₃H。

[0044] ポリマー(ⅠⅠ)が有する単位(b)は1種でも2種以上でもよい。

単位(b)は、CF₂=CF—O—R^f—Xを重合させることにより形成できる。

[0045] <単位(c)>

単位 (c) は、単位 (a) および単位 (b) 以外の他の単位である。

単位 (c) としては、単位 (a) 単位 (b) それぞれを形成する単量体と共重合可能な単量体に基づくものであればよく、特に限定されない。たとえば、重合性二重結合と反応性官能基とを有する単量体に基づく単位（ただし、単位 (b) を除く。）（以下、「単位 (c 1)」ともいう。）、テトラフルオロエチレン等の含フッ素オレフィンに基づく単位、含フッ素ビニルエーテルに基づく単位等が挙げられる。

重合性二重結合としては、 $\text{CF}_2=\text{CF}-$ 、 $\text{CF}_2=\text{CH}-$ 、 $\text{CH}_2=\text{CF}-$ 、 $\text{CFH}=\text{CF}-$ 、 $\text{CFH}=\text{CH}-$ 、 $\text{CF}_2=\text{C}<$ 、 $-\text{CF}=\text{CF}-$ 等が挙げられる。

単位 (c) としては、単位 (c 1) を除いて、ペルフルオロ単位であることが好ましい。単位 (c 1) の場合は、その反応性官能基の部分を除いて、炭素原子に結合した水素原子を有しないことが好ましい。

[0046] <組成>

ポリマー (11) 中の単位 (a) と単位 (b) との合計の含有量は、ポリマー (11) を構成する全単位の合計に対して 50～100モル%であり、75～100モル%が好ましく、85～100モル%が特に好ましい。単位 (a) と単位 (b) との合計の含有量が前記範囲の下限值以上であれば、ポリマー (11) がポリマー (1) からなる部材の表面との親和性、および接着剤から形成される接着部とポリマー (1) からなる部材との密着性に優れる。

[0047] ポリマー (11) 中の単位 (a) と単位 (b) とのモル比 (a/b) は、70/30～99/1であることが好ましく、80/20～99/1が特に好ましい。a/bが前記範囲内であれば、ポリマー (11) の T_g が後述の範囲内となりやすい。また、a/bが前記範囲の下限值以上であれば、発光素子と光学部材とを接着する際に、ポリマー (11) が、ポリマー (1) からなる部材の表面との親和性に優れ、接着剤から形成される接着部とポリマー (1) からなる部材との間の密着性が優れる。また、a/bが前記範囲の上

限值以下であれば、ポリマー（１）以外の他の材料（金属、合金等）からなる部材を接着する場合に、初期（接着直後）の密着性がより優れる。

[0048] <反応性官能基>

反応性官能基は、ベーク等を行った際に、反応性官能基を有するポリマーの分子間、または該ポリマー以外の他の物質（金属、合金等）と反応して化学結合（水素結合、共有結合等）を形成し得る反応性を有する基を意味する。

反応性官能基としては、たとえば、カルボキシ基、酸ハライド基、アルコキシカルボニル基、カルボニルオキシ基、カーボネート基、スルホ基、ホスホノ基、ヒドロキシ基、チオール基、シラノール基等が挙げられる。

[0049] ポリマー（１１）は、反応性官能基として少なくとも、単位（ｂ）に由来するもの（ $-O-R^f-X$ における X ）を有する。

ポリマー（１１）は、単位（ｂ）に由来するもの以外の他の反応性官能基を有してもよく、有しなくてもよい。他の反応性官能基は、ポリマー（１１）の主鎖末端に結合していてもよく、側基に含まれてもよい。たとえば前出の単位（ｃ１）を有する場合、他の反応性官能基を側基に含むものとなる。

[0050] < T_g >

ポリマー（１１）の T_g （以下、「 $T_{g,11}$ 」ともいう。）は、 $30\sim100^\circ\text{C}$ であり、 $40\sim95^\circ\text{C}$ が好ましく、 $60\sim90^\circ\text{C}$ が特に好ましい。

$T_{g,11}$ が前記範囲の上限値以下であれば、接着部が優れたタック性を有する。また、ポリマー（１）や他の材料からなる部材を接着する際のベーク（たとえば 100°C 以上のベーク）で接着剤の粘性が下がり、部材の表面の凹凸に接着剤が浸透し、接着部と部材との間の接着にアンカー効果が得られる。これらタック性やアンカー効果により、前記の部材と接着部とが優れた密着性を有する。該密着性は物理的作用（タック性、アンカー効果）によるものであるため、波長 $200\sim400\text{ nm}$ の紫外線に曝された場合でも密着性が低下しにくい。

$T_{g,11}$ が前記範囲の下限値以上であれば、LED等の紫外線発光装置を構成

する部材に求められる耐熱性や耐ヒートサイクル性を十分に有する。たとえば80℃以上の高温条件下や-40～80℃のヒートサイクル条件下でも、接着部が溶融しにくく、接着している部材が剥離しにくい。

[0051] T_{g1} は、前記の範囲内であることに加えて、ポリマー(1)の T_g (以下、「 T_{g1} 」ともいう。)以下であることが好ましく、($T_{g1}-50^{\circ}\text{C}$)以上 T_{g1} 以下がより好ましく、($T_{g1}-50^{\circ}\text{C}$)以上($T_{g1}-10^{\circ}\text{C}$)以下が特に好ましい。 T_{g1} が T_g 以下であれば、発光素子と光学部材とを接着する際に、ポリマー(11)が、ポリマー(1)からなる部材の表面との親和性に優れ、接着部とポリマー(1)からなる部材との間の密着性に優れる。

[0052] T_{g1} は、ポリマー(11)中の単位(b)の含有量、単位(a)の種類等によって調整できる。たとえば単位(b)の含有量が多いほど、 T_{g1} が低くなる傾向がある。単位(a)が単位(a1)や単位(a2)である場合と、単位(a3)である場合とを比べると、単位(a)が単位(a1)や単位(a2)である場合の方が、 T_{g1} が低くなる傾向がある。

[0053] <分子量>

ポリマー(11)の質量平均分子量は、1万～15万が好ましく、3万～13万がより好ましく、3万～12万が特に好ましい。ポリマー(11)の質量平均分子量が前記範囲の下限値以上であれば、接着部の機械的強度に優れ、上限値以下であれば、溶媒への溶解性に優れる。

ポリマー(11)の平均分子量は、ゲル透過クロマトグラフィにより測定される。

[0054] 接着剤(A)中のポリマー(11)の含有量は、接着剤(A)中の固形分に対して50質量%以上が好ましく、70質量%以上がより好ましく、80質量%以上が特に好ましい。ポリマー(11)の含有量が前記の下限値以上であれば、発光素子と光学部材とを接着する際に、ポリマー(11)が、ポリマー(1)からなる部材の表面との親和性に優れ、接着部とポリマー(1)からなる部材との間の密着性に優れる。

接着剤(A)中の固形分に対するポリマー(11)の割合の上限は特に限

定されず、100質量%であってもよい。任意に配合される紫外線遮断剤以外の成分等の含有量に応じて適宜設定できる。

なお、接着剤(A)の固形分濃度は、接着剤の塗布方法、形成しようとする塗膜の厚さ等に応じて適宜設定すればよく、1~30質量%が好ましく、1~20質量%が特に好ましい。

[0055] (他の成分)

ポリマー(11)および紫外線遮断剤以外の成分としては、本発明の効果を損なわないものであれば特に限定されない。たとえば、屈折率を上げるための SiO_2 、 ZrO_2 、 TiO_2 等のゾル、接着性を向上するためのアミノシランやエポキシシラン等が挙げられる。これらはいずれか1種を単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。

なお、ポリマー(1)~(111)、溶媒および紫外線遮断剤以外の成分を、以下、「他の成分」ともいう。

材料(A)中の他の成分の含有量は、本発明の効果を損なわない範囲で、他の成分の種類に応じて適宜設定できる。

[0056] (溶媒)

材料(A)における溶媒としては、少なくともポリマー(11)を溶解する溶媒が用いられる。材料(A)が紫外線遮断剤として無機粒子および有機粒子からなる群から選択される少なくとも1種を含む場合、ポリマー(11)を溶解する溶媒は、紫外線遮断剤を分散する分散媒としての機能を有してもよい。

溶媒としては、プロトン性溶媒、非プロトン性溶媒等が挙げられる。「プロトン性溶媒」とは、プロトン供与性を有する溶媒である。「非プロトン性溶媒」とは、プロトン供与性を有さない溶媒である。

[0057] プロトン性溶媒としては、以下に示すプロトン性非含フッ素溶媒、プロトン性含フッ素溶媒等が挙げられる。

メタノール、エタノール、1-プロパノール、イソプロピルアルコール、1-ブタノール、2-ブタオール、t-ブタノール、ペンタノール、ヘキサ

ノール、1-オクタノール、2-オクタノール、エチレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコール、乳酸メチル等のプロトン性非含フッ素溶媒。

2-（ペルフルオロオクチル）エタノール等の含フッ素アルコール、含フッ素カルボン酸、含フッ素カルボン酸のアミド、含フッ素スルホン酸等のプロトン性含フッ素溶媒。

[0058] 非プロトン性溶媒としては、以下に示す非プロトン性非含フッ素溶媒、非プロトン性含フッ素溶媒等が挙げられる。

ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、デカリン、アセトン、シクロヘキサノン、2-ブタノン、ジメトキシエタン、モノメチルエーテル、酢酸エチル、酢酸ブチル、ジグリム、トリグリム、プロピレングリコールモノメチルエーテルモノアセテート（PGMEA）、N，N-ジメチルホルムアミド（DMF）、N，N-ジメチルアセトアミド（DMA）、N-メチルピロリドン、テトラヒドロフラン、アニソール、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、メシチレン、テトラリン、メチルナフタレン等の非プロトン性非含フッ素溶媒。

1，4-ビス（トリフルオロメチル）ベンゼン等のポリフルオロ芳香族化合物、ペルフルオロトリブチルアミン等のポリフルオロトリアルキルアミン化合物、ペルフルオロデカリン等のポリフルオロシクロアルカン化合物、ペルフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）等のポリフルオロ環状エーテル化合物、ペルフルオロポリエーテル、ポリフルオロアルカン化合物、ハイドロフルオロエーテル（HF E）等の非プロトン性含フッ素溶媒。

[0059] これらの溶媒は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。またこれらの他にも広範な化合物が使用できる。

これらのうち、ポリマー（11）の溶解に用いる溶媒としては、ポリマー

(11)の溶解度が大きく、良溶媒である点で、非プロトン性含フッ素溶媒が好ましい。

溶媒として、ポリマー(1)からなる部材等の、接着しようとする部材を溶解する溶媒を用いることも好ましい。これにより、該部材と接着部との間の密着性がより優れる。

溶媒の沸点は、接着剤(1)を塗布した際に均一な塗膜を形成しやすいことから、65～220℃が好ましく、70～220℃が特に好ましい。

溶媒の含有量は、接着剤(A)の固形分濃度に応じて設定される。

[0060] (接着剤(A)の調製方法)

接着剤材料(A)は、ポリマー(11)またはその溶液を得て、必要に応じて他の成分、溶媒等を混合することにより調製できる。

ポリマー(11)またはその溶液は、所望のものが市販されていればそれを用いてもよく、各種原料化合物から重合等の適当な方法により製造してもよい。たとえば、特許第2526641号公報等に記載された製造方法に準じてポリマー(11)を製造できる。

[0061] (接着剤(B))

接着剤(B)は、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマー(以下、接着剤(B)中に含まれる該フルオロポリマーを「ポリマー(111)」ともいう。)と紫外線遮断剤とを含む接着剤である。接着剤(B)が紫外線遮断剤を含むと、波長200～400nmの紫外線によるポリマー(111)の劣化や分解、それに伴う密着性の低下がより生じにくい。接着剤(B)がポリマー(111)と紫外線遮断剤を含むことで、接着部が波長200～400nmの紫外線を光源とする紫外線発光装置に用いられるポリマー(1)からなる部材を、他の材料からなる部材やポリマー(1)からなる他の部材に対し、優れた密着性で接着できる。また、該密着性が、波長200～400nmの紫外線や高温(たとえば50～90℃)に曝されても低下しにくく、耐光性や耐熱性にも優れる。

[0062] 上記の効果を奏する理由として、含フッ素脂肪族環構造を有するためにポ

リマー（１１１）がポリマー（１）からなる部材の表面との親和性に優れ、紫外線発光装置の光源からの波長２００～４００ｎｍの紫外線が紫外線遮断剤によって吸収および／または反射されるために、ポリマー（１１１）に照射される紫外線の量が少なくなり、紫外線によるポリマー（１１１）の主鎖や反応性官能基の分解が抑制されること等が挙げられる。

[0063] 接着剤（Ｂ）は、必要に応じて、ポリマー（１１１）および紫外線遮断剤以外の成分をさらに含んでもよい。

接着剤（Ｂ）は、必要に応じて、溶媒をさらに含んでもよい。

[0064] （ポリマー（１１１））

ポリマー（１１１）は、含フッ素脂肪族環構造を有する。

ポリマー（１１１）は、反応性官能基が存在する場合はその反応性官能基部分を除いて、ペルフルオロポリマーであることが好ましい。

含フッ素脂肪族環構造としては、ポリマー（１１）の単位（ａ）における含フッ素脂肪族環構造と同様のものが挙げられる。

ポリマー（１１１）としては、たとえば、前記単位（ａ）を有するフルオロポリマーが挙げられる。単位（ａ）としては、主鎖に含フッ素脂肪族環構造を有する単位が好ましく、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位、環状含フッ素単量体に基づく単位が特に好ましい。

ジエン系含フッ素単量体、環状含フッ素単量体はそれぞれ、単位（ａ）の説明で挙げたものと同様であり、好ましい態様も同様である。

ポリマー（１１１）は、単位（ａ）以外に、たとえば前述の単位（ｂ）、単位（ｃ）を有していてもよい。

[0065] 単位（ａ）としてジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位を有する場合、単位（ａ）の割合は、ポリマー（１１１）を構成する全単位の合計に対し、５０モル％以上が好ましく、７５モル％以上がより好ましく、１００モル％が特に好ましい。

単位（ａ）として環状含フッ素単量体に基づく単位を有する場合、単位（ａ）の割合は、ポリマー（１１１）を構成する全単位の合計に対し、２０モ

ル%以上が好ましく、40モル%以上がより好ましく、100モル%が特に好ましい。

なお、ジエン系含フッ素単量体と環状含フッ素単量体との共重合により得られる重合体は、環状含フッ素単量体に基づく単位を有するポリマーとして考える。

[0066] ポリマー(111)は、反応性官能基を有することが好ましい。

接着剤(B)が、ポリマー(1)からなる部材とポリマー(1)以外の他の材料からなる部材とを接着する場合や、ポリマー(1)が反応性官能基を有する場合、ポリマー(111)が反応性官能基を有すると、他の材料やポリマー(1)の反応性官能基と反応し、より優れた密着性が得られる。また、接着剤(B)が紫外線遮断剤を含むため、反応性官能基の紫外線による分解が生じにくく、反応性官能基による効果が長期にわたって発揮されやすい。

反応性官能基としては、前記と同様のものが挙げられる。

反応性官能基としては、カルボキシ基、酸ハライド基、アルコキシカルボニル基、カルボニルオキシ基、カーボネート基、スルホ基、ホスホノ基、ヒドロキシ基、チオール基、シラノール基およびアルコキシシリル基からなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、カルボキシ基またはアルコキシカルボニル基が特に好ましい。

反応性官能基は、ポリマー(111)の主鎖末端に結合していてもよく、側基に含まれてもよい。側基に含まれる場合には、前述のポリマー(11)中の単位(b)を含むポリマーであることが好ましい。その際、ポリマー(111)中の単位(a)と単位(b)との合計の含有量の好ましい範囲としては、ポリマー(11)と同様のものが挙げられる。製造しやすい点からは、主鎖末端に結合していることが好ましい。主鎖末端に反応性官能基が含まれる場合には、重合開始剤または連鎖移動剤として反応性官能基を有する化合物を使用して得られるポリマーであることが好ましい。

[0067] ポリマー(111)としては、反応性官能基を有しかつジエン系含フッ素

単量体の環化重合により形成された単位を有するポリマーが好ましく、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位からなり、主鎖末端に反応性官能基を有するポリマーが特に好ましい。

[0068] ポリマー (I I I) の T_g は、 $30 \sim 180^\circ\text{C}$ が好ましい。ポリマー (I I I) で説明したように、タック性やアンカー効果に優れる点からは、 $30 \sim 100^\circ\text{C}$ がより好ましく、 $40 \sim 95^\circ\text{C}$ がさらに好ましく、 $60 \sim 90^\circ\text{C}$ が特に好ましい。

[0069] (紫外線遮断剤)

紫外線遮断剤は、紫外線を吸収する機能および紫外線を反射する機能のいずれか一方または両方を有する添加剤である。

紫外線遮断剤としては、特に限定されず、公知のものを使用できる。接着剤の貯蔵安定性に優れる点では、無機粒子および有機粒子からなる群から選択される少なくとも1種が好ましい。

無機粒子および有機粒子からなる群から選択される少なくとも1種である場合の紫外線遮断剤の平均粒子径は、 $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.01 \sim 3 \mu\text{m}$ が特に好ましい。

[0070] 無機粒子としては、金属粒子、金属酸化物粒子、金属窒化物粒子、金属炭化物粒子、炭素同素体、ガラス粒子、セラミクス粒子、複酸化物粒子等が挙げられる。具体例としては、Al粒子、AlN粒子、 Al_2O_3 粒子、Ag粒子、Au粒子、BN粒子、 BaTiO_3 粒子、 Bi_2O_3 粒子、 CeO_2 粒子、CoO粒子、Cr粒子、 CrO_3 粒子、Cu粒子、CuO粒子、 Dy_2O_3 粒子、 Er_2O_3 粒子、 Eu_2O_3 粒子、Fe粒子、 Fe_2O_3 粒子、 Fe_2O_5 粒子、 Gd_2O_3 粒子、 Ho_2O_3 粒子、 In_2O_3 粒子、ITO粒子、 La_2O_3 粒子、 Lu_2O_3 粒子、MgO粒子、 Mn_3O_4 粒子、Mo粒子、 Nd_2O_3 粒子、Ni粒子、NiO粒子、Pd粒子、 Pr_6O_{11} 粒子、Pt粒子、 Sc_2O_3 粒子、Si粒子、SiC粒子、 Si_3N_4 粒子、 SiO_2 粒子、 Sm_2O_3 粒子、Sn粒子、 SnO_2 粒子、 SrTiO_3 粒子、Ta粒子、 Tb_4O_7 粒子、Ti粒子、TiC粒子、TiN粒子、 TiO_2 粒子、 Tm_2O_3 粒子、W粒子、WC粒子、Y

TiO_2 粒子、 Yb_2O_3 粒子、 Zn 粒子、 ZnO 粒子、 ZrC 粒子、 ZrO_2 粒子、コバルトブルー、カーボンブラック、カーボンナノファイバー、グラフェン、フラーレン、ゼオライト等が挙げられる。

有機粒子としては、樹脂粒子等が挙げられる。具体例としては、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 粒子、ポリフェニレンスルフィド粒子、ポリアミドイミド粒子、ポリエーテルスルホン粒子、エポキシ粒子、ナイロン粒子、ポリメタクリル酸エステル粒子等が挙げられる。

これらの粒子はいずれか 1 種を単独で用いてもよく 2 種以上を併用してもよい。

上記の中では、カーボンブラック、PTFE 粒子、 TiO_2 粒子、 SiO_2 粒子、 ZnO 粒子、 ZrO_2 粒子が好ましい。

[0071] 接着剤 (B) 中の紫外線遮断剤の含有量は、紫外線遮断剤の種類によっても異なるが、ポリマー (I I I) に対して 0.1~20 質量%であることが好ましく、0.1~15 質量%がより好ましく、0.1~10 質量%が特に好ましい。紫外線遮断剤の含有量が前記範囲の下限值以上であれば、接着部の耐光性に優れる。紫外線遮断剤の含有量が前記範囲の上限値以下であれば、接着部の初期の密着性、接着剤の表面平坦性等に優れる。

[0072] 材料 (B) 中のポリマー (I I I) と紫外線遮断剤との合計の含有量は、接着剤 (B) 中の固形分に対して 50 質量%以上が好ましく、70 質量%以上がより好ましく、80 質量%以上が特に好ましい。ポリマー (I I I) と紫外線遮断剤との合計の含有量が前記の下限值以上であれば、部材と接着部とが優れた密着性を有する。

接着剤 (B) 中の固形分に対するポリマー (I I I) と紫外線遮断剤との合計の割合の上限は特に限定されず、100 質量%であってもよい。任意に配合される他の成分の含有量に応じて適宜設定できる。

なお、接着剤 (B) の固形分は、ポリマー (I I I) と紫外線遮断剤と他の成分との合計量である。

[0073] (他の成分)

他の成分としては、第一の態様における他の成分と同様のものが挙げられる。

接着剤（Ｂ）中の他の成分の含有量は、本発明の効果を損なわない範囲で、他の成分の種類に応じて適宜設定できる。

[0074] （溶媒）

接着剤（Ｂ）における溶媒としては、少なくともポリマー（ⅠⅠⅠ）を溶解する溶媒が用いられる。ポリマー（ⅠⅠⅠ）を溶解する溶媒は、紫外線遮断剤を分散する分散媒としての機能を有してもよい。

溶媒としては、第一の態様における溶媒と同様のものが挙げられ、好ましい態様も同様である。

[0075] 溶媒の含有量は、接着剤（Ｂ）の固形分濃度に応じて設定される。

材料（Ｂ）の固形分濃度は、接着剤の塗布方法、形成しようとする塗膜の厚さ等に応じて適宜設定すればよく、１～３０質量％が好ましく、１～２０質量％が特に好ましい。

[0076] （接着剤（Ｂ））

接着剤（Ｂ）は、ポリマー（ⅠⅠⅠ）またはその溶液と、紫外線遮断剤と、必要に応じて他の成分、溶媒等を混合することにより調製できる。

ポリマー（ⅠⅠⅠ）またはその溶液は、所望のものが市販されていればそれを用いてもよく、各種原料化合物から重合等の適当な方法により製造してもよい。たとえば、特許第２５２６６４１号公報等に記載された製造方法に準じてポリマー（ⅠⅠⅠ）を製造できる。

[0077] 〔紫外線発光装置〕

図１は、本発明における紫外線発光装置の一例を示す概略断面図である。

この例の紫外線発光装置１０は、発光素子１と、ポリマー（Ⅰ）からなるレンズ（光学部材）９と、発光素子１とレンズ９とを接着する接着部１１と、を備える。

発光素子１は、基板３と、波長２００～４００ｎｍの紫外線を発生するＬＥＤダイ５と、枠状の支持台７と、を備える。

ＬＥＤダイ５は基板３の表面に実装されている。

支持台７は、基板３上に、ＬＥＤダイ５を囲むように配置されている。

レンズ９は、ＬＥＤダイ５の上方にＬＥＤダイ５から離間して、支持台７の開口を塞ぐように配置されている。

紫外線発光装置１０においては、基板３と支持台７とレンズ９とによって、ＬＥＤダイ５を収容する空間Ｓが形成されている。

[0078] 基板３としては、プリント配線基板、リードフレーム等が挙げられる。

ＬＥＤダイ５が発生する紫外線の波長は２００～４００ｎｍであり、２００～３７０ｎｍが好ましい。紫外線の波長が短いほど、本発明の有用性が高い。

ＬＥＤダイ５の材質としては、ＧａＡｓ、ＡｌＮ、ＡｌＧaN、ＡｌＩnGa N等が挙げられる。

[0079] 支持台７は、側壁部７ａと天面部７ｂとを有する。天面部７ｂには開口７ｃが形成されている。側壁部７ａの内壁の上端には、全周にわたって溝７ｄが形成されている。溝７ｄに接着部１１が設けられている。

支持台７の材料としては、コバルト（Ｎｉ－Ｃｏ合金）、Ｃｕ－Ｚｎ系銅合金、Ｃｕ－Ｆｅ系銅合金、Ｃｒ－Ｚｒ系銅合金、ステンレス等の合金、Ｃｕ、Ａｌ、Ｎｉ等の金属、アルミナ等のセラミックス、ガラス等が挙げられる。これらのうち、軽量かつ耐久性に優れる点で、合金、セラミックス、Ａｌが好ましい。

[0080] レンズ９は、上面がドーム形状で下面が平坦な砲弾型のレンズ本体９ａと、レンズ本体９ａの下端部の周面に全周にわたって設けられた鰐部９ｂとからなる。

鰐部９ｂの幅（基板３の表面に対して垂直方向における幅）は、支持台７の溝７ｄの幅とほぼ同じである。

レンズ本体９ａの直径は、支持台７の開口７ｃの直径と同じかわずかに小さい大きさであり、鰐部９ｂの直径は、支持台７の開口７ｃの直径より大きく、かつ側壁部７ａの内径よりも小さい大きさとされている。これにより、

支持台 7 の開口 7 c の下側からレンズ 9 を開口 7 c に挿入したときに、鰐部 9 b の上面が天面部 7 b の下面と接するようになっている。

レンズ 9 は、鰐部 9 b の先端が接着部 1 1 と接しており、接着部 1 1 により支持台 7 に固定されている。

[0081] この例においては、接着部 1 1 が、本発明の接着剤から形成される。

たとえば、以下の手順で紫外線発光装置 1 0 が得られる。まず、支持台 7 の溝 7 d の位置に接着剤を塗布し、必要に応じて乾燥する。次いで、支持台 7 の開口 7 c の下側からレンズ 9 を開口 7 c に挿入して鰐部 9 b を、乾燥させた接着剤と接触させ、その状態でベークする。これにより、乾燥させた接着剤が接着部 1 1 となり、接着部 1 1 によって支持台 7 とレンズ 9 とが接着される。次いで、レンズ 9 が接着された支持台 7 を、LED ダイ 5 が実装された基板 3 上に配置することで、紫外線発光装置 1 0 が得られる。

[0082] 接着剤の塗布方法としては、特に限定されず、公知の塗布方法を利用できる。たとえば、スピコート法、ポッティング法、インクジェット法、スプレー法等が挙げられる。

塗布後の乾燥方法としては、特に限定されず、公知の乾燥方法を利用できる。加熱、真空、加熱と真空の併用等が挙げられる。

[0083] 支持台 7 とレンズ 9 とを接着する際のベーク温度は、典型的には、接着剤中のポリマーの T_g 以上の温度であり、 T_g' および接着剤中のポリマーの T_g のうち高い方の T_g 以上の温度が好ましく、 T_g' および接着剤中のポリマーの T_g のうち高い方の $T_g + 50^\circ\text{C}$ 以上の温度が特に好ましい。

ベーク温度の上限は、特に限定されないが、レンズ 9 が劣化しにくい点で、 T_g' および接着剤中のポリマーの T_g のうち高い方の $T_g + 100^\circ\text{C}$ 以下が好ましく、 T_g' および接着剤中のポリマーの T_g のうち高い方の $T_g + 80^\circ\text{C}$ 以下が特に好ましい。

[0084] 図 2 は、本発明における紫外線発光装置の他の一例を示す概略断面図である。

この例の紫外線発光装置 2 0 は、発光素子 2 1 と、光ファイバ（光学部材

）２９と、発光素子２１と光ファイバ２９とを接着する接着部３１と、を備える。

発光素子２１は、基板２３と、波長２００～４００ｎｍの紫外線を発生するＬＥＤダイ２５と、ポリマー（１）からなる封止材２７とを備える。

基板２３は、ＬＥＤダイ２５を実装するための配線２３ａと、凹部２３ｂとを有し、配線２３ａは、凹部２３ｂの底面に設けられている。凹部２３ｂの底面にＬＥＤダイ２５が実装され、凹部２３ｂ内に封止材２７が充填されている。発光素子２１の上面は、封止材２７によって平坦面となっている。発光素子２１の上面の封止材２７の部分に、接着部３１によって光ファイバ２９が固定されている。

[0085] 基板２３の材質としては、コバール、Ａｌ、セラミック等が挙げられる。

配線２３ａの材質としては、Ａｕ、Ａｇ、Ａｌ、Ｃｕ等が挙げられる。

ＬＥＤダイ２５としては、前記のＬＥＤダイ５と同様のものが挙げられる。

光ファイバ２９の材質としては、石英、サファイア、ペルフルオロフッ素樹脂（たとえば実施例で使用するＣＴＸ－８０９Ｓ（商品名、旭硝子社製）中のポリマー）等が挙げられる。

[0086] 発光素子２１の封止材２７の上に光ファイバ２９を配置し、光ファイバ２９の下端部の周囲に本発明の接着剤を塗布し、必要に応じて乾燥した後、ベークすることにより、封止材２７と光ファイバ２９とが接着され、紫外線発光装置２０が得られる。

接着剤の塗布方法および乾燥方法は前記と同様であり、ベークの好ましい範囲も前記と同様である。

[0087] 図３は、本発明における紫外線発光装置の他の一例を示す概略断面図である。

この例の紫外線発光装置４０は、発光素子４１と、ポリマー（１）からなる平板上の透光窓（光学部材）４９と、発光素子４１と透光窓４９とを接着する接着部５１と、を備える。

発光素子 4 1 は、基板 4 3 と、フレーム 4 5 と、波長 2 0 0 ~ 4 0 0 n m の紫外線を発生する複数の L E D ダイ 4 7 とを備える。

L E D ダイ 4 7 は基板 4 3 の表面に実装されている。フレーム 4 5 は、基板 4 3 上に、複数の L E D ダイ 4 7 を囲むように配置されている。フレーム 4 5 の上面に接着部 5 1 が形成されている。透光窓 4 9 は、フレーム 4 5 の上にフレーム 4 5 の開口を塞ぐように配置され、接着部 5 1 によってフレーム 4 5 と接着されている。フレーム 4 5 の高さは L E D ダイ 4 7 の高さよりも高く、L E D ダイ 4 7 と透光窓 4 9 は離間している。

紫外線発光装置 4 0 においては、基板 4 3 とフレーム 4 5 と透光窓 4 9 とによって、複数の L E D ダイ 4 7 を収容する空間 S が形成されている。

[0088] 基板 4 3 およびフレーム 4 5 の材質としては、A l、シリコン、セラミックス、S i C、G a N、ガラス、タングステン、モリブデン、サファイア等が挙げられる。基板 4 3 とフレーム 4 5 の材質は同一であっても異なってもよい。

L E D ダイ 4 7 としては、前記の L E D ダイ 5 と同様のものが挙げられる。

[0089] 発光素子 4 1 のフレーム 4 5 の上面に本発明の接着剤を塗布し、必要に応じて乾燥する。次いで、フレーム 4 5 の上に透光窓 4 9 を配置し、乾燥させた接着剤と接触させた状態でベークする。これにより、乾燥させた接着剤が接着部 5 1 となり、接着部 5 1 によってフレーム 4 5 と透光窓 4 9 とが接着され、紫外線発光装置 4 0 が得られる。

接着剤の塗布方法および乾燥方法は前記と同様であり、ベークの好ましい範囲も前記と同様である。

[0090] なお、本発明における紫外線発光装置は、上記の例に限定されない。上記の例における各構成およびそれらの組み合わせ等は一例であり、本発明の趣旨を逸脱しない範囲内で、構成の付加、省略、置換、およびその他の変更が可能である。

紫外線発光装置は、図 1 ~ 3 に示すものに限定されない。

光学部材であるレンズ、光ファイバ、透光窓の形状は前記のものに限定されない。

発光素子は、発光素子 1、2 1、4 1 以外の構成の LED 素子を用いてもよい。

[0091] (発光素子や光学部材を形成するポリマー (1))

ポリマー (1) は、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーが好ましい。

ポリマー (1) は、反応性官能基が存在する場合はその反応性官能基部分を除いて、ペルフルオロポリマーであることが好ましい。

含フッ素脂肪族環構造としては、ポリマー (11) の単位 (a) における含フッ素脂肪族環構造と同様のものが挙げられる。

ポリマー (1) としては、たとえば、前記単位 (a) を有するポリマーが挙げられる。単位 (a) としては、主鎖に含フッ素脂肪族環構造を有する単位が好ましく、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位、環状含フッ素単量体に基づく単位が特に好ましい。

ジエン系含フッ素単量体、環状含フッ素単量体はそれぞれ、単位 (a) の説明で挙げたものと同様であり、好ましい態様も同様である。

ポリマー (1) は、単位 (a) 以外に、たとえば前述の単位 (b)、単位 (c) を有していてもよい。

[0092] 単位 (a) としてジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位を有する場合、単位 (a) の割合は、ポリマー (1) を構成する全単位の合計に対し、50 モル%以上が好ましく、75 モル%以上がより好ましく、100 モル%が特に好ましい。

単位 (a) として環状含フッ素単量体に基づく単位を有する場合、単位 (a) の割合は、ポリマー (1) を構成する全単位の合計に対し、20 モル%以上が好ましく、40 モル%以上がより好ましく、100 モル%が特に好ましい。

[0093] ポリマー (1) は、反応性官能基を有してもよく、有しなくてもよい。反

応性官能基としては、前記と同様のものが挙げられる。

反応性官能基を有する場合、反応性官能基は、ポリマー（１）の主鎖末端に結合していてもよく、側基に含まれてもよい。

波長２００～４００ｎｍの紫外線に対する透明性、耐光性の点では、ポリマー（１）は反応性官能基を有しないことが好ましい。したがって、前述の単位（ｂ）、単位（ｃ）を有さず、主鎖末端に結合する基が反応性官能基以外の基（たとえばトリフルオロメチル基）であることが好ましい。

[0094] ポリマー（１）の T_g は９０℃以上であることが好ましく、１００～１８０℃であることが特に好ましい。本実施態様における紫外線発光装置の光学素子と接着部の組合せ、すなわちポリマー（１）とポリマー（１１）の組合せにおいては、ポリマー（１）の T_g がポリマー（１１）の T_g よりも高くなるように組み合わせることが好ましい。

[0095] ポリマー（１）からなる部材を備える発光素子や、ポリマー（１）からなる光学部材は、所望のものが市販されていればそれを用いてもよく、ポリマー（１）を用いて製造してもよい。ポリマー（１）は、所望のものが市販されていればそれを用いてもよく、各種原料化合物から重合等の適当な方法により製造してもよい。たとえば、特許第２５２６６４１号公報等に記載された製造方法に準じてポリマー（１）を製造できる。ポリマー（１）の市販品としては、サイトップ（登録商標、旭硝子社製）等が挙げられる。

実施例

[0096] 以下、実施例を示して本発明を詳細に説明する。ただし、本発明は以下の記載によっては限定されない。

後述の例１～１０のうち、例３、５～６および８～１０が実施例であり、例１～２および４が比較例であり、例７が参考例である。

各例で使用した材料および評価方法を以下に示す。

[0097] （使用材料）

光学部材（１）：下記フルオロポリマー（１）を、厚さ２００μｍのフィルム状になるようプレス成形したもの。

フルオロポリマー（１）：ペルフルオロ（３－ブテニルビニルエーテル）（以下、「ＢＶＥ」ともいう。）を環化重合して得られたホモポリマーであって、主鎖末端基が CF_3 であるポリマー。

フルオロポリマー（１）は、CTX－８０９Ｓ（商品名、旭硝子社製）の溶媒を除去することにより得た。

[0098] 光学部材（２）：下記フルオロポリマー（２）を、厚さ $200\mu\text{m}$ のフィルム状になるようプレス成形したもの。

フルオロポリマー（２）：ペルフルオロアリルビニルエーテル（以下、「ＡＶＥ」ともいう。）を環化重合して得られたホモポリマーであって、主鎖末端基が COOH であるポリマー。

フルオロポリマー（２）は、特許第２５２６６４１号公報の実施例１に準じてＡＶＥを環化重合した後、国際公開第２０１０／０３２７５９号の製造例１に準じて得られた重合体に熱処理を行った後、末端基を加水分解して COOH とした。

[0099] 光学部材（３）：下記フルオロポリマー（３）を、厚さ $200\mu\text{m}$ のフィルム状になるようプレス成形したもの。

フルオロポリマー（３）：２，２－ビストリフルオロメチル－４，５－ジフルオロ－１，３－ジオキソールとテトラフルオロエチレンとの共重合体であるテフロン（登録商標）ＡＦ１６００。テフロン（登録商標）ＡＦ１６００を溶媒に溶解してなるテフロン（登録商標）ＡＦ１６００Ｓ（三井・デュポンフロロケミカル社製）の溶媒を除去することにより得た。

[0100] 光学部材（１）～（３）は、波長 $200\sim 400\text{nm}$ での透過率は８０％以上と高かった。なお、該透過率は、分光光度計UV－３１００（型番、島津製作所社製）により測定した。

[0101] （評価方法）

ガラス転移温度（ T_g ）：

JIS K 7121：２０１２年版に準拠して測定した中間点ガラス転移温度である。

[0102] 評価サンプル作成方法：

スピコートに3 cm角の基板（材質：コバール）を設置し、毎分1,000回の回転数で回転させ、基板表面に接着剤を0.5 mL滴下し、150℃で1時間ベークして乾燥膜を形成した。次いで、2 cm角に切った光学部材を乾燥膜の上に載せ、150℃で2時間ベークした。これにより、基板／接着部／光学部材の層構成の評価サンプルを得た。

[0103] 初期密着（基盤目法）：

評価サンプル（基板／接着部／光学部材）の光学部材に、Cotec社製クロスカットガイドCC1-2（型番）を用いてカッターで2 mm×2 mmサイズのセルを25マス切った。その後、該光学部材上にセロテープ（登録商標）（ニチバン社製、型番：CT-18）を貼り、剥離する操作を10回行った。評価サンプルの光学部材面を20倍光学顕微鏡で観察し、25マスのうち剥離しなかったマスの数を数えた。

上記の結果から、剥離しなかったマスの数が20個以上であった場合を○（良好）、剥離しなかったマスの数が20個未満であった場合を×（不良）とした。

[0104] 耐光性：

波長185 nmをカットする蛍光管からなる低圧水銀灯（ウシオ電機社製、型番：SUV-40L）を、照度10 mW/cm²になるよう調整し、評価サンプルの光学部材面に紫外線（波長254 nm）を200時間照射した。照射後、初期密着と同じ基盤目法で密着性を評価した。

[0105] 耐熱性：

評価サンプルを垂直に立て、80℃オーブンに200時間入れて加熱した。その後、光学部材の脱離や位置のずれの有無を目視で確認した。

光学部材の脱離が起きず、初期（加熱前）と同じ位置であった場合を○（良好）、光学部材の脱離が起きた場合と、脱離が起きなくても初期の位置から1 mm以上ずれた場合を×（不良）とした。

[0106] （製造例1）

3-アミノプロピルトリメトキシシランを濃度0.1質量%になるようにエタノールで希釈して接着剤(a)を得た。

[0107] (製造例2)

CTL-809A(商品名、旭硝子社製)にペルフルオロトリブチルアミンを追加して、フルオロポリマー(4)が濃度4質量%の溶液を調整し、接着剤(b)とした。フルオロポリマー(4)は、前記フルオロポリマー(2)と同様のBVEを環化重合して得られたホモポリマーであって、主鎖末端基がCOOHであるポリマーであり、 T_g は108℃であった。

[0108] (製造例3)

特許第2526641号公報の実施例11を参照し、以下の手順でフルオロポリマー(5)を製造した。

BVEの24.5gと、 $CF_2=CF-OCF_2CF_2CF_2COOCH_3$ (以下、「MXM」ともいう。)の3gと、重合開始剤としてパーロイルIPP(商品名、日本油脂社製)の0.04gとをアンプルに入れ、40℃で24時間反応させてフルオロポリマー(5)を得た。フルオロポリマー(5)の組成は、BVEの環化重合により形成された単位/MXMに基づく単位=9/1(モル比)であり、 T_g は73℃であった。

得られたフルオロポリマー(5)をペルフルオロトリブチルアミンに、濃度4質量%となるように溶解して接着剤(c)を得た。

[0109] (製造例4)

BVEの量を7.9gとし、MXMの量を13gとした以外は例1と同様に反応を行ってフルオロポリマー(6)を得た。フルオロポリマー(6)の組成は、BVEの環化重合により形成された単位/MXMに基づく単位=4/6(モル比)であり、 T_g は10℃であった。

得られたフルオロポリマー(6)をペルフルオロトリブチルアミンに、濃度4質量%となるように溶解して接着剤(d)を得た。

[0110] (製造例5)

製造例2で製造した溶液にカーボンブラック(三菱化学社製、品番:MA

ー 600) を、カーボンブラックがフルオロポリマーに対して 7 質量%となるように分散させて接着剤 (e) を得た。

[0111] (製造例 6)

前記フルオロポリマー (2) をペルフルオロトリブチルアミンに、濃度 4 質量%となるように溶解して接着剤 (f) を得た。

[0112] (製造例 7)

製造例 2 で製造した溶液に PTFE 微粒子 (旭硝子社製、品番 : L170A) を、PTFE 微粒子がフルオロポリマーに対して 7 質量%となるように分散させて接着剤 (g) を得た。

[0113] (製造例 8)

製造例 2 で製造した溶液に TiO_2 微粒子 (堺化学工業社製、品番 : D-2667) を、 TiO_2 微粒子がフルオロポリマーに対して 7 質量%となるように分散させて接着剤 (h) を得た。

[0114] (製造例 9)

BVE の 100 g と、連鎖移動剤としてメタノールの 0.5 g と、重合開始剤としてパーロイルIPP (商品名、日本油脂社製) の 0.7 g とをオートクレーブ (耐圧ガラス製) を入れて密閉した。オートクレーブ内で 40℃ で 22 時間反応させて、BVE の環化重合体を得た。該重合体の固有粘度は、30℃ のペルフルオロ (2-ブチルテトラヒドロフラン) 中で 0.2 dl/g であった。次に該重合体を熱風循環式オーブン中で、大気雰囲気下にて 300℃ で 1 時間熱処理し、さらにメタノール中に 60℃ で 20 時間浸漬した。次いで 100℃ で 24 時間真空乾燥させてフルオロポリマー (7) を得た。フルオロポリマー (7) は、主鎖末端が $COOCH_3$ であるポリマーであり (IR スペクトル分析で確認。)、 T_g は 108℃ であった。

得られたフルオロポリマー (7) をペルフルオロトリブチルアミンに、濃度 4 質量%となるように溶解した。さらに、カーボンブラック (三菱化学社製、品番 : MA-600) を、カーボンブラックがフルオロポリマーに対して 7 質量%となるように分散させて、接着剤 (i) を得た。

[0115] (例 1 ～ 10)

各製造例で得た接着剤を用いて評価サンプルを作製し、初期密着、耐光性、耐熱性を評価した。結果を表 1 に示す。また、各例で評価サンプルの作製に用いた光学部材の種類と該光学部材を構成するフルオロポリマーの T_g を表 1 に併記する。

なお、初期密着の評価結果が×であった例 1 については、耐光性および耐熱性の評価は行わなかった。

[0116]

[表1]

	例1	例2	例3	例4	例5	例6	例7	例8	例9	例10
	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(e)	(f)	(g)	(h)	(i)
接着剤	種類									
	T _g (°C)	-	108	73	10	108	69	108	108	108
	紫外線遮断剤	無し	無し	無し	無し	有り (カーボン ブラック)	無し	有り (PTFE 微粒子)	有り (TiO ₂ 微 粒子)	有り (カーボン ブラック)
光学部材	種類	(1)	(1)	(1)	(1)	(3)	(1)	(1)	(1)	(1)
	T _g (°C)	108	108	108	108	160	108	108	108	108
	残存マス数(個)	5	25	25	25	25	25	25	25	25
初期密着	評価	x	○	○	○	○	○	○	○	○
	残存マス数(個)	-	0	25	25	25	25	25	25	25
	評価	-	x	○	○	○	○	○	○	○
耐光性	耐熱性	-	○	○	x	○	○	○	○	○

[0117] 本発明の接着剤を使用した例3、5～6および8～10は初期密着、耐光性、耐熱性が全て優れていた。

密着性向上のために一般的に用いられているシランカップリング剤を用いた例1は初期密着が悪かった。

T_g が100℃超のフルオロポリマーを用いた例2は、耐光性が悪かった。

T_g 10℃のポリマーを用いた例4は、耐熱性が劣っていた。

また、例2～4の結果から、BVEとMXMとの比率を変化させることで、 T_g を幅広く変化させ得ることが確認できた。AVEのホモポリマーを用いている例7の接着剤(f)では、 T_g を選択することができない。幅広い T_g を選択できることは、接着する部材の選択の幅が広がる等の点で有利な効果である。

なお、2014年7月15日に出願された日本特許出願2014-144975号の明細書、特許請求の範囲、要約書および図面の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

符号の説明

[0118] 1 発光素子、3 基板、5 LEDダイ、7 支持台、7a 側壁部、7b 天面部、7c 開口、7d 溝、9 レンズ（光学部材）、9a レンズ本体、9b 鍔部、10 紫外線発光装置、11 接着部、S 空間、20 紫外線発光装置、21 発光素子、23 基板、23a 配線、23b 凹部、25 LEDダイ、27 封止材、29 光ファイバ（光学部材）、31 接着部、40 紫外線発光装置、41 発光素子、43 基板、45 フレーム、47 LEDダイ、49 透光窓（光学部材）、51 接着部

請求の範囲

[請求項1] 下記紫外線発光装置の接着部を形成するための接着剤であって、含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーを含む下記接着剤（A）または下記接着剤（B）のいずれかからなることを特徴とする接着剤。

紫外線発光装置：波長200～400nmの紫外線を発生させる発光素子と、前記発光素子から発生する紫外線が透過する光学部材と、前記発光素子と前記光学部材とを接着する、接着剤から形成される接着部と、を備える。

接着剤（A）：前記フルオロポリマーのガラス転移温度が30～100℃であり、かつ、紫外線遮断剤を含まない接着剤。

接着剤（B）：前記フルオロポリマーと紫外線遮断剤とを含む接着剤。

[請求項2] 前記接着剤（B）における前記フルオロポリマーのガラス転移温度が30～100℃である、請求項1に記載の接着剤。

[請求項3] 前記接着剤（B）における紫外線遮断剤の含有量が、前記フルオロポリマーに対して0.1～20質量％である、請求項1または2に記載の接着剤。

[請求項4] 前記接着剤（B）における紫外線遮断剤が無機粒子および有機粒子からなる群から選択される少なくとも1種である、請求項1～3のいずれか一項に記載の接着剤。

[請求項5] 前記フルオロポリマーが、側鎖または主鎖末端に反応性官能基を有し、該反応性官能基を有する部分を除いて炭素原子に結合した水素原子を有しないフルオロポリマーである、請求項1～4のいずれか一項に記載の接着剤。

[請求項6] 前記光学材料が含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーから形成されている、請求項1～5のいずれか一項に記載の接着剤。

[請求項7] 前記光学材料中のフルオロポリマーのガラス転移温度が、前記接着

剤中のフルオロポリマーのガラス転移温度以上である、請求項6に記載の接着剤。

[請求項8] 前記光学材料中のフルオロポリマーのガラス転移温度が100～180℃である、請求項6または7に記載の接着剤。

[請求項9] 前記含フッ素脂肪族環構造を有するフルオロポリマーが、含フッ素脂肪族環構造を有する単位(a)を有するポリマーである、請求項1～8のいずれか一項に記載の接着剤。

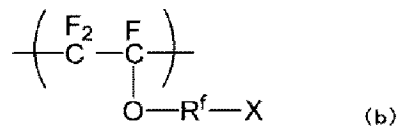
[請求項10] 前記単位(a)における含フッ素脂肪族環の環を構成する炭素原子の少なくとも1つが、ポリマーの主鎖を構成する炭素原子である、請求項9に記載の接着剤。

[請求項11] 前記単位(a)が、炭素原子に結合した水素原子を有しない単位である、請求項9または10に記載の接着剤。

[請求項12] 前記単位(a)が、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成された単位である、請求項9～11のいずれか一項に記載の接着剤。

[請求項13] 前記ガラス転移温度が30～100℃のフルオロポリマーが、前記単位(a)と下式(b)で表される単位(b)とを有し、前記単位(a)と前記単位(b)との合計の含有量が、全単位の合計に対し50～100モル%であるフルオロポリマーである、請求項9～12のいずれか一項に記載の接着剤。

[化1]



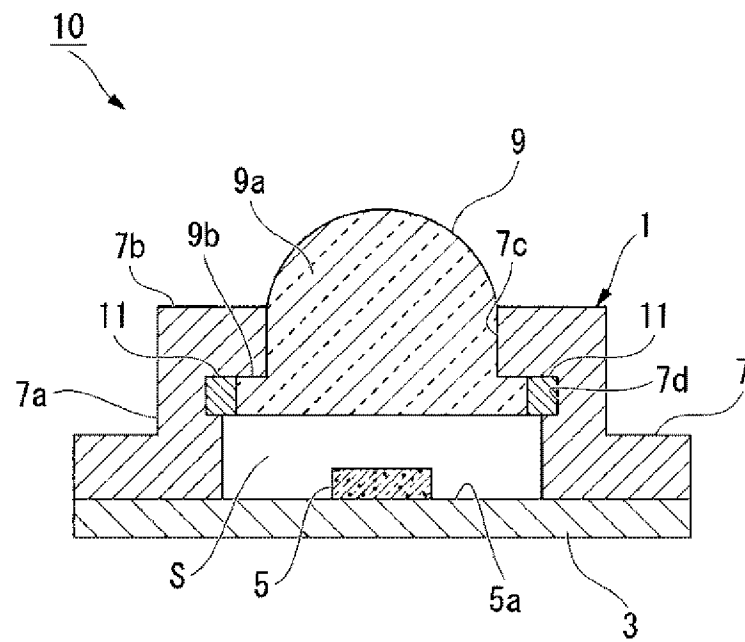
(ただし、R^fは、エーテル性酸素原子を有してもよいペルフルオロアルキレン基であり、Xは、COOH、COOR、SO₂F、SO₃RまたはSO₃Hであり、Rは、炭素数1～5のアルキル基である。)

[請求項14] 波長200～400nmの紫外線を発生する発光素子、および、波

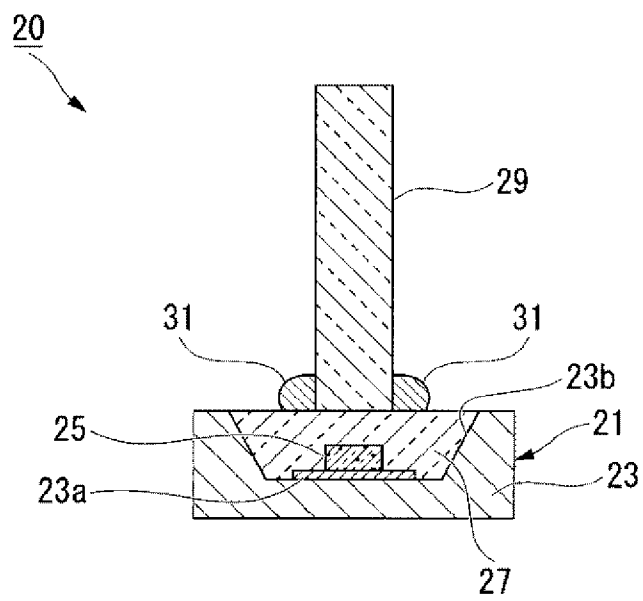
長200～400nmの紫外線が透過する光学部材、を有する紫外線発光装置であって、

記発光素子と前記光学部材とは、請求項1～13のいずれか一項に記載の接着剤から形成される接着部で接着されることを特徴とする紫外線発光装置。

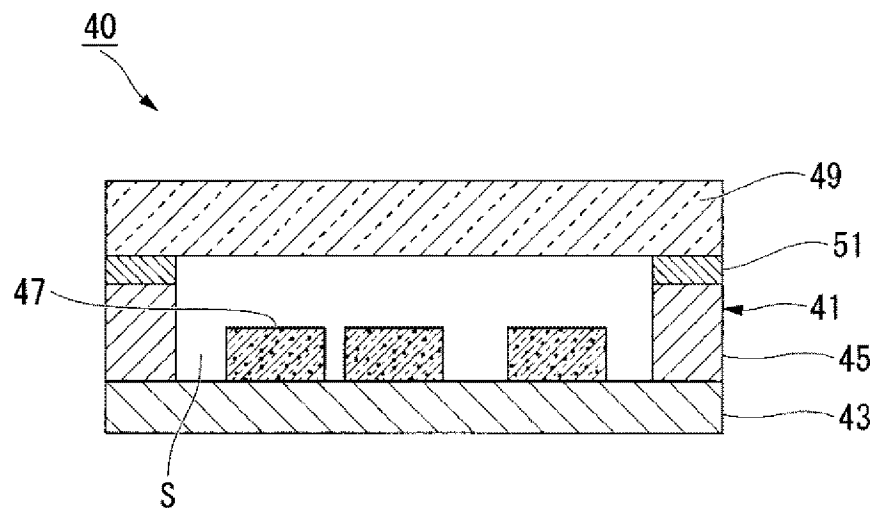
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/070172

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J127/12(2006.01)i, C08F216/14(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i,
C09J11/06(2006.01)i, H01L33/58(2010.01)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)

C09J1/00-201/10, C08F216/14, H01L33/58

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.
Y A	JP 2006-093372 A (Nichia Chemical Industries, Ltd.), 06 April 2006 (06.04.2006), claims; paragraphs [0082], [0091]; fig. 1 to 2 (Family: none)	1-5, 9-12, 14 6-8, 13
Y A	JP 2001-330943 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 30 November 2001 (30.11.2001), claims; paragraphs [0007] to [0008], [0057] to [0060], [0063] to [0066], [0077] to [0080] & US 2001/0024701 A1 claims; paragraphs [0009] to [0010], [0072] to [0075]; examples 1 to 2 & US 2003/0134057 A1 & US 2004/0048005 A1 & EP 1154320 A1 & DE 60139526 D & TW 500972 B & KR 10-2001-0092367 A & AT 439618 T	1-5, 9-12, 14 6-8, 13

☒ 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
08 October 2015 (08.10.15)

Date of mailing of the international search report
20 October 2015 (20.10.15)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/070172

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2-084456 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 26 March 1990 (26.03.1990), claims; page 4, lower left column, lines 4 to 14 (Family: none)	1-5, 9-12, 14 6-8, 13
Y A	JP 2004-536171 A (E.I. Du Pont de Nemours & Co.), 02 December 2004 (02.12.2004), claims; paragraphs [0052], [0077] to [0078] & WO 2002/093261 A1 claims; page 14, line 15 to page 15, line 3; example 1 & US 2004/0142286 A1 & EP 1388026 A1 & KR 10-2004-0029988 A	1-4, 9-12, 14 5-8, 13
Y	JP 2013-542096 A (Saint-Gobain Performance Plastics Corp.), 21 November 2013 (21.11.2013), claims; paragraphs [0054], [0057] to [0061], [0147] & WO 2012/033626 A2 claims; paragraphs [0054], [0057] to [0061]; example 1 & US 2012/0063952 A1 & EP 2613938 A2 & KR 10-2013-0080843 A & CN 103282200 A	4-5, 9-12, 14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J127/12(2006.01)i, C08F216/14(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, H01L33/58(2010.01)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. C09J1/00-201/10, C08F216/14, H01L33/58

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
Y	JP 2006-093372 A（日亜化学工業株式会社） 2006.04.06, 特許請求の範囲, 段落【0082】【0091】, 図 1-2	1-5, 9-12, 14
A	（ファミリーなし）	6-8, 13
Y	JP 2001-330943 A（旭硝子株式会社） 2001.11.30, 特許請求の範囲, 段落【0007】-【0008】【0057】-【0060】	1-5, 9-12, 14
A	【0063】-【0066】【0077】-【0080】 & US 2001/0024701 A1, Claims, 段落 [0009] - [0010] [0072] - [0075], EXAMPLE 1-2	6-8, 13

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 8 . 1 0 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

2 0 . 1 0 . 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）

澤村 茂実

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

4 Z

9 1 5 8

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
	& US 2003/0134057 A1 & US 2004/0048005 A1 & EP 1154320 A1 & DE 60139526 D & TW 500972 B & KR 10-2001-0092367 A & AT 439618 T	
Y	JP 2-084456 A (旭硝子株式会社)	1-5, 9-12, 14
A	1990. 03. 26, 特許請求の範囲, 第 4 頁左下欄第 4-14 行 (ファミリーなし)	6-8, 13
Y	JP 2004-536171 A (イー・アイ・デュボン・ドウ・ヌムール・アン ド・カンパニー)	1-4, 9-12, 14
A	2004. 12. 02, 特許請求の範囲, 段落 【0052】 【0077】 - 【0078】 & WO 2002/093261 A1, CLAIMS, 第 14 頁第 15 行-第 15 頁第 3 行, Example 1 & US 2004/0142286 A1 & EP 1388026 A1 & KR 10-2004-0029988 A	5-8, 13
Y	JP 2013-542096 A (サンーゴバン パフォーマンス プラスティッ クス コーポレイション) 2013. 11. 21, 特許請求の範囲、段落 【0054】 【0057】 - 【0061】 【0147】 & WO 2012/033626 A2, CLAIMS, 段落 [0054] [0057] - [0061] , Example 1 & US 2012/0063952 A1 & EP 2613938 A2 & KR 10-2013-0080843 A & CN 103282200 A	4-5, 9-12, 14