

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-168945

(P2004-168945A)

(43) 公開日 平成16年6月17日(2004.6.17)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
CO8L 63/00	CO8L 63/00 C	2H090
CO8G 59/42	CO8G 59/42	3K007
CO8J 5/18	CO8J 5/18 CFC	4F071
CO8K 3/00	CO8K 3/00	4J002
CO8L 63/06	CO8L 63/06	4J036

審査請求 未請求 請求項の数 16 O L (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2002-338407 (P2002-338407)	(71) 出願人	000002141 住友ベークライト株式会社 東京都品川区東品川2丁目5番8号
(22) 出願日	平成14年11月21日 (2002.11.21)	(72) 発明者	江口 敏正 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友 ベークライト 株式会社 会社内
		(72) 発明者	柴原 澄夫 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友 ベークライト 株式会社 会社内
		(72) 発明者	岡 渉 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友 ベークライト 株式会社 会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 透明複合体組成物

(57) 【要約】

【課題】本発明の透明複合体組成物は、低線膨張係数で透明性、耐熱性、耐溶剤性等に優れるため、例えば、液晶表示素子基板や有機EL素子基板（特にアクティブマトリックスタイプ）に好ましいほか、透明板、光学レンズ、カラーフィルター用基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材などに好ましい。

【解決手段】エポキシ樹脂（a）及び球相当直径が1 μm以上5 cm以下である無機フィラー（b）よりなる透明樹脂複合体であってエポキシ樹脂（a）は、硬化時における屈折率が無機フィラー（b）よりも低い1種以上のエポキシ樹脂と、無機フィラー（b）よりも高い1種以上のエポキシ樹脂からなる透明複合体組成物を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

エポキシ樹脂 (a) 及び球相当直径が $0.11 \mu\text{m} \sim 2 \text{mm}$ である無機フィラー (b) からなり、波長 550nm における光線透過率が 80% 以上である透明複合体組成物。

【請求項 2】

エポキシ樹脂 (a) 及び大きさが $1 \mu\text{m}$ 以上 5cm 以下である無機フィラー (b) よりなる透明樹脂複合体組成物であって、エポキシ樹脂 (a) は、硬化後の屈折率が無機フィラー (b) よりも低い 1 種以上のエポキシ樹脂と、ガラスフィラー (b) よりも高い 1 種以上のエポキシ樹脂とからなる透明複合体組成物。

【請求項 3】

硬化後のエポキシ樹脂 (a) のガラス転移温度が 150 以上である請求項 1 又は 2 の透明複合体組成物。

【請求項 4】

硬化後のエポキシ樹脂 (a) の屈折率と無機フィラー (b) の屈折率との差が 0.01 以下である請求項 1 ~ 3 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 5】

無機フィラー (b) の屈折率が 1.52 以上であり、硬化後の屈折率が前記無機フィラーより低いエポキシ樹脂が脂環式エポキシ樹脂およびトリグリシジルイソシアヌレートから選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ樹脂であり、屈折率が無機フィラーよりも高いエポキシ樹脂がイオウ含有エポキシ樹脂およびフルオレン骨格含有エポキシ樹脂から選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ樹脂である請求項 1 ~ 4 いずれかの透明樹脂複合体組成物。

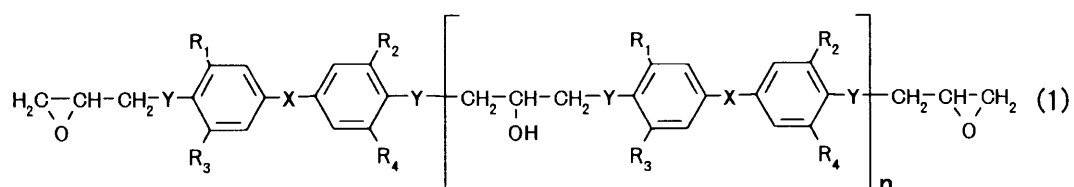
【請求項 6】

無機フィラー (b) の屈折率が 1.52 未満であり、硬化後の屈折率が前記無機フィラーより低いエポキシ樹脂が脂環式エポキシ樹脂から選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ樹脂であり、屈折率が無機フィラーよりも高いエポキシ樹脂がトリグリシジルイソシアヌレート、イオウ含有エポキシ樹脂およびフルオレン骨格含有エポキシ樹脂から選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ樹脂である請求項 1 ~ 4 いずれかの透明樹脂複合体組成物。

【請求項 7】

イオウ含有エポキシ樹脂が下式 (1) にて表される化合物である請求項 5 又は 6 の透明複合体組成物。

【化 1】

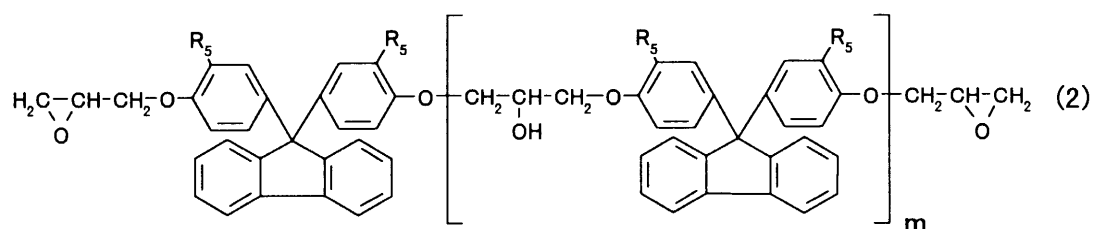


(上記式中、X は S または SO_2 を示し、Y は O または S を示す。 $\text{R}_1 \sim \text{R}_4$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示し、n は $0 \sim 2$ である。)

【請求項 8】

フルオレン骨格含有エポキシ樹脂が下式 (2) にて表される請求項 5 又は 6 の透明複合体組成物。

【化 2】



10

20

30

40

50

(上記式中、 R_5 は水素原子またはメチル基を示し、 m は 0 ~ 2 である。)

【請求項 9】

前記エポキシ樹脂 (a) が酸無水物系硬化剤又はカチオン系触媒を用いて硬化した硬化体である請求項 1 ~ 8 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 10】

無機フィラー (b) の形状が平板状である請求項 1 ~ 9 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 11】

無機フィラー (b) の形状が棒状または棒状の集合体である請求項 1 ~ 9 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 12】

無機フィラー (b) がガラスである請求項 1 ~ 11 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 13】

前記ガラスフィラー (b) の屈折率が 1.50 ~ 1.57 である請求項 1 ~ 12 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 14】

30 ~ 150 における平均線膨張係数が 40 ppm 以下である請求項 1 ~ 13 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 15】

厚さ 50 ~ 2000 μm のシートである請求項 1 ~ 14 いずれかの透明複合体組成物。

【請求項 16】

透明複合体組成物が、光学シート、表示素子用プラスチック基板、又はアクティブマトリックス表示素子用基板である請求項 1 ~ 15 いずれかの透明複合体組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガラスに代替可能な透明複合体組成物に関する。本発明の透明複合体組成物は、例えば、液晶表示素子用基板、有機 EL 表示素子用基板、カラーフィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、LED 封止材などに好ましい。

【0002】

【従来の技術】

一般に、液晶表示素子や有機 EL 表示素子用の表示素子基板 (特にアクティブマトリックスタイプ)、カラーフィルター基板、太陽電池用基板等としては、ガラス板が広く用いられている。しかしながらガラス板は、割れ易い、曲げられない、比重が大きく軽量化に不向きなどの理由から、近年、その代替としてプラスチック素材が検討されている。

例えば、エポキシ樹脂、酸無水物系硬化剤及び硬化触媒を含むエポキシ樹脂組成物を硬化して得られる硬化体からなる液晶表示素子用透明樹脂基板が検討されている。(例えば、特許文献 1 参照。)

しかしながら、これら従来のガラス代替用プラスチック材料は、ガラス板に比べ線膨張係数が大きく、特に、アクティブマトリックス表示素子基板に用いるとその製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じ、これら用途への使用は困難である。したがって、表示素子基板、特にアクティブマトリックス表示素子用基板に要求される、透明性、耐溶剤性、耐液晶性、耐熱性等を満足しつつ線膨張係数の小さなプラスチック素材が求められている。

【0003】

線膨張係数を低減するためには、従来、樹脂にガラスパウダーやガラス繊維等の無機フィラーを配合する材料の複合化も種々行われている。しかしながら、これら樹脂と無機フィラーとの複合材では基材の透明性が損なわれることが多い。これは無機フィラーの屈折率と樹脂の屈折率とが異なるため、樹脂中を透過する光が乱屈折することが主な原因である

10

20

30

40

50

。

【0004】

このような問題を解決するため、樹脂と無機フィラーとの屈折率を合わせて透明化することが種々検討されている。例えば、酸無水物で硬化したエポキシ樹脂と実質的に同じ屈折率の充填材からなる光透過性エポキシ樹脂組成物など、光半導体装置用には屈折率を合わせて透明化したエポキシ樹脂組成物が種々報告されている。(例えば、特許文献2参照。)しかしながら、従来の光半導体装置用の材料では、特殊なフィラーが用いられており、汎用なガラスフィラー等の無機フィラーの使用により幅広い用途への展開が求められている。

【0005】

10

【特許文献1】

特開平6-337408号公報(第2頁)

【特許文献2】

特開平4-236217号公報(第2頁)

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガラスに代替可能な透明複合体組成物を提供することにある。本発明の透明複合体組成物は、アクティブマトリックスタイプを含む液晶表示素子用基板、有機EL表示素子基板、カラーフィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、LED封止材等に好適に用いられる。

20

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を達成すべく鋭意検討した。その結果、エポキシ樹脂(a)及び球相当直径が $0.1\mu\text{m}$ ~ 2mm である無機フィラー(b)よりなる透明樹脂複合体であって、エポキシ樹脂(a)は、硬化後の屈折率が無機フィラー(b)よりも低い1種以上のエポキシ樹脂と、無機フィラー(b)よりも高い1種以上のエポキシ樹脂とからなる透明複合体組成物であって、(a)と(b)との屈折率差が 0.01 以下である透明複合体組成物は、波長 550nm における光線透過率が 80% 以上と透明性が高く、しかも低線膨張係数であって、耐熱性、耐溶剤性にも優れるとの知見を得て、本発明を完成するに至った。

30

【0008】

すなわち本発明は、エポキシ樹脂(a)及び無機フィラー(b)からなり、波長 550nm における光線透過率が 80% 以上である透明複合体組成物を提供するものである。

【0009】

本発明の好ましい透明樹脂組成物は硬化後のエポキシ樹脂(a)の屈折率と無機フィラー(b)の屈折率との差が 0.01 以下である。

【0010】

【発明の詳述】

つぎに、本発明をさらに詳細に説明する。

40

本発明の透明複合体組成物に用いるエポキシ樹脂(a)は可視光線に対して高い透過性を有し、厚さ $200\mu\text{m}$ のシートとした時、波長 550nm の光線透過率が好ましくは 80% 以上であり、さらに好ましくは 85% 以上、最も好ましくは 88% 以上である。波長 550nm の光線透過率が 80% 以下の場合、プラスチック基板の表示性能が低下し好ましくない。

本発明にて用いるエポキシ樹脂(a)は、無機フィラー(b)と複合化して波長 550nm の光線透過率が 80% 以上になるものであれば特に限定されない。

【0011】

本発明にて用いるエポキシ樹脂(a)の硬化後のガラス転移温度は、 150 以上であるのが好ましく、より好ましくは 180 以上、さらに好ましくは 200 以上である。樹

50

脂のガラス転移温度が150未満であると、TFT素子形成工程、特にアクティブマトリックス表示素子用基板のTFT素子形成工程で変形やうねりが生じる恐れがある。

【0012】

本発明の複合体組物を、液晶表示素子用プラスチック基板など、光学用途に用いる場合は、波長550nmの光線透過率が80%以上であることが好ましく、85%以上であるのがより好ましい。光線透過率がこれよりさらに低いと光の利用効率が低下し光効率が重要な用途には好ましくない。

【0013】

かかる複合体において、波長550nmの光線透過率を80%以上にする方法としては、(1)エポキシ樹脂と無機フィラーの屈折率を合わせる、(2)光の波長以下の微細な無機フィラーを用いる、などがあげられるが、材料入手の容易さから屈折率を一致させるのが好ましい。

【0014】

エポキシ樹脂(a)の硬化後の屈折率と無機フィラー(b)の屈折率との差は、優れた透明性を維持するため0.01以下であることが好ましく、0.005以下がより好ましい。屈折率差が0.01より大きい場合には、得られるプラスチック基板の透明性が劣る傾向がある。

【0015】

エポキシ樹脂(a)と無機フィラー(b)との屈折率差を0.01以下にするには、1 ガラスフィラーとの屈折率差が0.01以下の樹脂を選択する、2 無機フィラーの屈折率を調整して樹脂の屈折率に合わせる、3 樹脂の屈折率を調整して無機フィラーの屈折率を合わせる方法などが採用し得る。

【0016】

しかしながら表示素子用基板に要求される種々の特性を満足しつつ、樹脂と無機フィラーとの屈折率差が0.01以下の組み合わせを選択することは容易でないため、樹脂または無機フィラーの屈折率を調整して屈折率差を0.01以下にするのが好ましい。無機フィラーの屈折率を調整して樹脂の屈折率に合わせる方法では特殊な無機フィラーを用いることになり、コストの面からは、樹脂の屈折率を調整して無機フィラーの屈折率に合わせる方法が好ましい。

【0017】

無機フィラーの屈折率に樹脂の屈折率を合わせるには、1 屈折率の異なる2種以上の樹脂を組み合わせる方法、2 樹脂よりも屈折率の大きいか、小さい添加剤を添加して調整する方法などが挙げられる。なかでも、無機フィラー(b)よりも屈折率の高い樹脂と無機フィラー(b)よりも屈折率の低い樹脂を組み合わせる方法が好ましい。この方法によれば、樹脂の屈折率を、たとえば、Eガラス、Sガラス、NEガラスなどの汎用的なガラスフィラーの屈折率に合わせることが比較的容易である。

【0018】

屈折率の異なるエポキシ樹脂の組み合わせとしては、1 屈折率の異なる2種以上のエポキシ樹脂の組み合わせ、2 屈折率の異なる2種以上の硬化剤の組み合わせ、3 エポキシ樹脂と屈折率の異なる他の樹脂との組み合わせなど、無機フィラー(b)の屈折率に調整できるものであれば特に限定されないが、樹脂同士の相容性が高く、かつ広い範囲で屈折率の調整ができことから屈折率の異なる2種以上のエポキシ樹脂の組み合わせが好ましい。

【0019】

すなわち、無機フィラー(b)の屈折率に調整可能な好ましい樹脂の組み合わせは、硬化したときの屈折率が無機フィラー(b)よりも低い1種以上のエポキシ樹脂と、硬化したときの屈折率が無機フィラー(b)よりも高い1種以上のエポキシ樹脂との組み合わせである。

硬化後のエポキシ樹脂の屈折率は使用した硬化剤によっても異なり、本発明にて用いられる、屈折率の低いエポキシ樹脂、或いは高いエポキシ樹脂としては、各々、硬化後の屈折

10

20

30

40

50

率が、用いられる無機フィラーの屈折率よりも低く、或いは高くなるものであれば特に限定されない。

【0020】

無機フィラーとして、EガラスやSガラスなど屈折率が1.52以上のガラスフィラーを用いる場合、酸無水物を硬化剤として、

(i) 比較的屈折率の低い脂環式エポキシ樹脂(下式(3)~(8)など)、及び屈折率が中程度であるトリグリシジルイソシアヌレート(下式(9))から選ばれた少なくとも1種のエポキシ樹脂と、

(ii) 比較的屈折率の高いイオウ含有エポキシ樹脂(下式(1))及びフルオレン骨格含有エポキシ樹脂(下式(2))から選ばれた少なくとも1種のエポキシ樹脂の組み合わせなどが好ましい。前記成分(i)としては、それらのうち、トリグリシジルイソシアヌレートが耐熱性の点からより好ましい。

10

【0021】

一方、NEガラスなど屈折率が1.52未満のガラスフィラーを用いる場合は酸無水物を硬化剤として、

(i) 比較的屈折率の低い脂環式エポキシ樹脂(下式(3)~(8)など)から選ばれた少なくとも1種のエポキシ樹脂と、

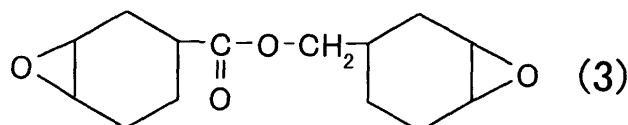
(ii) 屈折率が中程度であるトリグリシジルイソシアヌレート(下式(9))、並びに比較的屈折率の高いイオウ含有エポキシ樹脂(下式(1))及びフルオレン骨格含有エポキシ樹脂(下式(2))から選ばれた少なくとも1種のエポキシ樹脂の組み合わせなどが好ましい。

20

【0022】

前記の比較的屈折率の低いエポキシ樹脂としては、下式(3)~(8)にて示される脂環式エポキシ樹脂などが挙げられる。

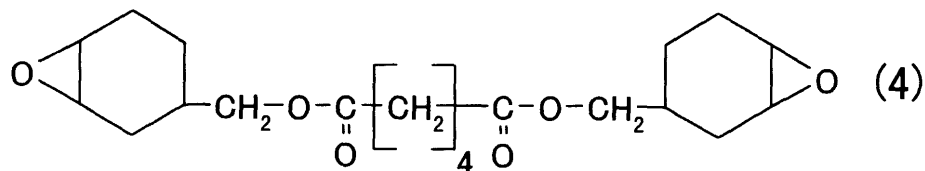
【化3】



30

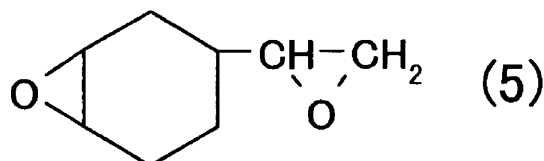
【0023】

【化4】



【0024】

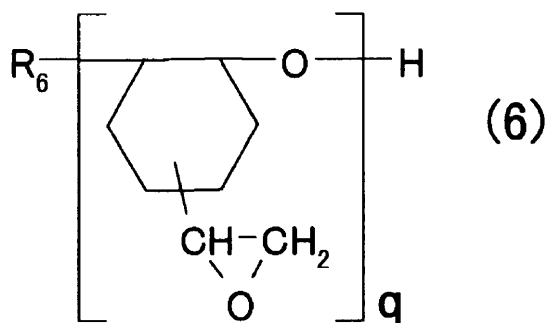
【化5】



40

【0025】

【化6】

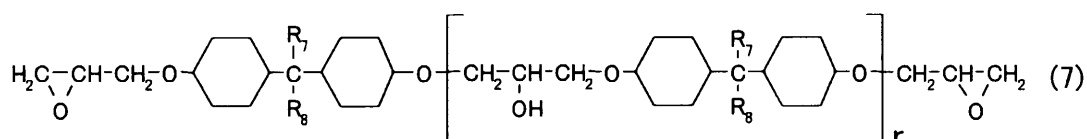


10

(式中、 R_6 はアルキル基またはトリメチロールプロパン残基を示し、 q は 1 ~ 20 である。)

【0026】

【化7】

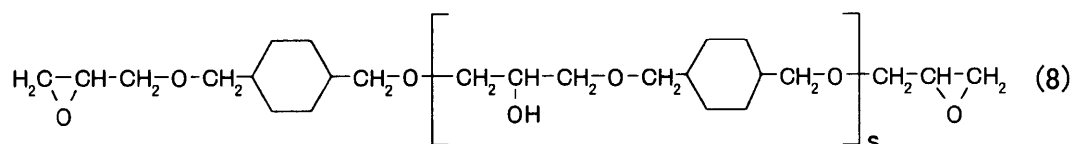


20

(式中、 R_7 及び R_8 は各々独立して水素原子又はメチル基を示し、 r は 0 ~ 2 である。)

【0027】

【化8】



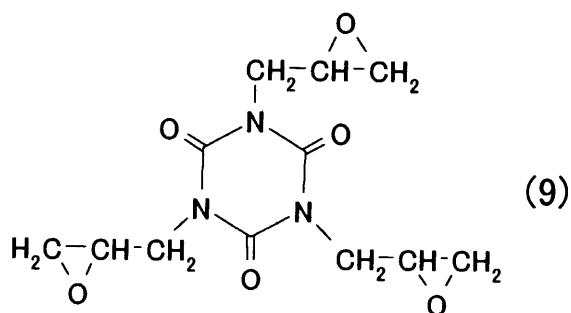
30

(式中、 s は 0 ~ 2 である。)

【0028】

また、前記の屈折率が中程度であるトリグリシジルイソシアヌレートは下式(9)にて示される。

【化9】



40

【0029】

前記の比較的屈折率の高いイオウ含有エポキシ樹脂、及びフルオレン骨格含有エポキシ樹脂は、下記の式(1)及び式(2)にて表される。

【0030】

イオウ含有エポキシ樹脂

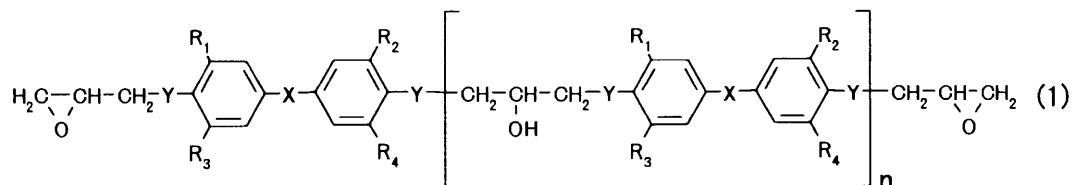
イオウ含有エポキシ樹脂としては、イオウを含有し、2つ以上のエポキシ基を有するエポ

50

キシ樹脂であれば特に限定されず、耐熱性や透明性の点から下式(1)に示すエポキシ樹脂が好ましい。

【0031】

【化10】



10

(式中、XはSまたはSO₂を示し、YはOまたはSを示す。R₁～R₄は各々独立に水素原子又はメチル基を示し、nは0～2である。)

式(1)で示されるエポキシ樹脂の中でも、反応性、耐熱性や取り扱い安さからXがSO₂、Yが酸素、R₅～R₁₀がすべて水素、nが0～1であるビスフェノールSが最も好ましい。

【0032】

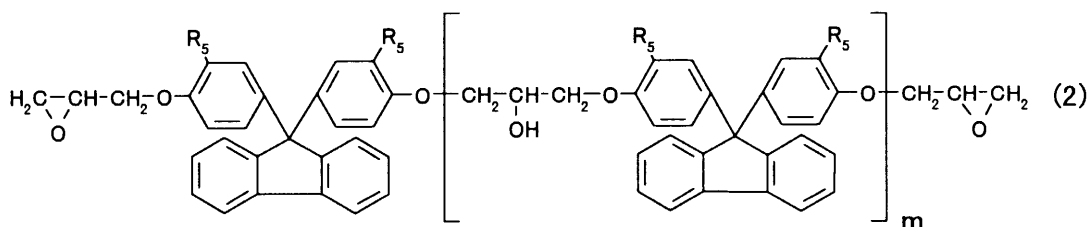
フルオレン骨格含有エポキシ樹脂

フルオレン骨格含有エポキシ樹脂としては、フルオレン骨格を含有し、2つ以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されないが、耐熱性や透明性の点から下式(2)で示されるエポキシ樹脂が好ましい。

20

【0033】

【化11】



30

(式中、R₅は水素又はメチル基を示し、mは0～2である。)

【0034】

硬化後の屈折率の異なるエポキシ樹脂は、目的とする屈折率に応じて適宜の配合割合で混合し硬化することができ、エポキシ樹脂(a)の屈折率を無機フィラーの屈折率に調整することができる。

【0035】

本発明で用いられるエポキシ樹脂には、柔軟性付与するなどのため、所望の特性を損なうことのない範囲で、単官能のエポキシ化合物を併用してもよい。この場合、樹脂全体の屈折率を無機フィラーの屈折率に合うように配合量を調整する。

【0036】

本発明に用いるエポキシ樹脂(a)は、硬化剤もしくは重合開始剤存在下、加熱又は活性エネルギー線を照射し、硬化して用いる。硬化剤は、特に限定されないが、優れた透明性の硬化物が得られやすいことから、酸無水物系の硬化剤やカチオン系触媒が好ましい。

40

【0037】

酸無水物の硬化剤としては、無水フタル酸、無水マレイン酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチル無水ナジック酸、無水ナジック酸、無水グルタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチル水添無水ナジック酸、水添無水ナジック酸などがあげられ、なかでも透明性が優れることからメチルヘキサヒドロ無水フタル酸やメチル水添無水ナジック酸が好ましい。

【0038】

50

酸無水物系硬化剤を使用する場合は、硬化促進剤を併用することが好ましい。この硬化促進剤としては、1, 8 - ジアザ - ビシクロ (5 , 4 , 0) ウンデセン - 7、トリエチレンジアミン等の三級アミン類、2 - エチル - 4 - メチルイミダゾール等のイミダゾール類、トリフェニルホスフィン、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート等のリン化合物、四級アンモニウム塩、有機金属塩類、およびこれらの誘導体等があげられ、これらのなかでもリン化合物が好ましい。これら硬化促進剤は、単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。

【 0 0 3 9 】

酸無水物系硬化剤の使用量は、エポキシ樹脂 (a) 中のエポキシ基 1 当量に対して、酸無水物系硬化剤における酸無水物基を 0 . 5 ~ 1 . 5 当量に設定することが好ましく、0 . 7 ~ 1 . 2 当量がより好ましい。

【 0 0 4 0 】

また、カチオン系触媒としては、酢酸、安息香酸、サリチル酸、パラトルエンスルホン酸等の有機酸、三フッ化ホウ素アミン錯体、三フッ化ホウ素のアンモニウム塩、芳香族ジアゾニウム塩、芳香族スルホニウム塩、芳香族ヨウドニウム塩、アルミニウム錯体を含有するカチオン系触媒等をあげることができ、これらのなかでもアルミニウム錯体を含有するカチオン系触媒が好ましい。

【 0 0 4 1 】

(無機フィラー)

本発明の無機フィラー (b) の球相当直径は 0 . 1 μ m ~ 2 m m である。球相当直径が 0 . 1 μ m 未満であると、線膨張係数の低減への効果が小さく、2 m m を超えると均一に分散することが困難である。

本発明の無機フィラー (b) の形状は、面内方向の線膨張係数を下げる効果が大きいことから、平板状、棒状または棒状の集合体であることが好ましい。平板状のものである場合、その厚みは 0 . 1 μ m 以上 1 0 0 μ m 以下程度であることが好ましく、棒状または棒状の集合体である場合、1本の棒状の直径は 0 . 1 μ m 以上 1 0 0 μ m 以下であることが好ましいが、特に限定されるものではない。

【 0 0 4 2 】

本発明の無機フィラー (b) の材質の例を挙げるとシリカ、アルミナ、酸化チタン等の金属酸化物、マイカ等の鉱物、ガラス等であるがこれらに限定されるものではない。これらのうちで透明性が良好で種々の形状のものが安価に入手しやすいガラスが好ましい。ガラスの種類としては、Eガラス、Cガラス、Aガラス、Sガラス、Dガラス、NEガラス、Tガラス、低誘導率ガラス、高誘導率ガラスなどがあげられ、中でもアルカリ金属などのイオン性不純物が少なく、入手が容易なEガラス、Sガラス、Tガラス、NEガラスが好ましい。

【 0 0 4 3 】

本発明の透明複合体組成物に配合する無機フィラー (b) の屈折率は特に限定されるものではないが、組み合わせる樹脂の屈折率の調整が容易なように 1 . 5 0 ~ 1 . 5 7 の範囲にあるのが好ましい。特に無機フィラーがガラスフィラーでありその屈折率が 1 . 5 0 ~ 1 . 5 4 である場合は、ガラスのアップ数に近い樹脂が選択でき好ましい。樹脂とガラスとのアップ数が近いと広い波長領域において両者の屈折率が一致し、広い波長領域で高い光線透過率が得られる。

【 0 0 4 4 】

(透明複合体組成物)

透明複合体組成物における無機フィラー (b) の含有率は 1 0 重量 % 以上 9 5 重量 % 以下であることが好ましい。含有率が 1 0 重量 % より少ないと線膨張係数を低減する効果が得られにくく、9 5 重量 % 以上であると均一に分散することが難しい。

【 0 0 4 5 】

本発明の透明複合体組成物においては、無機フィラーと樹脂とが密着しているほど、表示素子用プラスチック基板など複合体組成物の透明性がよくなるため、無機フィラー表面を

シランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理するのが好ましい。具体的には、エポキシ基を有するシラン化合物で処理するのが好ましい。

【0046】

(他の配合成分)

表示素子用プラスチック基板など本発明の複合体組成物には、必要に応じて、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、熱可塑性又は熱硬化性のオリゴマーやポリマーを併用してよい。この場合、吸水率の低減などのため、脂環式構造やカルド骨格を有するオリゴマーやポリマーを使用することが好ましい。これら熱可塑性または熱硬化性のオリゴマーやポリマーを併用する場合は、全体の屈折率が無機フィラーの屈折率に合うように組成比を調整する必要がある。

10

【0047】

また、本発明の複合体組成物中には、必要に応じて、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、少量の酸化防止剤、紫外線吸収剤、染顔料、他の無機フィラー等の充填剤等を含んでいても良い。

【0048】

複合体組成物の成形方法に制限はなく、例えば、流延法や注型法などがあり、連続生産が可能であることから流延法が好ましい。

【0049】

本発明の複合体組成物を、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等の光学用途として用いる場合、基板の厚さは好ましくは50~2000 μm であり、より好ましくは50~1000 μm である。基板の厚さがこの範囲にあると平坦性に優れ、ガラス基板と比較して基板の軽量化を図ることができる。

20

【0050】

また、この透明複合体組成物を前記光学用途として用いる場合、30~150における平均線膨張係数が40ppm以下であることが好ましく、より好ましくは30ppm以下である。例えば、この複合体組成物をアクティブマトリックス表示素子基板に用いた場合、この上限値を越えると、その製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じる恐れがある。

【0051】

表示素子用プラスチック基板とする場合、平滑性を向上させるために両面に樹脂のコート層を設けても良い。かかる樹脂は優れた透明性、耐熱性、耐薬品性を有していることが好ましく、具体的には多官能アクリレートやエポキシ樹脂などが好ましい。コート層の厚みは0.1~50 μm が好ましく、0.5~30 μm がより好ましい。

30

【0052】

本発明の表示素子用プラスチック基板は、必要に応じて水蒸気や酸素に対するガスバリア層や透明電極層を設けても良い。

【0053】

【実施例】

以下に本発明を実施例及び比較例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらにより限定されるものではない。

40

【0054】

(実施例1)

平均投影円相当直径約10 μm 、平均厚さ約0.1 μm であるSガラス(屈折率1.530)の平板状フィラーを、焼きだしし有機物を除去した後、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(エポキシシラン)で処理した。この無機フィラー90重量部をトリグリシジルイソシアヌレート90重量部、ビスフェノールS型エポキシ樹脂10重量部、メチル水添無水ナジック酸(酸無水物(1))170重量部、及びテトラフェニルホスホニウムプロマイド(硬化促進剤(1))2重量部を110にて熔融混合した液状の樹脂中に分散し、脱泡した。これを、厚さ100 μm のポリエステルフィルムをスペーサーとし

50

て離型処理したガラス板に挟み込んで、オーブン中、100にて2時間加熱後、さらに120にて2時間、150にて2時間、175にて2時間、順次加熱し厚さ0.1mmの透明複合体のシートを得た。

【0055】

(実施例2)

実施例1と同様の処理を行った平均直径約18 μ m、平均長さ約1cmであるSガラスの棒状フィラー80重量部を、トリグリシジルイソシアヌレート62.5重量部、ビスフェノールS型エポキシ樹脂27.5重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸(酸無水物(2))120重量部、及びテトラフェニルホスホニウムプロマイド(硬化促進剤(1))1.4重量部を110にて熔融混合した樹脂中に分散し、脱泡した。これを、厚さ100 μ mのポリエステルフィルムをスペーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例1と同条件にて加熱処理を行い厚さ0.1mmの透明複合体のシートを得た。

【0056】

(実施例3)

実施例1と同様の処理を行った平均投影円相当直径約5 μ m、平均厚さ約0.1 μ mであるEガラス(屈折率1.560)の平板状フィラー90重量部を、トリグリシジルイソシアヌレート20重量部、ビスフェノールS型エポキシ樹脂80重量部、メチル水添無水ナジック酸(酸無水物(1))75重量部、及びテトラフェニルホスホニウムプロマイド(硬化促進剤(1))1重量部を100にて熔融混合した樹脂に分散し、脱泡した。これを、厚さ100 μ mのポリエステルフィルムをスペーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例1と同条件にて加熱処理を行い厚さ0.1mmの透明複合体のシートを得た。

【0057】

(実施例4)

実施例1と同様の処理を行った平均直径約13 μ m、平均長さ約3mmであるEガラスの棒状フィラー80重量部を、トリグリシジルイソシアヌレート45.5重量部、フルオレン骨格含有エポキシ樹脂54.5重量部、メチル水添無水ナジック酸(酸無水物(1))113重量部、テトラフェニルホスホニウムプロマイド(硬化促進剤(1))1.3重量部を100で熔融混合した樹脂に分散し、脱泡した。これを、厚さ100 μ mのポリエステルフィルムをスペーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例1と同条件にて加熱処理を行い厚さ0.1mmの透明複合体のシートを得た。

【0058】

(実施例5)

実施例1と同様の処理を行った平均投影円相当直径約5 μ m、平均厚さ約0.1 μ mであるNEガラス(屈折率1.510)の平板状フィラー90重量部を、トリグリシジルイソシアヌレート40重量部、脂環式エポキシ樹脂60重量部、メチル水添無水ナジック酸(酸無水物(1))139重量部、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール(硬化促進剤(2))1重量部を100で熔融混合した樹脂に分散し、脱泡した。これを、厚さ100 μ mのポリエステルフィルムをスペーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例1と同条件にて加熱処理を行い厚さ0.1mmの透明複合体のシートを得た。

【0059】

(比較例1)

脂環式エポキシ樹脂100重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸(酸無水物(2))81重量部、及びテトラフェニルホスホニウムプロマイド(硬化促進剤(1))1重量部を50にて熔融混合した。これを、厚さ100 μ mのポリエステルフィルムをスペーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例1と同条件にて加熱処理を行い厚さ0.1mmの樹脂シートを得た。

【0060】

(比較例2)

実施例3と同様の処理を行ったEガラスの平板状フィラー90重量部を、脂環式エポキシ

樹脂 100 重量部、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸（酸無水物（2））81 重量部、及びテトラフェニルホスホニウムブロマイド（硬化促進剤（1））1 重量部を 50 にて溶解混合した樹脂に分散し、脱泡した。これを、厚さ 100 μm のポリエステルフィルムをスパーサーとして離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例 1 と同条件にて加熱処理を行い厚さ 0.1 mm の複合体のシートを得た。

【0061】

（評価方法）

前記の実施例、比較例にて作製した樹脂シート（表示素子用プラスチック基板）について、下記の評価方法により各種の特性を測定した。

【0062】

a) 平均線膨張係数

セイコー電子（株）製 TMA/SS120C 型熱応力歪測定装置を用いて、窒素雰囲気下、1 分間に 5 の割合で温度を 30 から 150 まで上昇させた後、一旦 0 まで冷却し、再び 1 分間に 5 の割合で温度を上昇させて 30 ~ 150 の時の値を測定して求めた。荷重を 5 g にし、引張モードで測定を行った。

【0063】

測定は、独自に設計した石英引張チャック（材質：石英，線膨張係数 0.5 ppm）を用いた。一般に使われているインコネル製のチャックは、それ自体の線膨張が高いことやサンプルの支持形態に不具合があり、100 μm を超える厚いシートに適用すると線膨張係数が圧縮モードで測定した結果よりも大きめに出たり、測定ばらつきが大きくなる問題があった。したがって、石英引張チャックを独自に設計し、それを用いて線膨張係数を測定することにした。この引張チャックを用いることにより、圧縮モードで測定した場合とほぼ同様の値で測定できることを確認している。

【0064】

b) 耐熱性 (Tg)

セイコー電子（株）製 DMS 210 型粘弾性測定装置で測定し、1 Hz での \tan の最大値をガラス転移温度 (Tg) とした。

【0065】

c) 耐溶剤性

60 のジメチルスルホキシド (DMSO) 溶液に試料を浸漬して 60 分間放置。試料を取り出した後、目視にて外観を観察した。完全に变形、変色を伴わず、侵食されないもののみ、他は x とした。

【0066】

d) 光線透過率

分光光度計 U3200 (日立製作所製) で 400 nm 及び 550 nm の光線透過率を測定した。

【0067】

g) 屈折率

アタゴ社製 アッペ屈折率計 DR-M2 を用いて、25 で波長 589 nm の屈折率を測定した。

【0068】

これらの評価方法により、前記実施例、比較例にて得られた試料を評価した。結果をつぎの表 1 及び表 2 に示す。

【0069】

【表 1】

10

20

30

40

	実施例-1	実施例-2	実施例-3	実施例-4	実施例-5
イソシアヌレート型EP	90	62.5	20	45.5	40
ビスフェノールS型EP	10	27.5	80	—	—
フルオレン骨格含有EP	—	—	—	54.5	—
脂環式EP	—	—	—	—	60
酸無水物(1)	170	—	75	113	139
酸無水物(2)	—	120	—	—	—
硬化促進剤(1)	2.0	1.4	1.0	1.3	—
硬化促進剤(2)	—	—	—	—	1.0
フィラー種類	Sガラス	Sガラス	Eガラス	Eガラス	NEガラス
樹脂の屈折率	1.529	1.527	1.561	1.562	1.512
フィラーの屈折率	1.530	1.530	1.560	1.560	1.510
基板厚み (μm)	100	100	100	100	100
平均線膨張係数(ppm)	25	25	28	24	29
耐熱性:T _g (°C)	283	234	221	234	221
耐溶剤性	○	○	○	○	○
光線透過率(%)400nm	87	86	65	86	65
光線透過率(%)550nm	89	89	88	89	88

10

20

【0070】

【表2】

	比較例-1	比較例-2
脂環式EP	100	100
酸無水物(2)	81	81
硬化促進剤(1)	1	1
フィラー種類	—	Eガラス
樹脂の屈折率	1.510	1.510
フィラーの屈折率	—	1.560
基板厚み (μm)	100	100
平均線膨張係数(ppm)	72	30
耐熱性:T _g (°C)	186	190
耐溶剤性	○	○
光線透過率(%)400nm	88	8
光線透過率(%)550nm	90	35

30

40

【0071】

【発明の効果】

本発明の透明複合体組成物は、低線膨張係数で透明性、耐熱性、耐溶剤性等に優れるため、例えば、液晶表示素子基板や有機EL素子基板（特にアクティブマトリックスタイプ）に好ましいほか、透明板、光学レンズ、カラーフィルター用基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材などに好ましい。

フロントページの続き

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード(参考)
G 0 2 B 1/04	G 0 2 B 1/04	5 C 0 9 4
G 0 2 F 1/1333	G 0 2 F 1/1333 5 0 0	
G 0 9 F 9/30	G 0 9 F 9/30 3 1 0	
H 0 5 B 33/02	H 0 5 B 33/02	
H 0 5 B 33/14	H 0 5 B 33/14 A	

(72)発明者 伊藤 剛史

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友ベークライト

株式会社内

Fターム(参考) 2H090 JB03 JB12 JD15 JD18 LA04
 3K007 AB11 CA05 CA06 DB03
 4F071 AA42 AA80 AB01 AB28 AC09A AD06 AE02A AE17 AF02 AF30
 AF45 AF62 AH12 AH19 BA03 BB02 BC01 BC10
 4J002 CD021 CD111 CD121 CD141 DE136 DE146 DJ016 DJ056 DL006 EF028
 EF038 EF088 EF127 EQ038 EV238 EV298 FD016 FD147 FD158 GP00
 GP01 GT00
 4J036 AC01 AC08 AD03 AD20 AD21 AJ02 AJ18 DA01 DB15 DB16
 DC19 DD01 FA01 FA05 JA07 JA15
 5C094 AA15 AA33 BA03 BA27 BA43 EB02 FB01 FB02 FB15 JA08
 JA11 JA13 JA20