

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B1)

(11) 特許番号

特許第5480359号  
(P5480359)

(45) 発行日 平成26年4月23日(2014.4.23)

(24) 登録日 平成26年2月21日(2014.2.21)

(51) Int.Cl.

F I

<b>H05B 33/04</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B 33/04	
<b>H01L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B 33/14	A
<b>C08K 5/101</b>	<b>(2006.01)</b>	C08K 5/101	
<b>C08K 5/057</b>	<b>(2006.01)</b>	C08K 5/057	
<b>C08L 57/02</b>	<b>(2006.01)</b>	C08L 57/02	

請求項の数 4 (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2012-281397 (P2012-281397)

(22) 出願日 平成24年12月25日(2012.12.25)

審査請求日 平成25年7月4日(2013.7.4)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000005290

古河電気工業株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

(74) 代理人 100123674

弁理士 松下 亮

(74) 代理人 100122242

弁理士 橋本 多香子

(72) 発明者 石黒 邦彦

東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古

河電気工業株式会社内

(72) 発明者 三枝 哲也

東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古

河電気工業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート、及び画像表示装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

有機エレクトロルミネッセンス素子を封入するための封止層を少なくとも一部に有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートであって、

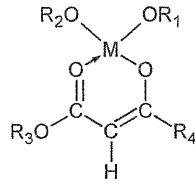
前記封止層は、熱可塑性樹脂と粘着付与樹脂と下記化学式(化1)で示される有機金属化合物とを必須成分として含み、

0.1mm厚みにおける550nmの波長を持つ光に対する光透過率が85%以上であり、

前記化学式(化1)で示される有機金属化合物を除いた酸価をA(mgCH<sub>3</sub>ONa/g)、前記化学式(化1)で示された有機金属化合物の重量平均分子量をM、樹脂成分100重量部に対する前記化学式(化1)で示された有機金属化合物の重量比をYとしたとき、AM/Y < 162の関係性を有し、

前記熱可塑性樹脂がスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート。

## 【化 1】



(式中、R 1 ~ R 4 は炭素数 1 個以上 8 個以下のアルキル基，アリール基，アルコキシ基，シクロアルキル基，アシル基を含む有機基を示し、M は 3 価の金属原子を示す。なお、R 1 ~ R 4 はそれぞれ同じ有機基でも異なる有機基でも良い。)

10

## 【請求項 2】

前記スチレン系 A - B - A 型トリブロック体が、スチレン - エチレン - ブチレン - スチレン共重合体、スチレン - エチレン - プロピレン - スチレン共重合体、スチレン - エチレン - エチレン - プロピレン - スチレン共重合体及びスチレン - イソブチレン - スチレン共重合体の何れか 1 つ又は組み合わせであることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート。

## 【請求項 3】

前記粘着付与樹脂が、C 5 系石油樹脂の水素化物、C 9 系石油樹脂の水素化物、及び C 5 系石油樹脂と C 9 系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂の水素化物の何れか 1 つ又は組み合わせであることを特徴とする請求項 1 または請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート。

20

## 【請求項 4】

少なくとも有機エレクトロルミネッセンス素子と前記有機エレクトロルミネッセンス素子の表面に設けられた封止基板とを有する画像表示装置において、請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートを、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と前記封止基板との間に介在させてなることを特徴とする画像表示装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子の発光面側を封止する際に用いられる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート、及び画像表示装置に関する。

30

## 【背景技術】

## 【0002】

近年、有機エレクトロルミネッセンス(以下、「有機 EL」ともいう)ディスプレイや、有機 EL 照明、更には有機半導体や有機太陽電池等の様々な有機電子デバイスに関する研究が活発に行われており、液晶ディスプレイ(Liquid Crystal Display、LCD)に代わる次世代ディスプレイや、発光ダイオード(Light Emitting Diode、LED)照明に代わる次世代照明として期待されている。更に、有機 EL 素子は全ての構成要素が固形材料から形成できることから、フレキシブルなディスプレイや照明として使用される可能性がある。有機 EL 素子は、ガラス等からなる基板の上に陽極層、発光層及び陰極層が順次形成された構成が基本であり、陽極層と陰極層の間に通電することによって自己発光し、陽極層、陰極層のどちらからも光を取り出すことが出来ることから、有機 EL デバイスの発光方式としてトップエミッション方式と、ボトムエミッション方式が存在する。

40

## 【0003】

しかし、上記有機 EL 素子は、素子の周辺に水分や不純物等が存在すると、ダークスポットと呼ばれる非発光部が発生、成長し、ダークスポットの直径が数 10 μm に成長すると目視で非発光部が確認できるようになり、視認性の悪化につながる事となる。

## 【0004】

50

そこで、有機EL素子を水分や不純物等から遮断するために、ガラス等からなる透明な封止基板（封止缶の場合もある）等が備えられ、有機EL素子と封止基板との間に生じる空間に脱水剤を含む粘性体を充填した有機ELデバイスが開示されているが（例えば、特許文献1参照）、粘性体が充填時にあふれ出さないようにダム材を用いる必要があり、フレキシブルな有機ELデバイスを得ることは出来なかった。

【0005】

フレキシブルな有機ELデバイスを得る為に、熱可塑性樹脂からなる透明封止材で封止する方法が開示されているが（例えば、特許文献2参照）、水分からの遮断効果は十分ではなかった。

【先行技術文献】

10

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2012-038660号公報

【特許文献2】特許第4475084号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

そこで、本発明は、水分に対する十分な遮断効果を有し、柔軟性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート、及び画像表示装置を提供することを目的とする。

20

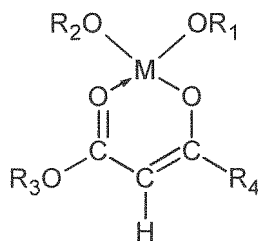
【課題を解決するための手段】

【0008】

上記課題を解決するために、本願発明による有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物は、熱可塑性樹脂と粘着付与樹脂と下記化学式（化1）で示される有機金属化合物とを必須成分として含み、0.1mm厚みにおける550nmの波長を持つ光に対する光透過率が85%以上であり、前記化学式（化1）で示される有機金属化合物を除いた酸価をA（mgCH<sub>3</sub>ONa/g）、前記化学式（化1）で示された有機金属化合物の重量平均分子量をM、樹脂成分100重量部に対する前記化学式（化1）で示された有機金属化合物の重量比をYとしたとき、AM/Y < 162の関係性を有し、前記熱可塑性樹脂がスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物を含むことを特徴とする。

30

【化1】



（式中、R1～R4は炭素数1個以上8個以下のアルキル基，アリール基，アルコキシ基，シクロアルキル基，アシル基を含む有機基を示し、Mは3価の金属原子を示す。なお、R1～R4はそれぞれ同じ有機基でも異なる有機基でも良い。）

40

【0009】

また、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物は、前記スチレン系A-B-A型トリブロック体が、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体、スチレン-エチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体及びスチレン-イソブチレン-スチレン共重合体の何れか1つ又は組み合わせであることが好ましい。

【0010】

また、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物は、前記粘着付与樹脂が、C5系石油樹脂の水素化物、C9系石油樹脂の水素化物、及びC5系石油樹脂と

50

C9系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂の水素化物の何れか1つ又は組み合わせであることが好ましい。

【0011】

また、上記課題を解決するために、本願発明による有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートは、上記いずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物で形成された封止層を少なくとも一部に有することを特徴とする。

【0012】

また、本願発明による画像表示装置は、少なくとも有機エレクトロルミネッセンス素子と前記有機エレクトロルミネッセンス素子の表面に設けられた封止基板とを有する画像表示装置において、請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートを、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と前記封止基板との間に介在させてなることを特徴とする。

【発明の効果】

【0013】

本発明による有機EL素子封止用透明樹脂組成物及び有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートは、吸水性と低透湿性に優れ、有機EL素子を水分から遮断し、ダークスポットの発生を抑制することができる。また、本発明による画像表示装置は、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートにより有機EL素子を水分から遮断することができるため、ダークスポットの発生を抑制し、画像の視認性を良くすることができる。また、本発明による有機EL素子封止用透明樹脂組成物は、柔軟性を有するため、有機EL素子と封止基板の間の空間を充填することが可能であり、封止基板や有機EL素子の素子基板にフレキシブル性を有するものを用いた場合、フレキシブル性を損なわない効果もある。さらに、本発明の有機EL素子封止用透明樹脂組成物は透明性にも優れるため、トップエミッション方式の有機ELデバイスを構成する封止基板等の透明部材と密着した場合にも、その透明性が低下することはない。その結果、有機ELデバイスの発光方式に関わらず使用することができる。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートの構造を模式的に示す断面図である。

【図2】本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートを用いた画像表示装置の構造を模式的に示す断面図である。

【図3】本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シートの使用例を模式的に説明するための説明図である。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下に、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0016】

本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1は、基材シート2の少なくとも片側に、少なくとも1層の封止層3が形成されている。図1は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の好ましい実施態様を示す概略断面図である。図1に示すように、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1は、基材シート2を有しており、基材シート2上には封止層3が形成されている。また、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1は、封止層3上に、封止層3を保護するための離型フィルム4をさらに備えている。

【0017】

以下、本実施形態の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の各構成要素について詳細に説明する。

【0018】

(基材シート2、離型フィルム4)

基材シート2は、封止層3を構成する樹脂組成物をフィルム状にする際、取り扱い性を良くする目的で樹脂組成物を仮着させるものである。また、離型フィルム4は、封止層3を保護する目的で用いられる。

#### 【0019】

基材シート2及び離型フィルム4は、特に制限されず、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリブテンフィルム、ポリブタジエンフィルム、ポリメチルペンテンフィルム、ポリ塩化ビニルフィルム、塩化ビニル共重合体フィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリブチレンテレフタレートフィルム、ポリウレタンフィルム、エチレン・酢酸ビニル共重合体フィルム、アイオノマー樹脂フィルム、エチレン・(メタ)アクリル酸共重合体フィルム、エチレン・(メタ)アクリル酸エステル共重合体フィルム、ポリスチレンフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリイミドフィルム、フッ素樹脂フィルム等が挙げられる。またこれらの架橋フィルムも用いられる。さらにこれらの積層フィルムであってもよい。特にコスト、取り扱い性等の面からポリエチレンテレフタレートを使用することが好ましい。

10

#### 【0020】

基材シート2及び離型フィルム4から封止層3を剥離する際の剥離力の例としては、0.3N/20mm以下であることが好ましく、より好ましくは0.2N/20mmである。剥離力の下限に特に制限はないが、0.005N/20mm以上が実際的である。また、取り扱い性を良くするために、基材シート2と離型フィルム4とで封止層3からの剥離力の異なるものを使用することが好ましい。

20

#### 【0021】

基材シート2及び離型フィルム4の膜厚は、通常は5~300μm、好ましくは10~200μm、特に好ましくは20~100μm程度である。

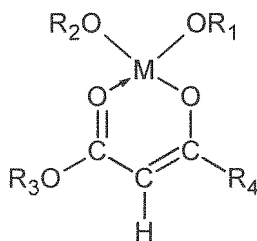
#### 【0022】

##### (封止層3)

封止層3を構成する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用透明樹脂組成物は、熱可塑性樹脂と、粘着付与樹脂と、乾燥剤として下記化学式(化1)で示される有機金属化合物とを必須成分として含む。

30

#### 【化1】



(式中、R1~R4は炭素数1個以上8個以下のアルキル基、アリール基、アルコキシ基、シクロアルキル基、アシル基を含む有機基を示し、Mは3価の金属原子を示す。なお、R1~R4はそれぞれ同じ有機基でも異なる有機基でも良い。)

40

#### 【0023】

##### [熱可塑性樹脂]

熱可塑性樹脂は、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体、スチレン-エチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体及びスチレン-イソブチレン-スチレン共重合体、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体、スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体等のスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物を含有する。熱可塑性樹脂は、一種類のスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物で構成されていてもよいし、複数種類のスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物で構成されていてもよい。また、さらに、他の熱可塑

50

性樹脂を含んでいてもよい。他の熱可塑性樹脂としては、透明性を有するものであれば特に限定されず、シクロオレフィンポリマーやウレタン系熱可塑性エラストマー樹脂、スチレン-ブタジエンブロック共重合体、スチレン-イソプレンブロック共重合体、スチレン-エチレン-ブテンブロック共重合体、スチレン-エチレン-プロピレンブロック共重合体等のジブロック体ゴム系樹脂、及びポリイソブチレンやブタジエン、イソプレン等のゴムなどが挙げられ、これらの水素化物であることが好ましい。

#### 【0024】

スチレン系A-B-A型トリブロック体を含むことにより、有機EL素子6（図2，3参照）との密着性や、粘着付与樹脂の選択肢が広がる。また、水素化物であることにより、透明性、耐候性が向上する。

10

#### 【0025】

これらA-B-A型ブロック共重合体は、そのAブロック部の重量平均分子量が1,000~500,000、000であることが好ましく、Bブロック部の重量平均分子量が15,000~1,000,000であることが好ましい。なお、本発明における重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定によりポリスチレン標準物質を用いて作成した検量線をもとに計算されたものである。

#### 【0026】

上記A-B-A型ブロック共重合体は、スチレン成分が10モル%未満であると粘着性が高すぎ、ゴム弾性を発現しない場合があるので、10モル%以上のものが好ましい。一方、スチレン成分が40モル%を超えると粘着性が弱すぎ、また硬くなりゴム弾性を発現しない場合があるので、40モル%以下のものが好ましい。

20

#### 【0027】

上記A-B-A型ブロック共重合体は、例えば、日本ゼオン株式会社、旭化成ケミカルズ株式会社、株式会社クラレ、JSR株式会社、株式会社カネカ等から上市されており、入手可能である。

#### 【0028】

##### [粘着付与樹脂]

粘着付与樹脂は、適度な粘度と接着性を付与する目的で用いられる。粘着付与樹脂としては、ロジン、ロジン誘導体（水素化ロジン、不均化ロジン、重合ロジン、ロジンエステル（アルコール、グリセリン、ペンタエリスリトールなどのエステル化ロジンなど）、テルペン樹脂（ $\alpha$ -ピネン、 $\beta$ -ピネン）、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、水素化テルペン樹脂、C5系石油樹脂、C9系石油樹脂、C5系石油樹脂とC9系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂、DCPD型石油樹脂、C5系石油樹脂の水素化物、C9系石油樹脂の水素化物、C5系石油樹脂とC9系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂の水素化物、DCPD型石油樹脂の水素化物、クマロン-インデン樹脂、スチレン系樹脂、フェノール樹脂、キシレン樹脂などが挙げられる。

30

#### 【0029】

中でも、C5系石油樹脂の水素化物、C9系石油樹脂の水素化物、C5系石油樹脂とC9系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂の水素化物、DCPD型石油樹脂の水素化物、水素化ロジン系樹脂、及び水素化テルペン系樹脂よりなる群から選択される1種以上が、上述の熱可塑性樹脂と相溶性が良好で、透明性に優れた樹脂組成物を形成できる点から好適に用いられる。これらの中でも、C5系石油樹脂の水素化物、C9系石油樹脂の水素化物、C5系石油樹脂とC9系石油樹脂とを共重合して得られる石油樹脂の水素化物が、水蒸気バリア性能が良好な点から、好適に用いられる。

40

#### 【0030】

上記石油樹脂の水素化物の軟化点は60~150℃が好ましい。60℃を下回ると組成物の凝集力が低下する為高温時の保持特性が低下する。150℃を上回ると組成物の流動性が低下する為封止性が低下する。

#### 【0031】

上記石油樹脂の水素化物は、例えば、荒川化学工業株式会社、出光興産株式会社等から

50

上市されており、入手可能である。

【0032】

[乾燥剤]

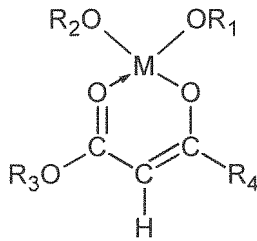
乾燥剤は、樹脂組成物を透過する水分を捕獲する目的で用いられる。水分を捕獲することで有機EL素子6の水分による劣化を抑制することができる。乾燥剤としては、例えば、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化バリウム等の金属酸化物、硫酸マグネシウム、硫酸ナトリウム、硫酸ニッケル等の硫酸塩、アルミニウムエチルアセトアセテート類等の有機金属化合物等が挙げられる。

【0033】

中でも、化1に示す、炭素数が1～8のアルミニウムエチルアセトアセテート類が、透明性に優れた樹脂組成物を形成できる点から好適に用いられる。

10

【化1】



20

(式中、R1～R4は炭素数1個以上8個以下のアルキル基、アリール基、アルコキシ基、シクロアルキル基、アシル基を含む有機基を示し、Mは3価の金属原子を示す。なお、R1～R4はそれぞれ同じ有機基でも異なる有機基でも良い。)

【0034】

上記炭素数が1～8のアルミニウムエチルアセトアセテート類は、例えば、川研ファインケミカル株式会社、ホープ製薬株式会社から上市されており、入手可能である。

【0035】

上記乾燥剤の重量平均分子量をM、樹脂成分100重量部に対する乾燥剤の重量比をY、乾燥剤を除いた有機EL素子封止用透明樹脂組成物の酸価A(mgCH<sub>3</sub>ONa/g)とした時に、AM/Yで計算される値が162未満であると良い。162以上であると調整した有機EL素子封止用透明樹脂組成物が増粘するため、薄膜の樹脂フィルムが得られなくなってしまう。ここで、樹脂成分とは、上記熱可塑性樹脂及び上記粘着付与樹脂の他、可塑剤等、有機EL素子封止用透明樹脂組成物に含まれる全ての樹脂成分である。

30

【0036】

[可塑剤]

有機EL素子封止用透明樹脂組成物は、可塑剤を含んでもよい。可塑剤を導入することで流動性を変更することができる。可塑剤としてはワックス、パラフィン、フタル酸エステル、アジピン酸エステル、ポリブテン等が挙げられる。

【0037】

[その他の添加剤]

40

有機EL素子封止用透明樹脂組成物は、シランカップリング剤を含有してもよい。シランカップリング剤を用いることで被着体への化学結合量が増加し、接着力が向上する。シランカップリング剤としては、具体的には3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、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、N-フェニル-3-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-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピルメチ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-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、N-(2-(ビニルベンジルアミノ)エチル)3-アミノプロピルトリメトキシシラン塩酸塩、3-メタクリロキシ

50

ロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤等が挙げられる。これらのシランカップリング剤は2種類以上を混合してもよい。シランカップリング剤の含有量は、樹脂組成物100質量部に対して0.05~10質量部が好ましく、0.1~1質量部がより好ましい。

#### 【0038】

本発明の目的を達成可能な限り、さらにその他の成分、例えば保存安定剤、酸化防止剤、可塑剤、タック調整剤や樹脂安定剤等を添加することも可能であるが、それらの添加成分中の水分や不純物によって画像表示装置の視認性が悪化する可能性があるため、注意が必要である。

#### 【0039】

有機EL素子封止用透明樹脂組成物は、0.1mm厚みにおける550nmの波長を持つ光に対する光透過率が85%以上である。550nmの光透過率が85%を下回ると視認性が低下するためである。光透過率は樹脂を選定することで選択することが出来る。

#### 【0040】

〔光透過率の測定方法〕

光透過率は分光光度計（日立ハイテクノロジーズ製 分光光度計U-4100型 固体試料測定システム）を用いて透過光の光量を測定し求めることが出来る。

#### 【0041】

有機EL素子封止用透明樹脂組成物は、フィルム状の封止層3を得る際、溶剤を含有してもよい。このような溶剤としては、メチルエチルケトン、トルエン、エタノール、イソプロパノールの有機溶剤が挙げられ、メチルエチルケトン、トルエンが特に好ましい。このような溶剤に樹脂組成物に含まれる個々の素材を加え、混合分散し、得られた樹脂溶液を、基材シート2の剥離面上にロールナイフコーター、グラビアコーター、ダイコーター、リバースコーターなど一般に公知の方法にしたがって直接または転写によって塗工し、乾燥させて封止層3を得ることができる。

#### 【0042】

また、有機溶媒を使用せずにフィルム状の封止層3を得る手法としては、有機EL素子封止用透明樹脂組成物を高温にて溶融させ、ホットメルトコーターなどの一般に公知の手法で押し出し、その後冷却することで封止層3を得ることが出来る。

#### 【0043】

封止層3の厚さは、3~100μmが好ましく、5~50μmがより好ましい。

#### 【0044】

また、封止層3と当該封止層3が接触する貼合対象の表面粗さRaが2μm以下であることがさらに好ましい。この表面粗さが2μmを超えた場合、有機EL素子封止用透明樹脂組成物自体の追従性が高かったとしても、封止層3が貼合対象の表面に追従しきれない可能性が上がってしまう。このため表面粗さが適切な範囲であれば、封止層3と貼合対象とが密着するため、視認性が向上する。貼合対象の表面粗さは研磨や、表面処理によって変えることが出来、封止層3の表面粗さはフィルム状に形成する際に冷却ロールの表面粗さを変えることや離型フィルム4の表面粗さを変えることで変更することが出来る。

#### 【0045】

有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1は、2層以上の封止層3を有してもよく、封止層3以外の層を有してもよい。

#### 【0046】

<使用方法>

次に、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の使用方法について説明する。

#### 【0047】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1は、素子基板5上（図2, 3参照）に設けられた有機EL素子6と封止基板8（図2, 3参照）との間に配設し、有機EL素子6を素子基板5と封止基板8とで気密封止して、固体密着封止構造の各種

10

20

30

40

50



有機電子デバイスを得るために用いられる。有機電子デバイスとしては、有機ELディスプレイ、有機EL照明、有機半導体、有機太陽電池等が挙げられる。

【0048】

以下に、有機電子デバイスの例として、有機ELディスプレイ（画像表示装置）について説明する。有機ELディスプレイ10は、図2に示すように、素子基板5上に設けられた有機EL素子6が、有機EL素子封止用透明樹脂層7を介して封止基板8により封止された状態で筐体9に収納されている。

【0049】

有機EL素子6は、例えば、図2に示すように、ガラス基板等からなる素子基板5上に、導電材料をパターニングして形成された陽極61と、陽極61の上面に積層された有機化合物材料の薄膜による有機層62と、有機層62の上面に積層され透明性を有する導電材料をパターニングして形成された陰極63とを有する。なお、陽極61および陰極63の一部は、素子基板5の端部まで引き出されて図示しない駆動回路に接続されている。有機層62は、陽極61側から順に、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層を積層してなり、発光層は、青色発光層、緑色発光層、赤色発光層を積層してなる。なお、発光層は、青色、緑色、赤色の各発光層間に非発光性の中間層を有していてもよい。

10

【0050】

封止基板8は、有機ELディスプレイ10の表示内容の視認性を大きく阻害することがない性質を有する材料であればよく、例えば、ガラス、樹脂等を用いることができる。

【0051】

20

有機EL素子封止用透明樹脂層7は、上述の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1を用いて形成されたものであり、以下の工程により形成することができる。まず、図3(A)に示すように、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の離型フィルム4を剥離し、図3(B)に示すように、封止層3を封止基板8にロール貼合する。次に、図3(C)に示すように、封止基板8に貼合された有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の基材シート2を剥離する。その後、図3(D)に示すように、封止基板8に貼合された有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の封止層3を有機EL素子6の陰極63側にラミネートする。有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の封止層3が、有機ELディスプレイ10における有機EL素子封止用透明樹脂層7を構成する。

30

【0052】

上記貼合及びラミネートは100以下の温度で行われることが好ましい。100を超えると有機EL素子6の構成材料が劣化し、発光特性が低下するおそれがある。

【0053】

なお、上述の有機EL素子封止用透明樹脂層7の形成工程では、最初に有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1を封止基板8にロール貼合するようにしたが、有機EL素子6に貼合するようにしてもよい。この場合、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート1の基材シート2を剥離した後、封止層3を封止基板8にラミネートすることになる。

【0054】

40

以下、実施例に基づき本発明の構成をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0055】

(実施例1)

熱可塑性樹脂としてスチレン-エチレン-イソブレン-スチレン樹脂（クラレ製、セプトンS2002、スチレン含有率30%）20重量部と、粘着付与樹脂としてC9系水素化石油樹脂（荒川化学工業製、アルコンP100、軟化点100）70重量部と、乾燥剤としてエチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート（川研ファインケミカル製、ALCH、Al含有量9.8%）5重量部と可塑剤としてポリブテン（JX日鉱日石エネルギー製、日石ポリブテンHV-100、40動粘度9500mm<sup>2</sup>/s）を用

50

いた。

上記熱可塑性樹脂成分をトルエンに固形分20重量%となるように調整し攪拌、溶解させ熱可塑性樹脂溶液を作製し、当該熱可塑性樹脂溶液に、上記粘着付与樹脂、乾燥剤、可塑剤を添加した後、トルエンを固形分30重量%となるように調整し、均一な状態になるまで混合攪拌して樹脂混合溶液を得た。

【0056】

基材シートとしての厚み50 $\mu$ mの剥離処理ポリエステルフィルム（帝人デュポンフィルム社製、ピューレックスA-314）の剥離面に、上記で得られた樹脂混合溶液を、厚み50 $\mu$ mになるように塗布した後、130にて3分間加熱乾燥して封止層を形成した。乾燥後の封止層表面を離型フィルムとしての25 $\mu$ mの剥離処理ポリエステルフィルム（東洋紡績製、東洋紡エステルフィルムE7006）の剥離面でラミネートし、厚みが均一な実施例1に係る機EL素子封止用透明樹脂シートを作製した。

10

【0057】

（実施例2～12）

表1に示す配合組成にした以外は実施例1と同様にして、実施例2～12に係る有機EL素子封止用透明樹脂シートを作製した。

【0058】

（比較例1～12）

表2に示す配合組成にした以外は実施例1と同様にして、比較例1～12に係る有機EL素子封止用透明樹脂シートを作製した。尚、比較例4と比較例6では混合攪拌後の樹脂混合溶液においてゲル化が発生した為、その後のフィルム化が不可能であった。

20

【0059】

（原材料）

<熱可塑性樹脂>

A1：セプトンS2002（株式会社クラレ社製：水添スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体）

A2：タフテックH1041（旭化成ケミカルズ株式会社製：水添スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体）

A3：タフテックM1913（旭化成ケミカルズ株式会社製：水添スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体、酸変性物）

30

A4：セプトンS4033（株式会社クラレ社製：水添スチレン-エチレン-エチレン-プロピレン-スチレン共重合体）

A5：SIBSTAR103T（株式会社カネカ社製：水添スチレン-イソブチレン-スチレン共重合体）

A6：Quintac3280（日本ゼオン株式会社製：スチレン-イソブレン-スチレン共重合体）

A7：JSR TR2601（JSR株式会社製：スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体）

A8：Oppanol B15SFN（BASF社製：ポリイソブチレン）

【0060】

40

<粘着付与樹脂>

B1：アルコンP100（荒川化学工業株式会社製：C9系水素化石油樹脂）

B2：アイマーブP100（出光興産株式会社製：C5/C9系水素化石油樹脂）

B3：ペトコール100T（東ソー株式会社製：C9系石油樹脂）

B4：パインクリスタルKE311（荒川化学工業株式会社製：水素化ロジンエステル）

【0061】

<乾燥剤>

C1：ALCH（川研ファインケミカル株式会社製：下記化学式（化2）に示す化合物、分子量274）

C2：ケローブEH-2（ホープ製薬株式会社製：下記化学式（化3）に示す化合物、分

50

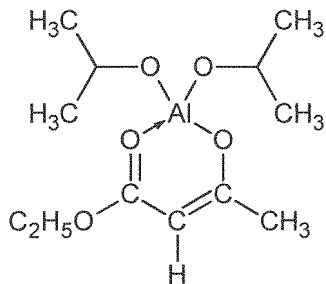
子量 438)

C3：ケロップC10-2（ホープ製薬株式会社製：下記化学式（化4）に示す化合物、分子量470）

C4：アルミキレートM（川研ファインケミカル株式会社製：下記化学式（化5）に示す化合物、分子量490）

【0062】

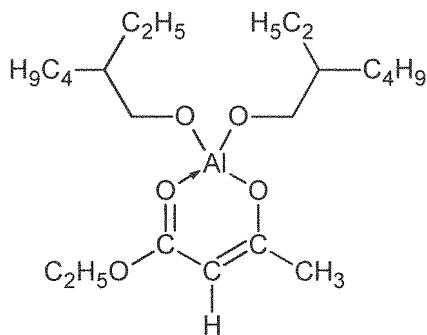
【化2】



10

【0063】

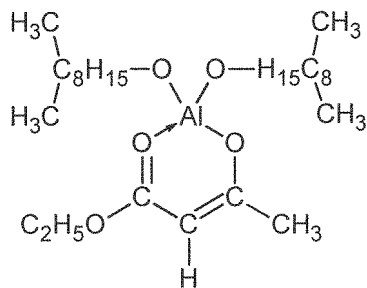
【化3】



20

【0064】

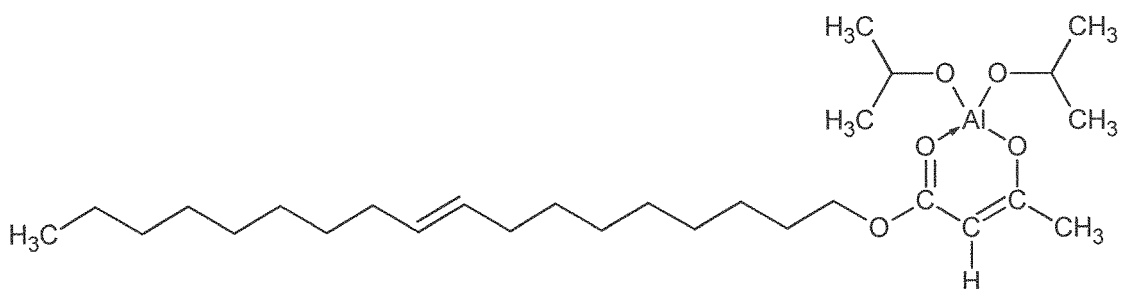
【化4】



30

【0065】

【化5】



40

【0066】

<可塑剤>

D1：日石ポリブテンHV-100（JX日鉱日石エネルギー株式会社製：ポリブテン）

【0067】

50

(評価方法)

以下の評価方法に従い評価を行った。その結果を表1、表2に示す。

【0068】

<酸価>

乾燥剤を除いた樹脂組成物混合溶液をトルエンで固形分30重量%となるように調整した後、各酸変性樹脂1gに対して、ナトリウムメトキシド( $\text{CH}_3\text{ONa}$ )を用いて中和滴定を行ない、用いられるナトリウムメトキシド( $\text{CH}_3\text{ONa}$ )の質量(mg)を酸価として測定した。

【0069】

<AM/Y>

有機EL素子封止用透明樹脂組成物の酸価をA(mg $\text{CH}_3\text{ONa}$ /g)、乾燥剤の分子量をM、樹脂成分100重量部に対する乾燥剤の重量比をYとしたときのAM/Yを算出した。

【0070】

<溶液安定性>

全成分の混合攪拌後の樹脂混合溶液を23℃で1時間静置した後、線径0.6mm×16メッシュのステンレス製メッシュで濾過したときのゲル化の有無について目視評価した。メッシュ上にゲル状物が確認されたものを×、確認されなかったものを○とした。

【0071】

<光透過率>

有機EL素子封止用透明樹脂組成物の光透過率を、分光光度計(日立ハイテクノロジーズ製 分光光度計U-4100型 固体試料測定システム)を用いて求めた。具体的には、0.1mm厚みまで80%で貼り合わせて調整した有機EL素子封止用透明樹脂シートを作製し、25℃での550nmの透過光量を求めた。

【0072】

<接着力>

調整した有機EL素子封止用透明樹脂シートの25μmの剥離処理ポリエステルフィルムを剥離し、38μmの易接着処理ポリエステルフィルム(帝人デュボンフィルム社製、G2-C)を80%で貼合した後、50μmの剥離処理ポリエステルフィルムを剥離して試験片とした。得られた試験片の封止層の表面に、JIS R3202に準拠したガラスを被着体として貼合温度80℃で貼合し、JIS Z0237に準拠し180°引き剥がし法にて被着体から試験片を剥離して接着力を評価した。

【0073】

<保持力>

上記接着力評価と同様に試験片を作製し、得られた試験片の封止層の表面に、JIS R3202に準拠したガラスを被着体として貼合温度80℃で貼合して、JIS Z0237に準拠し、規定されたおもりを取り付け、100gにおける24時間経過後のずれた距離を保持力として評価した。なお、24時間以内に試験片が剥がれ落ちてしまった場合は、「>25」とした。

【0074】

<ダークスポット>

絶縁性透明ガラスからなる素子基板の上に、陽極を有し、その上面に有機層、更にその上面に陰極を有する有機EL素子を作製した。次いで、調整した有機EL素子封止用透明樹脂シートの25μmの剥離処理ポリエステルフィルムを剥離し、上記有機EL素子の上記陰極の上面に配置した。その後、有機EL素子封止用透明樹脂シートの50μmの剥離処理ポリエステルフィルムを剥離し、封止基板として絶縁性透明ガラスを有機EL素子封止用透明樹脂シートの封止層の上面に配置して減圧下80Paにおいて0.6MPaの圧力で1分間加圧し、有機ELディスプレイのモデルを作製した。

次に、上記モデルを、80%RHで500時間処理し、その後、室温(25℃)まで冷却した後、有機EL素子を起動させ、ダークスポット(非発光箇所)を観察した。

10

20

30

40

50

ダークスポットの面積が全体に対して5%未満の場合をダークスポットの発生抑制に優れるとして「○」、5%以上の場合をダークスポットの発生抑制に劣るとして「×」とした。

【0075】

【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	実施例12
熱可塑性樹脂A [重量部]	A1	20	20					30	20			
	A2			20		10						
	A3				20	10				20	20	20
	A4						20					
	A5							20				
	A6											
	A7											
	A8											
粘着付与樹脂B [重量部]	B1	70		70	70	70	70	70	50	70	70	70
	B2		70									
	B3											
	B4											
乾燥剤C [重量部]	C1	5	5	5	5	5	5	5			3.5	10
	C2								10	10		
	C3											
	C4											
可塑剤D [重量部]	D1	10	10	10	10	10	10	20	10	10	10	10
酸価 [mgCH <sub>3</sub> ONa/g]	0.0	0.0	0.0	2.0	1.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.0	2.0	2.0
AM/Y	0	0	0	110	55	0	0	0	0	88	157	55
光透過率 [%]	92	92	92	90	91	92	92	92	90	88	90	88
溶液安定性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
接着力 [N/25mm]	10	11	9.5	17	15	11	12	14	11.5	18	15	18.5
保持力 [mm]	3	2.7	3	3.3	3.3	4	3.8	4.5	2.5	3	3.2	2.7
ダークスポット	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

10

20

【0076】

【表2】

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11
熱可塑性樹脂A [重量部]	A1				20	20	20	20	20	20	50
	A2										
	A3			20							
	A4										
	A5										
	A6	20									
	A7		20								
	A8			30							
粘着付与樹脂B [重量部]	B1	70	70	70	70		70	70	70	80	
	B2										
	B3					70					
	B4						70				
乾燥剤C [重量部]	C1	5	5	5	3	5	5			5	5
	C2										
	C3							5			
	C4								5		
可塑剤D [重量部]	D1	10	10		10	10	10	10	10	20	50
酸価 [mgCH <sub>3</sub> ONa/g]	0.0	0.0	0.0	2.0	0.0	7.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
AM/Y	0	0	0	183	0	384	-	0	0	0	0
光透過率 [%]	81	83	92	-	82	-	92	70	50	92	91
溶液安定性	○	○	○	×	○	×	○	○	○	○	○
接着力 [N/25mm]	11.5	10	9	-	10	-	9	10	10	0.2	4
保持力 [mm]	3.5	3.5	>25	-	3	-	3.5	3	3	>25	>25
ダークスポット	×	×	×	-	○	-	×	○	○	×	×

30

40

【0077】

実施例1～12は、熱可塑性樹脂と粘着付与樹脂と化学式(化1)で示される有機金属化合物とを必須成分として含み、0.1mm厚みにおける550nmの波長を持つ光に対する光透過率が85%以上であり、AM/Y<162の関係を有し、熱可塑性樹脂がスチレン系A-B-A型トリブロック体の水素化物を含むため、溶液安定性、接着力、保持力、ダークスポットのすべての特性において、良好な結果となった。

【0078】

これに対して、比較例1,2は、スチレン系A-B-A型トリブロック体が水素化されていないため、耐候性が低くダークスポットが発生し、また光透過率も85%未満となっ

50

た。また、比較例 3 は、熱可塑樹脂がスチレントリブロックではないため、凝集力が低く保持力が劣る結果、ダークスポット試験雰囲気（85、85%）で封止基板がずれ有機 EL 素子が露出するためダークスポットが発生した。比較例 4、6 は、AM/Y が 162 以上であるため、有機 EL 素子封止用透明樹脂組成物のワニスゲル化してシート化することができなかった。比較例 5 は、粘着付与樹脂が水素化されていないため、透明性が低下し光透過率が 85% 未満となった。比較例 7 は、化学式（化 1）で示される有機金属化合物が含まれていないため、ダークスポットの成長が確認された。比較例 8、9 は、有機金属化合物の 8 個を超えるため、透明性が低下し光透過率が 85% 未満となった。比較例 10 は、熱可塑樹脂が含まれていないため、接着力および保持力が低い結果、ダークスポット試験雰囲気（85、85%）で封止基板がずれ有機 EL 素子が露出するためダークスポットが発生した。比較例 11 は、粘着付与樹脂が含まれていないため、凝集力が低く保持力が劣る結果、ダークスポット試験雰囲気（85、85%）で封止基板がずれ有機 EL 素子が露出するためダークスポットが発生した。

10

## 【符号の説明】

## 【0079】

- 1：有機エレクトロルミネッセンス素子封止用樹脂シート
- 2：基材シート
- 3：封止層
- 4：離型フィルム
- 5：素子基板
- 6：有機 EL 素子
- 61：陽極
- 62：有機層
- 63：陰極
- 7：有機 EL 素子封止用透明樹脂層
- 8：封止基板
- 9：筐体
- 10：有機 EL ディスプレイ

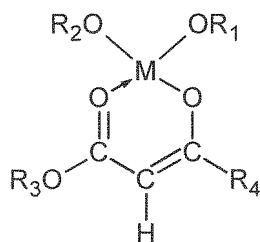
20

## 【要約】（修正有）

【課題】十分な水分遮断効果を有し、柔軟性に優れた有機 EL 素子封止用透明樹脂組成物、有機 EL 素子封止用樹脂シート、及び画像表示装置を提供する。

30

【解決手段】熱可塑性樹脂と粘着付与樹脂と下記化学式で示される有機金属化合物とを必須成分として含み、0.1mm 厚みにおける 550nm の波長に対する光透過率が 85% 以上で、有機金属化合物を除いた酸価を A、有機金属化合物の重量平均分子量を M、樹脂成分 100 重量部に対する重量比を Y としたとき、 $AM/Y < 162$  の関係を有し、熱可塑性樹脂がスチレン系 A-B-A 型トリブロック体の水素化物を含むことを特徴とする。

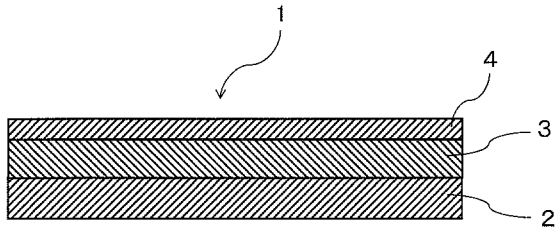


40

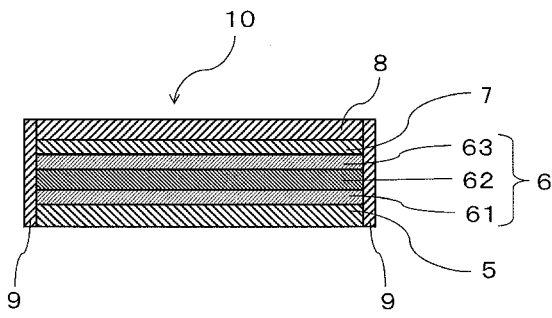
（式中、R1～R4 は炭素数 1 個以上 8 個以下のアルキル基，アリアル基，アルコキシ基，シクロアルキル基，アシル基を含む有機基を示し、M は 3 価の金属原子を示す。なお、R1～R4 はそれぞれ同じ有機基でも異なる有機基でも良い。）

【選択図】なし

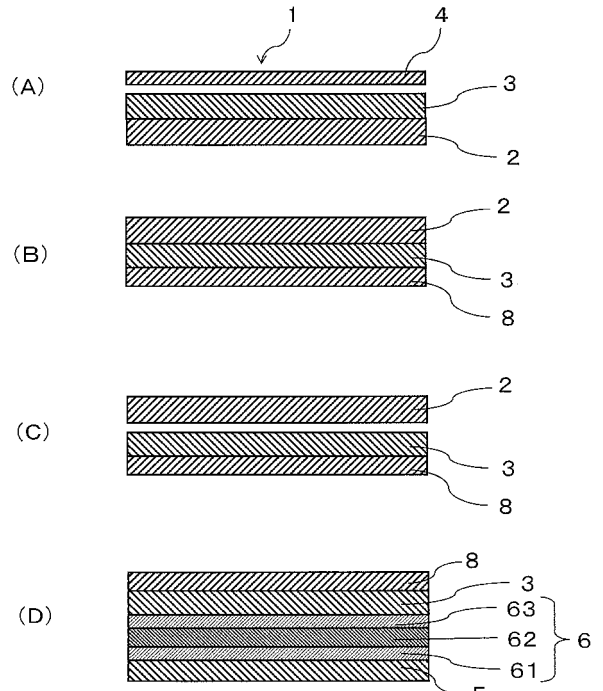
【図1】



【図2】



【図3】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I
<b>C 0 8 L 53/00 (2006.01)</b>		C 0 8 L 53/00
<b>G 0 9 F 9/30 (2006.01)</b>		G 0 9 F 9/30 3 6 5 Z
<b>H 0 1 L 27/32 (2006.01)</b>		

(72)発明者 齋藤 恵司  
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 青山 真沙美  
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 中村 俊光  
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 三原 尚明  
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

(72)発明者 浅沼 匠  
東京都千代田区丸の内2丁目2番3号 古河電気工業株式会社内

審査官 越河 勉

(56)参考文献 特開2010-080293(JP,A)  
特開2003-144830(JP,A)  
特開2003-142256(JP,A)  
特開2012-038660(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H 0 5 B 3 3 / 0 4  
C 0 8 K 5 / 0 5 7  
C 0 8 K 5 / 1 0 1  
C 0 8 L 5 3 / 0 0  
C 0 8 L 5 7 / 0 2  
H 0 1 L 5 1 / 5 0