



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 113646171 A

(43) 申请公布日 2021. 11. 12

(21) 申请号 202080025129.1

(22) 申请日 2020.03.27

(30) 优先权数据

2019-063027 2019.03.28 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2021.09.27

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2020/013978 2020.03.27

(87) PCT国际申请的公布数据

W02020/196826 JA 2020.10.01

(71) 申请人 味之素株式会社

地址 日本东京都中央区京桥一丁目15-1

(72) 发明人 奥野真奈美 久保有希

(74) 专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司 72001

代理人 卢曼 梅黎

(51) Int.Cl.

*B32B 27/20* (2006.01)

*B32B 27/32* (2006.01)

*C08L 23/00* (2006.01)

*C08L 101/12* (2006.01)

*C08K 3/26* (2006.01)

*C08K 7/00* (2006.01)

*H05B 33/04* (2006.01)

*H01L 51/50* (2006.01)

权利要求书1页 说明书18页

(54) 发明名称

树脂组合物及树脂片材

(57) 摘要

本发明提供能发挥更高的水分阻隔性、适合于形成有机EL元件等发光元件、高亮度LED等光半导体、太阳能电池等受光元件等的密封部的树脂组合物。树脂组合物,其含有下述的(A)~(C)成分:(A)热塑性树脂;(B)吸湿性填料;及(C)板状填料,所述树脂组合物的含水率为1500ppm以下。

1. 一种树脂组合物,其含有下述的(A)~(C)成分:
  - (A) 热塑性树脂、
  - (B) 吸湿性填料、及
  - (C) 板状填料,所述树脂组合物的含水率为1500ppm以下。
2. 根据权利要求1所述的树脂组合物,其中,(A)热塑性树脂为聚烯烃系树脂。
3. 根据权利要求1或2所述的树脂组合物,其中,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,(B)吸湿性填料的含量为10质量%以上且80质量%以下。
4. 根据权利要求1~3中任一项所述的树脂组合物,其中,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,(C)板状填料的含量为10质量%以上且80质量%以下。
5. 根据权利要求1~4中任一项所述的树脂组合物,其中,(B)吸湿性填料与(C)板状填料的质量比、即吸湿性填料:板状填料为10:1~1:5。
6. 根据权利要求1~5中任一项所述的树脂组合物,其中,(B)吸湿性填料为半煅烧水滑石。
7. 根据权利要求1~6中任一项所述的树脂组合物,其中,(C)板状填料为选自板状玻璃、未煅烧水滑石、蒙皂石及合成氟金云母中的至少一种。
8. 根据权利要求1~7中任一项所述的树脂组合物,其中,(C)板状填料的平均粒径厚度比为2以上。
9. 一种树脂片材,其具有:
  - 支承体、和设置于该支承体上的包含权利要求1~8中任一项所述的树脂组合物的树脂组合物层。
10. 根据权利要求9所述的树脂片材,其用于密封电子器件。
11. 根据权利要求9所述的树脂片材,其用于密封有机EL器件。
12. 一种电子器件,其被权利要求9所述的树脂片材密封。
13. 一种有机EL器件,其被权利要求9所述的树脂片材密封。

## 树脂组合物及树脂片材

### 技术领域

[0001] 本发明涉及树脂组合物及树脂片材,涉及适合于电子元件、尤其是有机EL (Electroluminescence) 元件等发光元件、高亮度LED等光半导体、太阳能电池等受光元件等的密封的树脂组合物及树脂片材。

### 背景技术

[0002] 有机EL元件是在发光材料中使用了有机物质的发光元件,在低电压下能得到高亮度的发光,因此,近年来受到关注。然而,有机EL元件对于水分的耐性非常弱,存在下述问题:发光材料(发光层)由于水分而发生变质,亮度下降,或者,变得不发光,或者,电极与发光层的界面由于水分的影响而发生剥离,或者,金属发生氧化,成为高电阻。因此,为了将元件内部与外部气体中的水分阻隔,例如,进行了下述操作:以覆盖形成于基板上的发光层的整面的方式,由树脂组合物形成密封层并将有机EL元件密封。

[0003] 作为适合于这样的有机EL元件的密封用途的树脂组合物,在树脂组合物中含有吸湿填料的树脂组合物是已知的。例如,专利文献1中,公开了包含吸湿性的金属氢氧化物的密封用树脂组合物及由支承体和利用该密封用树脂组合物形成的树脂组合物层构成的密封用片材。另外,专利文献2中,公开了具备“包含吸湿填料的吸湿树脂组合物层”和“不包含吸湿填料或吸湿填料添加量少的保护树脂组合物层”作为树脂组合物层的、适用于密封有机EL元件的膜。

[0004] 现有技术文献

专利文献

专利文献1:国际公开第2017/057708号

专利文献2:国际公开第2011/016408号。

### 发明内容

[0005] 发明所要解决的课题

这些树脂片材利用包含吸湿性填料的吸湿性层,吸收外部气体中的水分,保护有机EL元件免受水分侵害,但新出现了吸湿填料捕捉的水分随时间经过而到达有机EL元件、引起劣化这样的课题,因此,不能说一定足以应对有机EL元件等需要高水分阻隔性(防潮性)的部位的密封用途。

[0006] 本发明是鉴于上述这样的情况而作出的,其所要解决的课题在于提供能发挥更高的水分阻隔性的适合于密封用途的树脂组合物及树脂片材。

[0007] 用于解决课题的手段

本发明人等为了解决上述的课题而进行了深入研究,结果发现,通过在热塑性树脂中配合吸湿性填料及板状填料,并且使含水率为规定的范围,能解决前述课题,从而完成了本发明。即,本发明包括具有以下特征的方案:

[1]树脂组合物,其含有下述的(A)~(C)成分:

- (A) 热塑性树脂;
- (B) 吸湿性填料;及
- (C) 板状填料,

所述树脂组合物的含水率为1500ppm以下;

[2]如[1]所述的树脂组合物,其中,(A)热塑性树脂为聚烯烃系树脂;

[3]如[1]或[2]所述的树脂组合物,其中,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,(B)吸湿性填料的含量为10质量%以上且80质量%以下;

[4]如[1]~[3]中任一项所述的树脂组合物,其中,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,(C)板状填料的含量为10质量%以上且80质量%以下;

[5]如[1]~[4]中任一项所述的树脂组合物,其中,(B)吸湿性填料与(C)板状填料的质量比(吸湿性填料:板状填料)为10:1~1:5;

[6]如[1]~[5]中任一项所述的树脂组合物,其中,(B)吸湿性填料为半煅烧水滑石;

[7]如[1]~[6]中任一项所述的树脂组合物,其中,(C)板状填料为选自板状玻璃、未煅烧水滑石、蒙皂石(smectite)及合成氟金云母中的至少1种;

[8]如[1]~[7]中任一项所述的树脂组合物,其中,(C)板状填料的平均粒径厚度比为2以上;

[9]树脂片材,其具有支承体、和设置于该支承体上的包含[1]~[8]中任一项所述的树脂组合物的树脂组合物层;

[10]如[9]所述的树脂片材,其用于密封电子器件;

[11]如[9]所述的树脂片材,其用于密封有机EL器件;

[12]电子器件,其被[9]所述的树脂片材密封;

[13]有机EL器件,其被[9]所述的树脂片材密封。

#### [0008] 发明的效果

根据本发明,可提供可发挥更高的水分阻隔性、适合于有机EL元件等发光元件、高亮度LED等光半导体、太阳能电池等受光元件等的密封用途的树脂组合物及树脂片材。

### 具体实施方式

[0009] 以下,按照其优选的实施方式来说明本发明;

[树脂组合物]

对于本发明的树脂组合物而言,作为必需成分,含有(A)热塑性树脂、(B)吸湿性填料及(C)板状填料,所述树脂组合物的含水率为1500ppm以下。

[0010] <(A)热塑性树脂>

本发明中使用的热塑性树脂(以下,也称为(A)成分)可以没有特别限制地使用,可举出例如聚烯烃系树脂、聚酯树脂、环烯烃树脂、苯氧基树脂、聚乙烯醇缩醛树脂、聚酰亚胺树脂、聚酰胺酰亚胺树脂、聚醚砜树脂、聚砜树脂、(甲基)丙烯酸系树脂等。这些中,从粘接性、粘接湿热耐性方面考虑,优选聚烯烃系树脂。这些热塑性树脂可以仅使用1种,也可并用2种以上。

[0011] (聚烯烃系树脂)

作为本发明中可使用的聚烯烃系树脂,没有特别限制,只要具有来自烯烃单体的骨架即可。作为公知的聚烯烃系树脂,可举出例如专利文献1及2中记载的聚烯烃系树脂。作为聚烯烃系树脂,优选聚乙烯系树脂、聚丙烯树脂、聚丁烯树脂、聚异丁烯树脂。这些聚烯烃系树脂可以是均聚物,也可以是无规共聚物、嵌段共聚物等共聚物。作为共聚物,可举出2种以上的烯烃的共聚物、及烯烃与非共轭二烯、苯乙烯等除烯烃以外的单体的共聚物。作为优选的共聚物的例子,可举出乙烯-非共轭二烯共聚物、乙烯-丙烯共聚物、乙烯-丙烯-非共轭二烯共聚物、乙烯-丁烯共聚物、丙烯-丁烯共聚物、丙烯-丁烯-非共轭二烯共聚物、苯乙烯-异丁烯共聚物、苯乙烯-异丁烯-苯乙烯共聚物等。作为聚烯烃系树脂,例如可优选使用国际公开2011/62167号中记载的异丁烯改性树脂、国际公开2013/108731号中记载的苯乙烯-异丁烯改性树脂等。

[0012] 从赋予粘接性、粘接湿热耐性等优异的物性的观点考虑,聚烯烃系树脂优选包含具有酸酐基(即羰基氧基羰基(-CO-O-CO-))的聚烯烃系树脂及/或具有环氧基的聚烯烃系树脂。作为酸酐基,可举出例如来自琥珀酸酐的基团、来自马来酸酐的基团、来自戊二酸酐的基团等。酸酐基可具有1种或2种以上。具有酸酐基的聚烯烃系树脂例如可通过在自由基反应条件下、用具有酸酐基的不饱和化合物将聚烯烃系树脂接枝改性而得到。另外,可将具有酸酐基的不饱和化合物与烯烃等一起进行自由基共聚。同样地,具有环氧基的聚烯烃系树脂例如可通过在自由基反应条件下、用(甲基)丙烯酸缩水甘油酯、4-羟基丁基丙烯酸酯缩水甘油醚、烯丙基缩水甘油醚等具有环氧基的不饱和化合物、将聚烯烃系树脂接枝改性而得到。另外,也可将具有环氧基的不饱和化合物与烯烃等一起进行自由基共聚。聚烯烃系树脂可使用1种或2种以上,也可将具有酸酐基的聚烯烃系树脂和具有环氧基的聚烯烃系树脂并用。

[0013] 具有酸酐基的聚烯烃系树脂中的酸酐基的浓度优选为0.05~10mmol/g,更优选为0.1~5mmol/g。酸酐基的浓度可由按照JIS K 2501的记载、作为将在1g树脂中存在的酸中和所需要的氢氧化钾的mg数而定义的酸值的值得到。另外,聚烯烃系树脂中的具有酸酐基的聚烯烃系树脂的量优选为0~70质量%,更优选为10~50质量%。

[0014] 另外,具有环氧基的聚烯烃系树脂中的环氧基的浓度优选为0.05~10mmol/g,更优选为0.1~5mmol/g。环氧基浓度可由基于JIS K 7236-1995得到的环氧基当量求出。另外,聚烯烃系树脂中的具有环氧基的聚烯烃系树脂的量优选为0~70质量%,更优选为10~50质量%。

[0015] 对于聚烯烃系树脂而言,从赋予耐透湿性等优异的物性的观点考虑,特别优选包含具有酸酐基的聚烯烃系树脂及具有环氧基的聚烯烃系树脂这两者。对于这样的聚烯烃系树脂而言,可通过加热使酸酐基与环氧基反应而形成交联结构,从而形成耐透湿性等优异的密封层。交联结构的形成也可在密封后进行,但例如在为有机EL元件等对于热的耐性弱的密封对象的情况下,优选使用密封膜进行密封,在制造该密封膜时预先形成交联结构。具有酸酐基的聚烯烃系树脂与具有环氧基的聚烯烃系树脂的比例没有特别限制,只要能形成适当的交联结构即可,环氧基与酸酐基的摩尔比(环氧基:酸酐基)优选为100:10~100:200,更优选为100:50~100:150,特别优选为100:90~100:110。

[0016] 聚烯烃系树脂的数均分子量没有特别限制,从带来树脂组合物的清漆的良好的涂布性和与树脂组合物中的其他成分的良好相容性这样的观点考虑,优选为1,000,000以

下,更优选为750,000以下,更进一步优选为500,000以下,进一步优选为400,000以下,进而进一步优选为300,000以下,特别优选为200,000以下,最优选为150,000以下。另一方面,从防止涂布树脂组合物的清漆时的涂膜凹陷(ハジキ)、使形成的树脂组合层呈现耐透湿性、提高机械强度这样的观点考虑,该数均分子量优选为1,000以上,更优选为3,000以上,更进一步优选为5,000以上,进一步优选为10,000以上,进而进一步优选为30,000以上,特别优选为50,000以上。需要说明的是,本发明中的数均分子量可利用凝胶渗透色谱法(GPC)(按照聚苯乙烯换算)测定。对于利用GPC法得到的数均分子量而言,具体而言,使用株式会社岛津制作所制LC-9A/RID-6A作为测定装置,使用昭和电工公司制Shodex K-800P/K-804L/K-804L作为柱,使用甲苯等作为流动相,于柱温40℃进行测定,使用标准聚苯乙烯的标准曲线来计算。

[0017] 从抑制因清漆的增稠而导致的流动性的下降的观点考虑,本发明中的聚烯烃系树脂优选为非晶性。此处,所谓非晶性,是指聚烯烃系树脂不具有明确的熔点,例如,可使用在利用聚烯烃系树脂的DSC(差示扫描量热测定)测定熔点时、观察不到明确的峰的聚烯烃系树脂。

[0018] 接下来,说明聚烯烃系树脂的具体例。作为聚异丁烯树脂的具体例,可举出BASF公司制“OPPANOL B100”(粘均分子量:1,110,000)、BASF公司制“B50SF”(粘均分子量:400,000)。

[0019] 作为聚丁烯系树脂的具体例,可举出:JX能源(JXエネルギー)公司制“HV-1900”(聚丁烯,数均分子量:2,900)、东邦化学工业公司制“HV-300M”(马来酸酐改性液态聚丁烯(“HV-300”(数均分子量:1,400)的改性品)、数均分子量:2,100,构成酸酐基的羧基的数目:3.2个/1分子,酸值:43.4mgKOH/g,酸酐基浓度:0.77mmol/g)。

[0020] 作为苯乙烯-异丁烯共聚物的具体例,可举出:KANEKA公司制“SIBSTAR T102”(苯乙烯-异丁烯-苯乙烯嵌段共聚物,数均分子量:100,000,苯乙烯含量:30质量%),星光PMC公司制“T-YP757B”(马来酸酐改性苯乙烯-异丁烯-苯乙烯嵌段共聚物,酸酐基浓度:0.464mmol/g,数均分子量:100,000),星光PMC公司制“T-YP766”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性苯乙烯-异丁烯-苯乙烯嵌段共聚物,环氧基浓度:0.638mmol/g,数均分子量:100,000),星光PMC公司制“T-YP8920”(马来酸酐改性苯乙烯-异丁烯-苯乙烯共聚物,酸酐基浓度:0.464mmol/g,数均分子量:35,800),星光PMC公司制“T-YP8930”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性苯乙烯-异丁烯-苯乙烯共聚物,环氧基浓度:0.638mmol/g,数均分子量:48,700)。

[0021] 作为聚乙烯系树脂或聚丙烯系树脂的具体例,可举出:三井化学公司制“EPT X-3012P”(乙烯-丙烯-5-乙叉-2-降冰片烯共聚物)、三井化学公司制“EPT1070”(乙烯-丙烯-二环戊二烯共聚物)、三井化学公司制“TAFMERA4085”(乙烯-丁烯共聚物)。

[0022] 作为丙烯-丁烯系共聚物的具体例,可举出:星光PMC公司制“T-YP341”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物,相对于丙烯单元和丁烯单元的合计100质量%而言的丁烯单元的量:29质量%,环氧基浓度:0.638mmol/g,数均分子量:155,000),星光PMC公司制“T-YP279”(马来酸酐改性丙烯-丁烯无规共聚物,相对于丙烯单元和丁烯单元的合计100质量%而言的丁烯单元的量:36质量%,酸酐基浓度:0.464mmol/g,数均分子量:35,000),星光PMC公司制“T-YP276”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物,相对于丙烯单元和丁烯单元的合计100质量%而言的丁烯单元的量:36质量%,环氧基浓度:

0.638mmol/g,数均分子量:57,000),星光PMC公司制“T-YP312”(马来酸酐改性丙烯-丁烯无规共聚物,相对于丙烯单元和丁烯单元的合计100质量%而言的丁烯单元的量:29质量%,酸酐基浓度:0.464mmol/g,数均分子量:60,900),星光PMC公司制“T-YP313”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物,相对于丙烯单元和丁烯单元的合计100质量%而言的丁烯单元的量:29质量%,环氧基浓度:0.638mmol/g,数均分子量:155,000),星光PMC公司制“T-YP429”(马来酸酐改性乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物,相对于乙烯单元和甲基丙烯酸甲酯单元的合计100质量%而言的甲基丙烯酸甲酯单元的量:32质量%,酸酐基浓度:0.46mmol/g,数均分子量:2,300),星光PMC公司制“T-YP430”(马来酸酐改性乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物,相对于乙烯单元和甲基丙烯酸甲酯单元的合计100质量%而言的甲基丙烯酸甲酯单元的量:32质量%,酸酐基浓度:1.18mmol/g,数均分子量:4,500),星光PMC公司制“T-YP431”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物,环氧基浓度:0.64mmol/g,数均分子量:2,400),星光PMC公司制“T-YP432”(甲基丙烯酸缩水甘油酯改性乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物,环氧基浓度:1.63mmol/g,数均分子量:3,100)。

[0023] 本发明的树脂组合物中的(A)成分的含量没有特别限制。然而,从带来良好的涂布性和相容性、能确保良好的湿热耐久性和处理性(抑制粘着)这样的观点考虑,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,该含量优选为80质量%以下,更优选为75质量%以下,更进一步优选为70质量%以下,进一步优选为60质量%以下,进而进一步优选为55质量%以下,特别优选为50质量%以下。另一方面,从提高耐透湿性、也提高透明性这样的观点考虑,相对于树脂组合物中的不挥发成分100质量%,该含量优选为1质量%以上,更优选为3质量%以上,更进一步优选为5质量%以上,进一步优选为7质量%以上,进而进一步优选为10质量%以上,特别优选为35质量%以上,最优选为40质量%以上。

[0024] <(B)吸湿性填料>

本发明中使用的吸湿性填料(以下,也称为(B)成分)没有特别限制,只要是具有吸湿性的填料即可,可举出例如氧化钙、氧化镁、煅烧水滑石等金属氧化物、半煅烧水滑石等层状金属氢氧化物等。作为吸湿性填料,优选煅烧水滑石、半煅烧水滑石、氧化钙,特别优选半煅烧水滑石。半煅烧水滑石虽然吸湿性能优异,但因捕捉水分而导致的有机EL元件的劣化问题也显著,但本发明中,通过板状填料能抑制捕捉水分到达有机EL元件,因此,能充分发挥半煅烧水滑石的吸湿性能,由此,能得到从水分阻隔性的观点考虑特别优选的树脂组合物。这些吸湿性填料可以仅单独使用1种,也可并用2种以上。本发明中的吸湿性填料为后文中定义的饱和吸水率为1质量%以上的填料。

[0025] 未煅烧水滑石例如为以天然水滑石( $Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$ )为代表的那样的具有层状的晶体结构的金属氢氧化物,例如,由成为基本骨架的层 $[Mg_{1-x}Al_x(OH)_2]^{x+}$ 和中间层 $[(CO_3)_{x/2} \cdot mH_2O]^{x-}$ 形成。本发明中的未煅烧水滑石是包含合成水滑石等的类水滑石化合物的概念。作为类水滑石化合物,可举出例如下述式(I)及下述式(II)表示的化合物。

[0026]  $[M^{2+}_{1-x}M^{3+x}(OH)_2]^{x+} \cdot [(A^{n-})_{x/n} \cdot mH_2O]^{x-}$  (I)

(式中, $M^{2+}$ 表示 $Mg^{2+}$ 、 $Zn^{2+}$ 等2价的金属离子, $M^{3+}$ 表示 $Al^{3+}$ 、 $Fe^{3+}$ 等3价的金属离子, $A^{n-}$ 表示 $CO_3^{2-}$ 、 $Cl^-$ 、 $NO_3^-$ 等n价的阴离子, $0 < x < 1$ , $0 \leq m < 1$ ,n为正数。)

式(I)中, $M^{2+}$ 优选为 $Mg^{2+}$ , $M^{3+}$ 优选为 $Al^{3+}$ , $A^{n-}$ 优选为 $CO_3^{2-}$ 。

[0027]  $M^{2+}_xAl_2(OH)_{2x+6-nz}(A^{n-})_z \cdot mH_2O$  (II)

(式中,  $M^{2+}$  表示  $Mg^{2+}$ 、 $Zn^{2+}$  等2价的金属离子,  $A^{n-}$  表示  $CO_3^{2-}$ 、 $Cl^-$ 、 $NO_3^-$  等n价的阴离子, x 为2以上的正数, z为2以下的正数, m为正数, n为正数。)

式(II)中,  $M^{2+}$  优选为  $Mg^{2+}$ ,  $A^{n-}$  优选为  $CO_3^{2-}$ 。

[0028] 半煅烧水滑石是指将未煅烧水滑石煅烧而得到的、层间水的量减少或消失的具有层状的晶体结构的金属氢氧化物。所谓“层间水”, 若使用组成式来说明, 是指上述的未煅烧的天然水滑石及类水滑石化合物的组成式中记载的“ $H_2O$ ”。

[0029] 另一方面, 煅烧水滑石是指将未煅烧水滑石或半煅烧水滑石煅烧而得到的、不仅层间水消失、而且羟基也通过缩合脱水而消失的、具有非晶结构的金属氧化物。

[0030] 未煅烧水滑石、半煅烧水滑石及煅烧水滑石可通过饱和吸水率来区分。半煅烧水滑石的饱和吸水率为1质量%以上且低于20质量%。另一方面, 未煅烧水滑石的饱和吸水率低于1质量%, 煅烧水滑石的饱和吸水率为20质量%以上。

[0031] 本发明中所谓的“饱和吸水率”, 是指: 用天平称取1.5g的未煅烧水滑石、半煅烧水滑石或煅烧水滑石, 测定初始质量后, 在已设定为大气压下、温度60℃、相对湿度90%的小型环境试验器(ESPEC公司制SH-222)中静置200小时后的、相对于初始质量而言的质量增加率, 可利用下述式(i)求出:

饱和吸水率(质量%) =  $100 \times (\text{吸湿后的质量} - \text{初始质量}) / \text{初始质量}$  (i)。

[0032] 半煅烧水滑石的饱和吸水率优选为3质量%以上且低于20质量%, 更优选为5质量%以上且低于20质量%。

[0033] 另外, 未煅烧水滑石、半煅烧水滑石及煅烧水滑石可通过利用热重分析测定的热失重率(热重减少率)来区分。半煅烧水滑石的280℃下的热失重率低于15质量%, 并且其380℃下的热失重率为12质量%以上。另一方面, 未煅烧水滑石的280℃下的热失重率为15质量%以上, 煅烧水滑石的380℃下的热失重率低于12质量%。

[0034] 对于热重分析而言, 可使用Hitachi High-Tech Science公司制TG/DTA EXSTAR6300, 在铝制的样品盘中称量5mg水滑石, 在不加盖而开放的状态下, 在氮气流量为200mL/分钟的气氛下, 在以10℃/分钟的升温速度从30℃升温至550℃的条件下进行。热失重率可利用下述式(ii)求出:

热失重率(质量%) =  $100 \times (\text{加热前的质量} - \text{达到规定温度时的质量}) / \text{加热前的质量}$  (ii)。

[0035] 另外, 未煅烧水滑石、半煅烧水滑石及煅烧水滑石可通过利用粉末X射线衍射测定的峰及相对强度比来区分。对于半煅烧水滑石而言, 通过粉末X射线衍射, 在 $2\theta$ 为8~18°附近, 显示分裂成2个的峰, 或通过两个峰的合成而显示具有肩峰的峰, 在低角度侧出现的峰或肩峰的衍射强度(=低角度侧衍射强度)与在高角度侧出现的峰或肩峰的衍射强度(=高角度侧衍射强度)的相对强度比(低角度侧衍射强度/高角度侧衍射强度)为0.001~1,000。另一方面, 未煅烧水滑石在8~18°附近只具有一个峰, 或者在低角度侧出现的峰或肩峰与在高角度侧出现的峰或肩峰的衍射强度的相对强度比处于前述的范围外。煅烧水滑石在8°~18°的区域不具有特征峰, 在43°具有特征峰。对于粉末X射线衍射测定而言, 利用粉末X射线衍射装置(PANalytical公司制, Empyrean), 在对阴极为CuK $\alpha$  (1.5405 Å)、电压为45V、电流为40mA、取样宽度为0.0260°、扫描速度为0.0657°/s、测定衍射角范围( $2\theta$ )为5.0131~79.9711°的条件下进行。峰值搜索(peak search)可利用衍射装置附带的软件的峰值搜索

功能,在“最小显著度为0.50、最小峰尖为0.01°、最大峰尖为1.00°、峰基线宽度为2.00°、方法为二阶微分的最小值”的条件下进行。

[0036] 水滑石的BET比表面积优选为1~250m<sup>2</sup>/g,更优选为5~200m<sup>2</sup>/g。对于水滑石的BET比表面积而言,可按照BET法,使用比表面积测定装置(Macsorb HM Model 1210,MOUNTECH公司制),使试样表面吸附氮气,利用BET多点法算出。

[0037] 水滑石的平均粒径优选为1~1,000nm,更优选为10~800nm。水滑石的平均粒径为通过激光衍射散射式粒度分布测定(JIS Z 8825)、以体积基准制成粒度分布时的该粒度分布的中值粒径。

[0038] 关于水滑石,可使用由表面处理剂进行了表面处理的水滑石。作为表面处理中使用的表面处理剂,例如可使用高级脂肪酸、烷基硅烷类、硅烷偶联剂等,其中,优选高级脂肪酸、烷基硅烷类。表面处理剂可使用1种或2种以上。

[0039] 作为高级脂肪酸,可举出例如硬脂酸、褐煤酸、肉豆蔻酸、棕榈酸等碳原子数为18以上的高级脂肪酸,其中,优选硬脂酸。可使用它们中的1种或2种以上。

[0040] 作为烷基硅烷类,可举出例如甲基三甲氧基硅烷、乙基三甲氧基硅烷、己基三甲氧基硅烷、辛基三甲氧基硅烷、癸基三甲氧基硅烷、十八烷基三甲氧基硅烷、二甲基二甲氧基硅烷、辛基三乙氧基硅烷、正十八烷基二甲基(3-(三甲氧基硅基)丙基)氯化铵等。可使用它们中1种或2种以上。

[0041] 作为硅烷偶联剂,可举出例如3-缩水甘油基氧基丙基三甲氧基硅烷、3-缩水甘油基氧基丙基三乙氧基硅烷、3-缩水甘油基氧基丙基(二甲氧基)甲基硅烷及2-(3,4-环氧环己基)乙基三甲氧基硅烷等环氧系硅烷偶联剂;3-巯基丙基三甲氧基硅烷、3-巯基丙基三乙氧基硅烷、3-巯基丙基甲基二甲氧基硅烷及11-巯基十一烷基三甲氧基硅烷等巯基系硅烷偶联剂;3-氨基丙基三甲氧基硅烷、3-氨基丙基三乙氧基硅烷、3-氨基丙基二甲氧基甲基硅烷、N-苯基-3-氨基丙基三甲氧基硅烷、N-甲基氨基丙基三甲氧基硅烷、N-(2-氨基乙基)-3-氨基丙基三甲氧基硅烷及N-(2-氨基乙基)-3-氨基丙基二甲氧基甲基硅烷等氨基系硅烷偶联剂;3-脲基丙基三乙氧基硅烷等脲基系硅烷偶联剂;乙烯基三甲氧基硅烷、乙烯基三乙氧基硅烷及乙烯基甲基二乙氧基硅烷等乙烯基系硅烷偶联剂;对苯乙烯基三甲氧基硅烷等苯乙烯基系硅烷偶联剂;3-丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷及3-甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷等丙烯酸酯系硅烷偶联剂;3-异氰酸酯基丙基三甲氧基硅烷等异氰酸酯系硅烷偶联剂、双(三乙氧基甲硅烷基丙基)二硫化物、双(三乙氧基甲硅烷基丙基)四硫化物等硫化物系硅烷偶联剂;苯基三甲氧基硅烷、甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷、咪唑硅烷、三嗪硅烷等。可使用它们中1种或2种以上。

[0042] 水滑石的表面处理例如可通过以下方式进行:一边用混合机在常温下将未处理的水滑石搅拌分散,一边喷雾添加表面处理剂,进行5~60分钟搅拌。作为混合机,可使用公知的混合机,可举出例如V型混合器(blender)、带式混合器(ribbon blender)、双锥型混合器(バブルコーンブレンダー)等混合器、亨舍尔混合机(Henschel mixer)及混凝土混合机等混合机、球磨机、切碎机(cutter mill)等。另外,在用球磨机等将水滑石粉碎时,也可添加前述的高级脂肪酸、烷基硅烷类或硅烷偶联剂,进行表面处理。表面处理剂的使用量根据水滑石的种类或表面处理剂的种类等的不同而不同,相对于未经表面处理的水滑石100质量份而言,优选为1~10质量份。本发明中,进行了表面处理的水滑石也被包含在本发明中的

“水滑石”中。

[0043] 本发明的树脂组合物中的(B)成分的含量没有特别限制,只要能发挥本发明的效果即可,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,优选为10质量%以上且80质量%以下,更优选为15质量%以上且75质量%以下,进一步更优选为20质量%以上且70质量%以下。(B)成分的含量为10质量%以上时,能更有效地发挥吸湿性能。另外,通过使(B)成分的含量为80质量%以下,能进一步提高膜化时的制膜性、树脂组合物的粘接性能、表面平滑性等。

[0044] <(C)板状填料>

本发明中使用的板状填料(以下,也称为(C)成分)为板状,没有特别限制,只要能发挥本发明的效果即可,本发明中的(C)板状填料不包括(B)吸湿性填料。即,本发明中的(C)板状填料是饱和吸水率低于1质量%的板状的填料。作为(C)板状填料,可举出例如板状玻璃(A玻璃、C玻璃、E玻璃等)、未煅烧水滑石、层状硅酸盐矿物等。作为层状硅酸盐矿物,可举出例如:高岭石、埃洛石(halloysite)、滑石、蒙皂石、云母等。云母中,从使透明性优异这样的观点考虑,优选合成氟金云母。对于板状填料而言,从粒径厚度比(aspect ratio)高、发挥水分阻隔性、并且透明性优异方面考虑,优选板状玻璃、未煅烧水滑石、蒙皂石及合成氟金云母。这些板状填料可以仅单独使用1种,也可并用2种以上。

[0045] 本发明的树脂组合物中的(C)成分的含量没有特别限制,只要能发挥本发明的效果即可,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,优选为10质量%以上且80质量%以下,更优选为30质量%以上且70质量%以下。通过使(C)成分的含量为10质量%以上,能更有效地发挥水分阻隔性的效果。另外,通过使(C)成分的含量为80质量%以下,能进一步提高膜化时的制膜性、树脂组合物的粘接性能、表面平滑性等。

[0046] 对于板状填料而言,其平均粒径厚度比(平均粒径/平均厚度)优选为2以上,更优选为5以上。通过使平均粒径厚度比为2以上,能更有效地发挥低透湿性能。

[0047] 板状填料的平均厚度优选为0.01~20 $\mu\text{m}$ ,更优选为0.05~10 $\mu\text{m}$ 。

[0048] 板状填料的平均厚度可利用以下的方法测定。使用扫描型电子显微镜(SEM),针对100个粒子,测定各自的厚度,通过这些测定值计算平均值而求出。这种情况下,可以用扫描型电子显微镜观察各个粒子并进行测定,将填料(粒子群)填充至树脂中,进行成型,将该成型体断裂,可以观察该断裂面并进行测定。在任意的测定方法中,均通过试样台微动装置来调节扫描型电子显微镜的试样台,以使得粒子的截面(厚度面)垂直于扫描型电子显微镜的照射电子束轴。

[0049] 板状填料的平均粒径优选为0.05 $\mu\text{m}$ 以上,更优选为0.1 $\mu\text{m}$ 以上,进一步优选为0.2 $\mu\text{m}$ 以上。另外,从透明性的观点考虑,优选为200 $\mu\text{m}$ 以下,更优选为150 $\mu\text{m}$ 以下,进一步优选为100 $\mu\text{m}$ 以下。

[0050] 板状填料的平均粒径可利用基于米氏(Mie)散射理论的激光衍射-散射法进行测定。具体而言,可通过以下方式进行测定:利用激光衍射式粒度分布测定装置,以体积基准制成填料的粒度分布,将其中值粒径作为平均粒径。关于测定样品,可优选使用利用超声波将填料分散于水中而得到的产物。作为激光衍射散射式粒度分布测定装置,可使用株式会社堀场制作所制LA-500等。

[0051] 本发明的树脂组合物中的吸湿性填料与板状填料的质量比(吸湿性填料:板状填

料)没有特别限制,只要能发挥本发明的效果即可,从高水分阻隔性的观点考虑,优选为10:1~1:5,更优选为8:1~1:4,进一步优选为5:1~1:2.5。

[0052] 本发明的树脂组合物可在不损害本发明的效果的范围内,包含除上述吸湿性填料及板状填料以外的填料。作为除吸湿性填料及板状填料以外的填料,可举出例如二氧化硅、氧化铝、硫酸钡、氢氧化铝、氢氧化镁、碳酸钙、碳酸镁、氮化硼、硼酸铝、钛酸钡、钛酸锶、钛酸钙、钛酸镁、钛酸铋、氧化钛、氧化锆、锆酸钡、锆酸钙、硅酸盐等无机填料、橡胶粒子、有机硅粉末、尼龙粉末、氟树脂粉末等有机填料。将吸湿性填料和板状填料的合计量设为100质量%时,除吸湿性填料及板状填料以外的填料的含量优选为50质量%以下,更优选为30质量%以下,进一步优选为20质量%以下,进而进一步优选为10质量%以下。

[0053] < (D) 赋粘剂 >

本发明的树脂组合物可以还含有赋粘剂(以下,也称为(D)成分)。赋粘剂也被称为增稠剂(tackifier),是配合在塑性高分子中、赋予粘合性的树脂。作为赋粘剂,没有特别限制,优选使用萘烯树脂、改性萘烯树脂(氢化萘烯树脂、萘烯酚共聚树脂、芳香族改性萘烯树脂等)、香豆酮树脂、茛树脂、石油树脂(脂肪族系石油树脂、氢化脂环式石油树脂、芳香族系石油树脂、脂肪族芳香族共聚系石油树脂、脂环族系石油树脂、二环戊二烯系石油树脂和其氢化物等)。

[0054] 作为可作为赋粘剂使用的市售品,可举出例如以下的市售品。作为萘烯树脂,可举出YS Resin PX、YS Resin PXN(均为Yasuhara Chemical公司制)等,作为芳香族改性萘烯树脂,可举出YS Resin T0、TR系列(均为Yasuhara Chemical公司制)等,作为氢化萘烯树脂,可举出CLEARON P、CLEARON M、CLEARON K系列(均为Yasuhara Chemical公司制)等,作为萘烯酚共聚树脂,可举出YS POLYSTER 2000、POLYSTER U、POLYSTER T、POLYSTER S、MightyAce G(均为Yasuhara Chemical公司制)等,作为氢化脂环式石油树脂,可举出Escorez5300系列、5600系列(均为埃克森美孚公司制)等,作为芳香族系石油树脂,可举出ENDEX155(伊士曼公司制)等,作为脂肪族芳香族共聚系石油树脂,可举出QuintoneD100(日本瑞翁公司制)等,作为脂环族系石油树脂,可举出Quintone1325、Quintone1345(均为日本瑞翁公司制)等,作为饱和烃树脂,可举出ARKON P100、ARKON P125、ARKON P140、TFS13-030(均为荒川化学公司制)等。

[0055] 从在树脂组合物片材的层叠工序中、片材发生软化、并且具有所期望的耐热性这样的观点考虑,赋粘剂的软化点优选为50~200℃,更优选为90~180℃,进一步优选为100~150℃。需要说明的是,软化点的测定可按照JIS K2207、利用环球法进行测定。

[0056] 赋粘剂可使用1种或将2种以上组合使用。树脂组合物中的赋粘剂的含量没有特别限制。然而,从维持树脂组合物的良好的耐透湿性这样的观点考虑,使用赋粘剂的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为80质量%以下,更优选为60质量%以下,进一步优选为50质量%以下,特别优选为40质量%以下。另一方面,从具有充分的粘接性这样的观点考虑,使用赋粘剂的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为5质量%以上,更优选为10质量%以上,进一步优选为15质量%以上。

[0057] 其中,从树脂组合物的粘接性、耐透湿性、透明性等观点考虑,优选石油树脂。作为石油树脂,可举出脂肪族系石油树脂、芳香族系石油树脂、脂肪族芳香族共聚系石油树脂、脂环族系石油树脂等。其中,从树脂组合物的粘接性、耐透湿性、相容性等观点考虑,更优选

芳香族系石油树脂、脂肪族芳香族共聚系石油树脂、脂环族系石油树脂。另外,从使透明性良好的观点考虑,特别优选脂环族系石油树脂。关于脂环族系石油树脂,也可使用对芳香族系石油树脂进行氢化处理而得到的产物。这种情况下,脂环族系石油树脂的氢化率优选为30~99%,更优选为40~97%,进一步优选为50~90%。氢化率过低时,存在由于着色而发生透明性下降的问题的倾向,氢化率过高时,成为生产成本上升的倾向。氢化率可由氢化前与氢化后的芳香环的氢的<sup>1</sup>H-NMR的峰强度之比求出。作为脂环族系石油树脂,特别优选含有环己烷环的氢化石油树脂、二环戊二烯系氢化石油树脂。石油树脂可使用1种或将2种以上组合使用。石油树脂的数均分子量Mn优选为100~2,000,更优选为700~1,500,进一步优选为500~1,000。

#### [0058] < (E) 固化剂 >

从提高树脂组合物的固化性能的观点考虑,本发明的树脂组合物可以还含有固化剂(以下,也称为(E)成分)。作为固化剂,没有特别限制,可举出胺系固化剂、胍系固化剂、咪唑系固化剂、磷系固化剂、酚系固化剂等。固化剂可使用1种或将2种以上组合使用。

[0059] 作为胺系固化剂,没有特别限制,可举出:四甲基溴化铵、四丁基溴化铵等季铵盐;DBU(1,8-二氮杂双环[5.4.0]十一碳烯-7)、DBN(1,5-二氮杂双环[4.3.0]壬烯-5)、DBU-苯酚盐、DBU-辛酸盐、DBU-对甲苯磺酸盐、DBU-甲酸盐、DBU-苯酚酚醛清漆树脂盐等二氮杂双环化合物;苯甲基二甲基胺、2-(二甲基氨基甲基)苯酚、2,4,6-三(二氨基甲基)苯酚(TAP)等叔胺和它们的盐、芳香族二甲基脲、脂肪族二甲基脲、芳香族二甲基脲等的二甲基脲化合物;等。可使用它们中1种或将2种以上组合使用。

[0060] 作为胍系固化剂,没有特别限制,可举出:二氰二胺、1-甲基胍、1-乙基胍、1-环己基胍、1-苯基胍、1-(邻甲苯基)胍、二甲基胍、二苯基胍、三甲基胍、四甲基胍、五甲基胍、1,5,7-三氮杂双环[4.4.0]癸-5-烯、7-甲基-1,5,7-三氮杂双环[4.4.0]癸-5-烯、1-甲基双胍、1-乙基双胍、1-正丁基双胍、1-正十八烷基双胍、1,1-二甲基双胍、1,1-二乙基双胍、1-环己基双胍、1-烯丙基双胍、1-苯基双胍、1-(邻甲苯基)双胍等。可使用它们中1种或将2种以上组合使用。

[0061] 作为咪唑系固化剂,没有特别限制,可举出:1H-咪唑、2-甲基-咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-甲基-咪唑、2-苯基-4,5-双(羟基甲基)-咪唑、1-苯甲基-2-甲基咪唑、1-苯甲基-2-苯基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基-咪唑、2-十二烷基-咪唑、2-十七烷基咪唑、1,2-二甲基-咪唑等。可使用它们中1种或将2种以上组合使用。

[0062] 作为磷系固化剂,没有特别限制,可举出:三苯基磷、磷硼酸盐化合物、四苯基磷四苯基硼酸盐、正丁基磷四苯基硼酸盐、四丁基磷癸酸盐、(4-甲基苯基)三苯基磷硫氰酸盐、四苯基磷硫氰酸盐、丁基三苯基磷硫氰酸盐等。可使用它们中1种或将2种以上组合使用。

[0063] 酚系固化剂的种类没有特别限制,可举出:含有三嗪骨架的酚系固化剂、含有三嗪骨架的苯酚酚醛清漆(phenol novolac)固化剂、MEH-7700、MEH-7810、MEH-7851(明和化成公司制)、NHN、CBN、GPH(日本化药公司制)、SN170、SN180、SN190、SN475、SN485、SN495、SN375、SN395(新日铁住金化学公司制)、TD2090(DIC公司制)等。作为含有三嗪骨架的酚系固化剂的具体例,可举出LA3018(DIC公司制)等。作为含有三嗪骨架的苯酚酚醛清漆固化剂的具体例,可举出LA7052、LA7054、LA1356(DIC公司制)等。可使用它们中1种或将2种以上组合使用。

[0064] 本发明的树脂组合物中的固化剂的含量没有特别限制。然而,从防止耐透湿性的下降这样的观点考虑,使用固化剂的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为5质量%以下,更优选为1质量%以下。另一方面,从抑制粘着(tackiness)这样的观点考虑,使用固化剂的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为0.01质量%以上,更优选为0.05质量%以上。

[0065] < (F) 具有可与环氧基反应的官能团的树脂 >

本发明的树脂组合物中,在使用具有环氧基的聚烯烃系树脂作为(A)成分的情况下,作为用于与(A)成分形成交联结构的成分,优选使用(F)具有可与环氧基反应的官能团的树脂(以下,有时简称为“(F)成分”)。作为可与环氧基反应的官能团,可举出羟基、酚式羟基、氨基、羧基及酸酐基等,优选酸酐基。作为酸酐基,可举出例如来自琥珀酸酐的基团、来自马来酸酐的基团、来自戊二酸酐的基团等。作为树脂,可举出聚烯烃系树脂(但不包括作为(A)成分的具有酸酐基的聚烯烃系树脂)、丙烯酸系树脂、三聚氰胺树脂、酚醛树脂、脲醛树脂、聚酯树脂、醇酸树脂、聚氨酯、聚酰亚胺树脂等,优选聚烯烃系树脂。关于作为(F)成分的聚烯烃系树脂,作为官能团,不是酸酐基,具有羟基、酚式羟基、氨基、羧基等,除此之外,可举出与上述的(A)成分同样的聚烯烃系树脂,优选聚丁烯。

[0066] 本发明的树脂组合物中的(F)成分的含量没有特别限制。然而,从防止耐透湿性的下降的这样的观点考虑,使用(F)成分的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为30质量%以下,更优选为20质量%以下。另一方面,从抑制粘着这样的观点考虑,使用(F)成分的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为5质量%以上,更优选为10质量%以上。

[0067] < (G) 具有可与酸酐基反应的官能团的树脂 >

本发明的树脂组合物中,在使用具有酸酐基的聚烯烃系树脂作为(A)成分的情况下,作为用于与(A)成分形成交联结构的成分,优选使用(G)具有可与酸酐基反应的官能团的树脂(以下,有时简称为“(G)成分”)。作为可与酸酐基反应的官能团,可举出羟基、伯氨基或仲氨基、硫醇基、环氧基、氧杂环丁基等,优选环氧基。作为树脂,可举出聚烯烃系树脂(但不包括作为(A)成分的具有环氧基的聚烯烃系树脂)、丙烯酸系树脂、三聚氰胺树脂、酚醛树脂、脲醛树脂、聚酯树脂、醇酸树脂、聚氨酯、聚酰亚胺树脂等,优选聚烯烃系树脂。关于作为(G)成分的聚烯烃系树脂,作为官能团,不是环氧基,具有羟基、伯氨基或仲氨基、硫醇基、环氧基、氧杂环丁基等,除此之外,可举出与上述的(A)成分同样的聚烯烃系树脂,优选聚丁烯。

[0068] 本发明的树脂组合物中的(G)成分的含量没有特别限制。然而,从防止耐透湿性的下降这样的观点考虑,使用(G)成分的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为30质量%以下,更优选为20质量%以下。另一方面,从抑制粘着这样的观点考虑,使用(G)成分的情况下,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为5质量%以上,更优选为10质量%以上。

[0069] < (H) 增塑剂 >

本发明的树脂组合物可以还包含(H)增塑剂(以下,有时简称为“(H)成分”)。通过使用(H)成分,能提高树脂组合物的柔软性、成型性。作为(H)成分,没有特别限制,可优选使用在室温下为液态的材料。作为增塑剂的具体例,可举出:链烷烃系操作油、环烷烃系操作

油、液体石蜡、聚乙烯蜡、聚丙烯蜡、凡士林等矿物油、蓖麻油、棉籽油、菜籽油、大豆油、棕榈油、椰子油、橄榄油等植物油、液态聚丁烯、氢化液态聚丁烯、液态聚丁二烯、氢化液态聚丁二烯等液态聚 $\alpha$ 烯烃类等。作为本发明中使用的增塑剂,优选为液态聚 $\alpha$ 烯烃类、特别优选为液态聚丁二烯。另外,作为液态聚 $\alpha$ 烯烃,从粘接性的观点考虑,优选分子量低的液态聚 $\alpha$ 烯烃,重均分子量为500~5,000、进而为1,000~3,000的范围的液态聚 $\alpha$ 烯烃是优选的。这些增塑剂可以单独使用1种,也可组合使用2种以上。需要说明的是,此处所谓“液态”,是室温(25℃)下的增塑剂的状态。使用(H)成分的情况下,从不对有机EL元件造成不良影响这样的观点考虑,相对于树脂组合物的不挥发成分100质量%,其含量优选为50质量%以下。

#### [0070] <其他添加剂>

可以以不阻碍本发明的效果的程度,在本发明的树脂组合物中任意地含有除上述的成分以外的各种添加剂。作为这样的添加剂,可举出例如除上述的(A)成分、(F)成分及(G)成分以外的树脂(例如,环氧树脂、聚氨酯树脂、丙烯酸系树脂、聚酰胺树脂等);Orben、Benton等增稠剂;硅系、氟系、高分子系的消泡剂或均化剂;三唑化合物、噻唑化合物、三嗪化合物、吡啶化合物等密合性赋予剂;等等。

#### [0071] <含水率>

本发明的树脂组合物的含水率为1500ppm以下。含水率优选为1450ppm以下,更优选为1400ppm以下。含水率高于1500ppm时,变得难以发挥高水分阻隔性。需要说明的是,含水率可按照以下的实施例中记载的方法算出。

#### [0072] <压敏性粘接剂>

本发明的树脂组合物优选为压敏性粘接剂。压敏性粘接剂是指在常温下仅施加较短时间的压力就粘接的粘接剂,是本领域技术人员熟知的。另外,本发明的树脂组合物更优选为包含(D)赋粘剂、且具有粘合性的压敏性粘接剂。

#### [0073] <树脂组合物的制造方法>

本发明的树脂组合物的制造方法没有特别限制,可举出:添加配合成分、根据需要添加溶剂等、使用混炼辊、旋转混合机等进行混合的方法等。

#### [0074] <用途>

本发明的树脂组合物例如可作为具有EL元件(有机、无机)、高亮度LED元件、太阳能电池单元等发光元件或受光元件的光半导体器件的光透过部位、光提取部位的透明构件使用。例如,可将由本发明的树脂组合物得到的膜状的固化体直接作为形成光透过部位、光提取部位的透明面板等使用。通常存在术语“面板”针对硬度(刚性)较高的制品使用、而术语“膜”或“片材”被用于硬度(刚性)较低的制品的倾向,此处所谓“面板”也是硬度(刚性)较高的制品这样的含义。

[0075] 将本发明的树脂组合物成型为膜状时,例如,将通过使用混炼辊、旋转混合机等将树脂组合物的成分和有机溶剂混合而制成的清漆(树脂组合物清漆)涂布于经脱模处理的支承体上,通过使用了公知的机器的加热(吹热风等)及/或减压处理,从已涂布于支承体上的清漆除去有机溶剂,由此,可得到成型为膜状的树脂组合物(以下,也称为“膜状树脂组合物”)。

[0076] 作为经脱模处理的支承体的支承体,例如可使用聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯等聚烯烃;环烯烃聚合物;聚对苯二甲酸乙二醇酯(以下,有时简称为“PET”。)、聚萘二甲酸乙二醇

酯等聚酯；聚碳酸酯；聚酰亚胺等塑料膜（优选PET膜）、铝箔、不锈钢箔、铜箔等金属箔。作为经脱模处理的支承体的脱模处理，可举出例如基于有机硅树脂系脱模剂、醇酸树脂系脱模剂、氟树脂系脱模剂等脱模剂的脱模处理。

[0077] 树脂组合物清漆的固体成分优选为20~80质量%，更优选为30~70质量%。

[0078] 对于用于从树脂组合物清漆除去有机溶剂的加热条件没有特别限制，通常，优选于50~130℃左右进行2~10分钟左右。

[0079] 作为有机溶剂，可举出例如：丙酮、甲基乙基酮（MEK）、环己酮等酮类、乙酸乙酯、乙酸丁酯、溶纤剂乙酸酯、丙二醇单甲基醚乙酸酯、卡必醇乙酸酯等乙酸酯类、溶纤剂等溶纤剂类、丁基卡必醇等卡必醇类、甲苯、二甲苯等芳香族烃类、二甲基甲酰胺、二甲基乙酰胺、N-甲基吡咯烷酮等。所述有机溶剂可以仅使用任意1种，也可并用2种以上。

[0080] 膜状的树脂组合物的厚度根据应用膜状的树脂组合物的装置、应用位置而不同，优选为1~1000μm，更优选为2~800μm的范围。

[0081] 对于在支承体上形成的膜状的树脂组合物而言，为了在将树脂组合物固化之前对其进行保护，优选预先用保护膜保护，例如，可使用公知的机器，将经脱模处理的保护膜预先层叠于在支承体上形成的膜状的树脂组合物。作为用于保护膜的层叠的机器，可举出例如辊层压机、压力机、真空加压式层压机等。

[0082] 关于经脱模处理的保护膜，例如，可使用对由聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯等聚烯烃；环烯烃聚合物；聚对苯二甲酸乙二醇酯（以下，有时简称为“PET”）、聚萘二甲酸乙二醇酯等聚酯；聚碳酸酯；聚酰亚胺等塑料膜（优选PET膜）、或铝箔、不锈钢箔、铜箔等金属箔形成的支承体实施脱模处理而得到的产物。作为脱模处理，可举出例如基于有机硅树脂系脱模剂、醇酸树脂系脱模剂、氟树脂系脱模剂等脱模剂的脱模处理。

[0083] <树脂片材>

本发明的树脂片材具有支承体、和设置于该支承体上的包含本发明的树脂组合物的树脂组合物层。

[0084] <电子器件>

用本发明的树脂片材将电子元件密封而成的电子器件例如可通过在基板上的电子元件上层叠本发明的树脂片材来制造。

#### 实施例

[0085] 以下，举出实施例进一步具体地说明本发明，但本发明不受以下实施例的限制，当然也可在可适合于上述/下述的主旨的范围内适当地施加变更来实施，它们均被包含在本发明的技术范围内。需要说明的是，只要没有特别说明，成分及共聚单元的量中的“份”及“%”分别是指“质量份”及“质量%”。

[0086] 实施例及比较例中使用的材料如下所示。

[0087] (A) 成分

“HV-1900”（JX能源公司制）：聚丁烯，数均分子量为2,900

“HV-300M”（东邦化学工业公司制）：马来酸酐改性液态聚丁烯，酸酐基浓度为0.77mmol/g，数均分子量为2,100

“T-YP341”（星光PMC公司制）：甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物（SWASOL溶液，固体成分20%），丙烯单元/丁烯单元为71%/29%，环氧基浓度为0.638mmol/

g,数均分子量为155,000

(B) 成分

“DHT-4C”(协和化学公司制):半煅烧水滑石,平均粒径为400nm,BET比表面积为 $15\text{m}^2/\text{g}$

(C) 成分

“PDM-5B”(TOPY工业公司制):合成氟金云母,平均粒径为 $5\mu\text{m}$ ,平均粒径厚度比为40“FTD010-F01”(日本板硝子公司制):板状玻璃填料,平均粒径为 $10\mu\text{m}$ ,平均粒径厚度比为25

(D) 成分

“ARKON P125”(荒川化学公司制):含有环己烷环的饱和烃树脂,软化点为 $125^\circ\text{C}$

(E) 成分

2,4,6-三(二氨基甲基)苯酚(以下,简记为“TAP”。)(KayakuAkzo公司制):胺系固化剂。

[0088] <实施例1>

按照以下的步骤制备下述表1所示的配合比的清漆。用三辊磨,将马来酸酐改性液态聚丁烯(HV-300M,东邦化学工业公司制)、聚丁烯(HV-1900,JX能源公司制)、半煅烧水滑石(吸湿性填料;DHT-4C,协和化学公司制)及合成氟金云母(板状填料;PDM-5B,TOPY工业公司制)分散于将含有环己烷环的饱和烃树脂(赋粘剂;ARKON P125,荒川化学公司制)以固体成分成为60%的方式溶解于SWASOL中而得到的产物中,得到混合物。在得到的混合物中配合甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物(T-YP341,星光PMC公司制,SWASOL溶液、固体成分20%)、胺系固化剂(TAP,Kayaku Akzo公司制)及甲苯,用高速旋转混合机将得到的混合物均匀分散,得到树脂组合物的清漆。用口模式涂布机将得到的清漆均匀涂布于用有机硅系脱模剂进行了处理的PET膜“SP4020”(PET: $50\mu\text{m}$ :Toyo Cloth公司制商品名)的脱模处理面上,于 $130^\circ\text{C}$ 进行30分钟加热,由此,得到具有厚度为 $25\mu\text{m}$ 的树脂组合物层的树脂片材,然后,于 $150^\circ\text{C}$ 进行24小时干燥。

[0089] <实施例2>

代替合成氟金云母(板状填料;PDM-5B,TOPY工业公司制),使用板状玻璃填料(FTD010-F01,日本板硝子公司制),除此之外,利用与实施例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0090] <实施例3>

将合成氟金云母(板状填料;PDM-5B,TOPY工业公司制)的使用量从100份变更为50份,除此之外,利用与实施例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0091] <实施例4>

将合成氟金云母(板状填料;PDM-5B,TOPY工业公司制)的使用量从100份变更为150份,除此之外,利用与实施例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0092] <比较例1>

按照以下的步骤制备下述表1所示的配合比的清漆。用三辊磨,将马来酸酐改性液态聚丁烯(HV-300M、东邦化学工业公司制)、聚丁烯(HV-1900、JX能源公司制)及半煅烧水滑石(吸湿性填料;DHT-4C,协和化学公司制)分散于将含有环己烷环的饱和烃树脂(赋粘剂;

ARKON P125)以固体成分成为60%的方式溶解于SWASOL中而得到的产物中,得到混合物。在得到的混合物中配合甲基丙烯酸缩水甘油酯改性丙烯-丁烯无规共聚物(T-YP341,星光PMC公司制,SWASOL溶液,固体成分为20%)、阴离子聚合型固化剂(TAP,Kayaku Akzo公司制)及甲苯,用高速旋转混合机将得到的混合物均匀分散,得到树脂组合物的清漆。用口模式涂布机将得到的清漆均匀涂布于用有机硅系脱模剂进行了处理的PET膜“SP4020”(PET:50 $\mu$ m:Toyo Cloth公司制商品名)的脱模处理面上,于130 $^{\circ}$ C进行30分钟加热,由此,得到具有厚度为25 $\mu$ m的树脂组合物的树脂片材,然后,于150 $^{\circ}$ C进行24小时干燥。

[0093] <比较例2>

代替半煅烧水滑石(吸湿性填料;DHT-4C,协和化学公司制),使用合成氟金云母(板状填料;PDM-5B,TOYO工业公司制),除此之外,利用与比较例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0094] <比较例3>

代替半煅烧水滑石(吸湿性填料;DHT-4C,协和化学公司制),使用板状玻璃填料(FTD010-F01,日本板硝子公司制),除此之外,利用与比较例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0095] <比较例4>

未进行150 $^{\circ}$ C下的24小时干燥,除此之外,利用与实施例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0096] <比较例5>

未进行150 $^{\circ}$ C下的24小时干燥,除此之外,利用与实施例2同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0097] <比较例6>

代替于150 $^{\circ}$ C进行的24小时干燥,于150 $^{\circ}$ C进行1小时干燥,除此之外,利用与实施例1同样的方法,制作树脂组合物的清漆及树脂片材。

[0098] <总光线透过率的评价>

将实施例及比较例中制作的树脂片材切割成长度50mm及宽度20mm的尺寸,使用间歇式真空层压机(Nichigo-Morton公司制,V-160),将切割的树脂片材层压在玻璃板(长度76mm、宽度26mm及厚度1.2mm的显微镜载玻片(microslide glass)(松浪玻璃工业公司制白色载玻片(slide glass)S1112缘磨No.2)上。层压条件为:温度80 $^{\circ}$ C、减压时间30秒之后,以0.3MPa的压力进行30秒加压。然后,将树脂片材的PET膜剥离,使用安装有 $\phi$ 80mm积分球(型号为SRS-99-010,反射率为99%)的光纤式分光光度计(MCPD-7700,型号311C,大塚电子公司制,外部光源单元:卤素灯MC-2564(24V,150W规格)),测定露出的固化的树脂组合物的光透过率谱,算出波长450nm下的总光线透过率(%),按照以下的基准进行评价。需要说明的是,使积分球和样品(层叠体)的距离为0mm,作为参考,使用了玻璃;

良好(O):90%以上

不良(X):小于90%。

[0099] <Ca密封性能测定>

用煮沸的异丙醇对50mm $\times$ 50mm见方的无碱玻璃进行5分钟洗涤,于150 $^{\circ}$ C进行30分钟以上干燥。洗涤后,实施UV臭氧洗涤。使用该玻璃,使用使距端部的距离为2mm的掩模,蒸

镀钙(纯度为99.8%) (厚度为200nm)。将实施例及比较例中制作的膜贴合于铝箔/PET复合膜“带有PET的AL1N30”(铝箔:30 $\mu$ m,PET:25 $\mu$ m:东海东洋铝贩卖公司制商品名),在手套箱内,使用热层压机(FUJIPLA公司制,ラミネーターDAiSY A4(LPD2325)),与蒸镀有钙的无碱玻璃贴合,得到评价用样品。

[0100] 若钙与水接触,成为氧化钙,则变得透明。因此,水分向评价用样品的侵入可通过测定评价用样品的从端部至钙膜的密封距离X(mm)来评价。

[0101] 首先,利用Mitutoyo公司制Measuring Microscope MF-U,测定评价用样品的从端部至钙膜的密封距离,将该值记为X2。

[0102] 接下来,向已设定为温度85 $^{\circ}$ C及相对湿度85%RH的恒温恒湿槽中投入评价用样品。在“投入到恒温恒湿槽后的评价用样品的从端部至钙膜的密封距离X1(mm)”与“投入到恒温恒湿槽前的评价用样品的从端部至钙膜的密封距离X2(mm)”相比增加了0.1mm的时间(时候),将评价用样品从恒温恒湿槽取出,将该时间记为减少开始时间t(小时)。

[0103] 基于以下的菲克扩散方程,算出常数K:

$$X1 = K\sqrt{t}$$

(式中,X1为投入到恒温恒湿槽后的评价用样品的从端部至钙膜的密封距离(mm),t为成为X1=X2+0.1的减少开始时间(小时),X2为投入到恒温恒湿槽前的评价用样品的从端部至钙膜的密封距离(mm))。

[0104] 使用得到的K,算出X成为2mm的时间作为水分向钙膜侵入的开始时间。需要说明的是,水分阻隔性越高,越能减缓水分的侵入速度,所述的水分侵入的开始时间变长;

良好(O):120小时以上

不良(X):120小时以下。

[0105] <含水率测定>

将实施例及比较例中制作的树脂片材切割成长度70mm及宽度40mm,折叠放入经充分干燥的石英制容器中,放入至与卡尔·费歇尔测定器(CA100型,三菱化学制)直接连接的电炉(VA-21型,三菱化学制)中。在N<sub>2</sub>气流中,将电炉的温度升温至250 $^{\circ}$ C,将从测定试样脱离的水捕捉至卡尔·费歇尔测定液,采用常规方法测定水的绝对量。算出水的绝对量相对于测定试样的质量的比例作为含水率(ppm)。

[0106] 下述表1中示出实施例及比较例的树脂组合物的构成和试验结果。由表1可知,本发明的树脂组合物能发挥更高的水分阻隔性。

[0107] [表1]

	实施例 1	实施例 2	实施例 3	实施例 4	比较例 1	比较例 2	比较例 3	比较例 4	比较例 5	比较例 6
HV-1900	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
HV-300M	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
DHT-4C	100	100	100	100	100			100	100	100
PDM-5B	100		50	150		100		100		100
FTD010-F01		100					100		100	
T-YP341	40 (固相成分2)									
P125	77	77	77	77	77	77	77	77	77	77
TAP	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
结果	总光线透射率	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	干燥条件	150°C 24hr	无干燥	150°C 1hr						
	Ca 密封性能	○	○	○	○	x	x	x	x	x
含水率 (ppm)	1057	1378	1269	822	2066	556	394	2923	3462	1594

[0108] 产业上的可利用性

本发明的树脂组合物可发挥更高的水分阻隔性,适合于有机EL元件等发光元件、

高亮度LED等光半导体、太阳能电池等受光元件等的密封部。

[0109] 本申请以在日本提出申请的特愿2019-063027为基础,本说明书中包含其全部内容。