



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 1864438 B

(45) 授权公告日 2010.04.28

(21) 申请号 200480028779.2

(22) 申请日 2004.10.01

(30) 优先权数据

346262/2003 2003.10.03 JP

(85) PCT申请进入国家阶段日

2006.04.03

(86) PCT申请的申请数据

PCT/JP2004/014519 2004.10.01

(87) PCT申请的公布数据

W02005/034583 JA 2005.04.14

(73) 专利权人 JSR 株式会社

地址 日本东京

(72) 发明人 铃木昌则 川田隆 沟内博行

森川明彦

(74) 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专

利商标事务所 11038

代理人 王健

(51) Int. Cl.

H05B 33/04 (2006.01)

H05B 33/14 (2006.01)

(56) 对比文件

JP 7-169567 A, 1995.07.04, 说明书第 0057 段、附图 1.

审查员 李莹

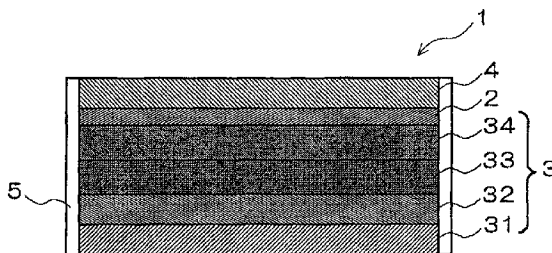
权利要求书 1 页 说明书 17 页 附图 1 页

(54) 发明名称

有机 EL 元件用透明密封材料

(57) 摘要

本发明提供柔软性优异,可充分地密封有机 EL 元件,制成有机 EL 显示器时可抑制暗斑的产生,使图像的可视性提高的有机 EL 元件用透明密封材料。本发明的有机 EL 元件用透明密封材料 2 由柔软性聚合物组合物形成,配置于电致发光显示屏 1 的发光元件 3 的发光面与密封部件 4 之间,所述电致发光显示屏 1 具有依次含有基板 31、阴极层 32、发光层 33 和阴板层 34 的发光元件 3 以及配置在该发光元件 3 的发光面侧的密封部件 4。



1. 有机 EL 元件用透明密封材料,是具有依次含有基板、阳极层、发光层和阴极层的发光元件及配置在该发光元件发光面侧的密封部件的电致发光显示屏使用的有机 EL 元件用透明密封材料,其特征在于:其由柔软性聚合物组合物形成,并且配置在上述发光元件的发光面与上述密封部件之间,所述柔软性聚合物组合物含有选自二烯类聚合物和烯炔类聚合物的至少 1 种聚合物,所述烯炔类聚合物含有金属醇盐,是选自具有羧基的乙烯- $\alpha$ -烯炔共聚物和具有羧基的乙烯- $\alpha$ -烯炔-非共轭二烯共聚物的至少 1 种。

2. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中当本有机 EL 元件用透明密封材料为厚度 0.5mm 时,其总光线透过率为大于等于 90%。

3. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是选自苯乙烯-丁二烯共聚物及其氢化物、苯乙烯-异戊二烯共聚物及其氢化物、丁二烯嵌段共聚物及其氢化物、苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物及其氢化物、和苯乙烯-异戊二烯-苯乙烯嵌段共聚物及其氢化物的至少 1 种。

4. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是将分子中具有至少 1 个乙烯基键含量低于 25%的丁二烯聚合物嵌段 (I) 和至少 1 个共轭二烯单元 (a1) 与其他单体单元 (a2) 的质量比 [(a1)/(a2)] 为 (100 ~ 50)/(0 ~ 50)、乙烯基键含量为 25 ~ 95%的聚合物嵌段 (II) 的共轭二烯类嵌段聚合物氢化而成的共轭二烯类嵌段聚合物的氢化物。

5. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是将分子中具有至少 1 个聚合物嵌段的二烯类聚合物氢化而成的二烯类聚合物的氢化物,所述聚合物嵌段为共轭二烯单元 (b1) 与芳香族乙烯基化合物 (b2) 的质量比 [(b1)/(b2)] 为 (99 ~ 50)/(1 ~ 50)、乙烯基键含量为 65 ~ 95%的聚合物嵌段。

6. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述柔软性聚合物组合物含有液态物质。

7. 权利要求 6 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述液态物质在 40°C 下的运动粘度为小于等于 800mm<sup>2</sup>/s。

8. 权利要求 6 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述液态物质的含量,相对于所述柔软性聚合物组合物所含有的聚合物的合计 100 质量份,为 50 ~ 5000 质量份。

9. 权利要求 1 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中本有机 EL 元件用透明密封材料是最薄部分的厚度为 0.1 ~ 1000  $\mu$ m 的薄壁体。

## 有机 EL 元件用透明密封材料

### 技术领域

[0001] 本发明涉及有机 EL 元件用透明密封材料。更详细地讲,涉及用于填充构成电致发光显示屏(以下,简称“EL 显示屏”)的发光元件发光面侧空隙的有机 EL 元件用透明密封材料。本发明的有机 EL 元件用透明密封材料适用于移动电话、便携信息终端、台式计算机、笔记本电脑、电视、车载用信息机、钟表、其他各种显示装置等用的 EL 显示屏等。

### 技术背景

[0002] EL 元件因为自己发光,故具有 EL 元件的显示装置可视性高。正在利用这种性质研究具有可以比无机 EL 元件降低外加电压的有机 EL 元件的高性能显示装置,即有机 EL 显示器。

[0003] 有机 EL 元件的构成基本上是在玻璃等构成的基板上依次形成阳极层、发光层和阴极层。为了提高性能有时还在各层之间设置功能层。

[0004] 如上所述构成的有机 EL 元件,通过对阳极层与阴极层之间通电可以使元件发光。但是,元件的周围存在水分、杂质等时,构成元件的材料受到侵害,导致劣化。使用具有劣化的有机 EL 元件的显示装置时,产生发光缺陷,即暗斑,造成可视性恶化。

[0005] 另外,具有有机 EL 元件的显示装置,通常为了被覆、密闭有机 EL 元件而具备有玻璃等组成的透明基板(也有密封罐的场合)等。作为解决上述问题的方法,公开了在有机 EL 元件与透明基板之间产生的空间中配置脱水剂的方法、使用紫外线固化树脂构成的透明密封材料的方法、填充含有吸附剂的惰性液体的方法(参照专利文献 1)等。但是,任何一种方法抑制暗斑的产生均不充分。另外,使用利用紫外线固化树脂得到的硬质透明密封材料时,在显示装置的制造阶段透明基板或密封罐不容易固定,而且固定不牢固,有时元件的密封变得不充分。

[0006] 专利文献 1:特开平 9-35868 号公报

### 发明内容

[0007] 本发明的目的在于提供柔软性优异,可以充分地密封有机 EL 元件,制成有机 EL 显示器时可抑制暗斑的产生,使图像的可视性提高的有机 EL 元件用透明密封材料。

[0008] 本发明如下所示。

[0009] [1] 有机 EL 元件用透明密封材料,是可用于具有依次含有基板、阳极层、发光层和阴极层的发光元件及配置在该发光元件发光面侧的密封部件的电致发光显示屏的有机 EL 元件用透明密封材料,其特征在于:其由柔软性聚合物组合物形成,并且配置在上述发光元件的发光面与上述密封部件之间。

[0010] [2] 上述 [1] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中当本有机 EL 元件用透明密封材料为厚度 0.5mm 时,其总光线透过率为大于等于 90%。

[0011] [3] 上述 [1] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述柔软性聚合物组合物是弹性体组合物。

[0012] [4] 上述 [1] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述柔软性聚合物组合物含有选自二烯类聚合物、烯炔类聚合物、丙烯酸类聚合物、氨基甲酸酯类聚合物、聚酰胺类聚合物、聚酯类聚合物、氯乙烯类聚合物、氟类聚合物和硅氧烷类聚合物的至少 1 种聚合物。

[0013] [5] 上述 [4] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是选自苯乙烯-丁二烯共聚物及其氢化物、苯乙烯-异戊二烯共聚物及其氢化物、丁二烯嵌段共聚物及其氢化物、苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物及其氢化物、和苯乙烯-异戊二烯-苯乙烯嵌段共聚物及其氢化物的至少 1 种。

[0014] [6] 上述 [4] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是将分子中具有至少 1 个乙烯基键含量低于 25% 的丁二烯聚合物嵌段 (I) 和至少 1 个共轭二烯单元 (a1) 与其他单体单元 (a2) 的质量比 [(a1)/(a2)] 为 (100 ~ 50)/(0 ~ 50)、乙烯基键含量为 25 ~ 95% 的聚合物嵌段 (II) 的共轭二烯类嵌段聚合物氢化而成的共轭二烯类嵌段聚合物的氢化物。

[0015] [7] 上述 [4] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述二烯类聚合物是将分子中具有至少 1 个共轭二烯单元 (b1) 与芳香族乙烯基化合物 (b2) 的质量比 [(b1)/(b2)] 为 (99 ~ 50)/(1 ~ 50)、乙烯基键含量为 65 ~ 95% 的聚合物嵌段的二烯类聚合物氢化而成的二烯类聚合物的氢化物。

[0016] [8] 上述 [4] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述烯炔类聚合物是选自乙烯- $\alpha$ -烯炔共聚物和乙烯- $\alpha$ -烯炔-非共轭二烯共聚物的至少 1 种。

[0017] [9] 上述 [8] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述乙烯- $\alpha$ -烯炔共聚物和所述乙烯- $\alpha$ -烯炔-非共轭二烯共聚物具有选自羧基、羟基、环氧基、氨基、烷氧基甲硅烷基、磺酸基及腈基的官能团。

[0018] [10] 上述 [8] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中还含有金属离子和 / 或金属化合物。

[0019] [11] 上述 [1] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述柔软性聚合物组合物含有液态物质。

[0020] [12] 上述 [11] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述液态物质在 40℃ 下的运动粘度为小于等于 800mm<sup>2</sup>/s。

[0021] [13] 上述 [11] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中所述液态物质的含量,相对于所述柔软性聚合物组合物所含有的聚合物的合计 100 质量份,为 50 ~ 5000 质量份。

[0022] [14] 上述 [1] 所述的有机 EL 元件用透明密封材料,其中本有机 EL 元件用透明密封材料是最薄部分的厚度为 0.1 ~ 1000  $\mu$ m 的薄壁体。

[0023] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料由柔软性聚合物组合物形成。本发明的有机 EL 元件用透明密封材料柔软性优异,可以充分地进行密封而不使发光元件劣化。其结果可以抑制暗斑的产生,图像的可视性稳定。

[0024] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料由于透明性也优异,故与构成 EL 显示屏的密封部件等透明部件密合时也不降低其透明性。其结果图像的可视性稳定。

[0025] 当上述柔软性聚合物组合物是弹性体组合物时,制成所期望形状的成型体时也具有足够的柔软性。其结果可以没有间隙地填埋 EL 显示屏内部的空间。

[0026] 另外,当上述柔软性聚合物组合物中含有选自二烯类聚合物、烯烃类聚合物、丙烯酸类聚合物、氨基甲酸酯类聚合物、聚酰胺类聚合物、聚酯类聚合物、氯乙烯类聚合物、氟类聚合物和硅氧烷类聚合物的聚合物时,特别是当含有特定的二烯类聚合物或烯烃类聚合物时,可以制成透明性特别高的有机 EL 元件用透明密封材料。此外,当上述柔软性聚合物组合物中含有运动粘度在规定范围的液态物质时,可以不降低透明性,制成柔软性更优异的成型体。

[0027] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料也可以制成薄壁体。即使是这样的形态,也不容易断裂,不容易损伤。

#### 附图说明

[0028] 图 1 是表示 EL 显示屏的说明性截面图。

[0029] 图 2 是表示另外的 EL 显示屏的说明性截面图。

[0030] 图 3 是表示发光元件的说明性截面图。

[0031] 符号说明

[0032] 1:EL 显示屏;2:有机 EL 元件用透明密封材料;3:发光元件;31:基板;32:阳极层;33:发光层;34:阴极层;4:密封部件;5:壳体。

#### 具体实施方式

[0033] 以下,详细地说明本发明。

[0034] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料,用于具有依次含有基板、阳极层、发光层和阴极层的发光元件(有机 EL 元件)及配置在该发光元件的发光面侧的密封部件的 EL 显示屏,由柔软性聚合物组合物形成,并且配置在上述发光元件的发光面与上述密封部件之间。

[0035] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料,由以下说明的柔软性聚合物组合物形成。本发明中,“柔软性聚合物组合物”既可以是含有以下说明的聚合物与其他成分的组合物,也可以只是聚合物。因此,本发明的有机 EL 元件用透明密封材料既可以由含有以下说明的聚合物与其他成分的柔软性聚合物组合物形成,也可以由只含有聚合物的柔软性聚合物组合物形成。

[0036] 上述柔软性聚合物组合物,优选含有具有柔软性,可以获得透明成型体的聚合物。所含有的聚合物可以是树脂,也可以是弹性体(包含橡胶)。还可以将树脂与弹性体组合。本发明中,上述柔软性聚合物组合物优选是弹性体组合物。作为所含有的聚合物,可举出烯烃类聚合物、二烯类聚合物、丙烯酸类聚合物、氨基甲酸酯类聚合物、聚酰胺类聚合物、聚酯类聚合物、氯乙烯类聚合物、氟类聚合物、硅氧烷类聚合物等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0037] 作为上述二烯类聚合物,优选使用共轭二烯形成的聚合物。例如,上述二烯类聚合物可以是共轭二烯的均聚物、共聚物,也可以是共轭二烯与其他单体的共聚物。另外,上述二烯类聚合物也可以将均聚物与共聚物组合使用。作为上述共轭二烯,可举出 1,3-丁二烯、异戊二烯、2,3-二甲基-1,3-丁二烯、1,3-戊二烯、2-甲基-1,3-戊二烯、1,3-己二烯、4,5-二乙基-1,3-辛二烯、氯丁二烯等。其中,优选 1,3-丁二烯、异戊二烯及 1,3-戊二烯,

特别优选 1,3-丁二烯及异戊二烯。此外,上述列举的化合物可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0038] 另外,作为制成共聚物时的其他单体,可举出苯乙烯、叔丁基苯乙烯、 $\alpha$ -甲基苯乙烯、 $\alpha$ -氯代苯乙烯、对甲基苯乙烯、二乙烯基苯、N,N-二乙基-对-氨基苯乙烯等芳香族乙烯基化合物;(甲基)丙烯腈等乙烯基氰化合物;乙烯基吡啶等含有氮原子的乙烯基化合物等。其中,优选苯乙烯和  $\alpha$ -甲基苯乙烯。上述列举的化合物可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。上述二烯类聚合物是共轭二烯与其他单体的共聚物时,共轭二烯单元可以是选自无规、锥形(单体沿分子链增加或减少)及部分嵌段的分布。

[0039] 作为上述二烯类聚合物,可举出聚丁二烯、聚异戊二烯、苯乙烯-丁二烯共聚物、苯乙烯-异戊二烯共聚物、异丁烯-异戊二烯聚合物、丙烯腈-丁二烯共聚物等。此外,也可以是苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物、苯乙烯-异戊二烯-苯乙烯嵌段共聚物等共轭二烯类嵌段共聚物。该共轭二烯类嵌段共聚物可以是共轭二烯的共聚物,也可以是如上所述共轭二烯与芳香族乙烯基化合物等大于等于 1 种的其他单体的共聚物。因此,作为该嵌段共聚物的嵌段结构,可举出  $(A-B)_m A$ 、 $(B-A)_m B$ 、 $(A-B-A)_m$ 、 $(B-A-B)_m$  等。此外,作为该嵌段共聚物的嵌段结构,也可以是介由偶联剂残基 X 使聚合物分子链延长或支化成为如  $(A-B)_m X$ 、 $(B-A)_m X$ 、 $(A-B-A)_m X$ 、 $(B-A-B)_m X$  等的结构。各通式中,“A”是以共轭二烯单元为主体的嵌段,“B”是以其他共轭二烯单元或其他单体单元为主体的嵌段,m 是大于等于 1 的整数。再者,本发明所涉及的二烯类聚合物也可以是上述聚合物的氢化物(氢化聚合物)。使用氢化物时二烯类聚合物的氢化率优选大于等于 80%,更优选大于等于 85%,特别优选大于等于 90%。氢化率越高,越可以提高制成成型体时的耐光性、形状保持性和力学性质。

[0040] 作为上述二烯类聚合物,优选使用共轭二烯类嵌段聚合物的氢化物或共轭二烯与芳香族乙烯基化合物构成的二烯类聚合物的氢化物。

[0041] 作为上述共轭二烯类嵌段聚合物,优选分子中具有至少 1 个乙烯基键含量低于 25%的丁二烯聚合物嵌段(I)和至少 1 个共轭二烯单元(a1)与其他单体单元(a2)的质量比  $[(a1)/(a2)]$  为  $(100 \sim 50)/(0 \sim 50)$ 、乙烯基键含量为 25~95%的聚合物嵌段(II)的二烯类嵌段聚合物(以下称为“聚合物(P)”)。

[0042] 上述丁二烯聚合物嵌段(I)中,乙烯基键(1,2-乙烯基键)的含量优选低于 25%,更优选 5~20%,进一步优选 7~19%。因此,上述丁二烯聚合物嵌段(I)通过氢化成为呈现类似于乙烯-丁烯共聚物结构的结晶性的嵌段。通过使乙烯基键含量成为上述范围,可以提高成型体的力学性质及形状保持性。

[0043] 另外,上述聚合物嵌段(II)可以是只含有共轭二烯单元的嵌段,也可以是由共轭二烯单元(a1)与其他单体单元(a2)构成的嵌段。共轭二烯单元(a1)与其他单体单元(a2)的质量比  $[(a1)/(a2)]$ ,优选为  $(100 \sim 50)/(0 \sim 50)$ ,更优选为  $(100 \sim 70)/(0 \sim 30)$ ,进一步优选为  $(100 \sim 90)/(0 \sim 10)$ 。通过处于上述范围,可以制得粘弹性优异的成型体。

[0044] 此外,上述聚合物嵌段(II)中,乙烯基键(1,2-乙烯基键及 3,4-乙烯基键)的含量优选 25~95%,更优选 25~90%,进一步优选 30~85%。

[0045] 因此,作为上述聚合物(P),将丁二烯聚合物嵌段(I)记为“A<sup>1</sup>”,将聚合物嵌段(II)记为“B<sup>1</sup>”时,可以使用  $(A^1-B^1)_{m1}$ 、 $(A^1-B^1)_{m2}-A^1$ 、 $(B^1-A^1)_{m3}-B^1$  等表示的聚合物。各通式中,m<sub>1</sub>~m<sub>3</sub>表示大于等于 1 的整数。

[0046] 另外,上述聚合物(P)是具有大于等于三嵌段的共聚物时,制成氢化物时,还可以得到形状保持性及力学性质更优异的成型体。因此,上述通式中,  $m_1$  优选为大于等于 2 的整数。

[0047] 此外,上述聚合物(P)可以在分子中具有至少 1 个上述丁二烯聚合物嵌段(I)和至少 1 个上述聚合物嵌段(II),除这些以外,也可以是具有其他嵌段,例如由共轭二烯单元以外的其他单体单元构成的嵌段的聚合物。

[0048] 构成上述聚合物(P)的上述丁二烯聚合物嵌段(I)与上述聚合物嵌段(II)的含有比例  $[(I)/(II)]$  优选为  $(5 \sim 60)/(95 \sim 40)$ ,更优选  $(7 \sim 55)/(93 \sim 45)$ ,进一步优选  $(7 \sim 50)/(93 \sim 50)$ 。通过使上述各嵌段的含有比例为上述范围,制成氢化物时可以获得形状保持性和力学性质特别优异的成型体。

[0049] 作为由上述共轭二烯和芳香族乙烯基化合物构成的二烯类聚合物(以下称为“二烯类聚合物(Q)”),优选分子中具有至少 1 个共轭二烯单元(b1)与芳香族乙烯基化合物(b2)的质量比  $[(b1)/(b2)]$  为  $(99 \sim 50)/(1 \sim 50)$ 、乙烯基键含量为 65 ~ 95% 的聚合物嵌段的二烯类聚合物。若使用这样的二烯类聚合物,则可以制得粘弹性优异的成型体。

[0050] 另外,上述二烯类聚合物(Q)若是具有至少 2 个由芳香族乙烯基化合物构成的聚合物嵌段的共聚物,制成氢化物时,则可以获得形状保持性及力学性质更优异的成型体。

[0051] 上述二烯类聚合物(Q)中,由芳香族乙烯基化合物构成的聚合物嵌段(I)与由共轭二烯和芳香族乙烯基化合物构成的聚合物嵌段(II)的含有比例  $[(I)/(II)]$  优选为  $(1 \sim 40)/(99 \sim 60)$ ,更优选为  $(3 \sim 30)/(97 \sim 70)$ ,进一步优选为  $(5 \sim 20)/(95 \sim 80)$ 。通过使上述各嵌段的含有比例成为上述范围,制成氢化物时,可以获得形状保持性和力学性质特别优异的成型体。因此,作为上述二烯类聚合物(Q),当将聚合物嵌段(I)记为“ $A^1$ ”,将聚合物嵌段(II)记为“ $B^1$ ”时,可以使用  $B^1$ 、 $(A^1-B^1)_{m_1}$ 、 $(A^1-B^1)_{m_2}-A^1$ 、 $(B^1-A^1)_{m_3}-B^1$  等表示的聚合物。各通式中,  $m_1 \sim m_3$  表示大于等于 1 的整数。

[0052] 此外,上述聚合物(P)及上述二烯类聚合物(Q)也可以介由偶联剂残基 X 使聚合物分子链延长或支化,使之成为  $(A^1-B^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1)_nX$ 、 $(A^1-B^1-A^1)_nX$ 、 $(B^1-A^1-B^1)_nX$  等聚合物。各通式中, n 表示大于等于 2 的整数。另外,上述各通式中, n 大于等于 3 时,制成氢化物时可以获得形状保持性、热熔附着 - 粘接性优异的成型体。作为上述偶联剂,可举出 1,2-二溴乙烷、甲基二氯硅烷、三氯硅烷、甲基三氯硅烷、四氯硅烷、四甲氧基硅烷、二乙烯基苯、己二酸二乙酯、己二酸二辛酯、苯-1,2,4-三异氰酸酯、甲苯二异氰酸酯、环氧化 1,2-聚丁二烯、环氧化亚麻仁油、四氯化锆、四氯化锡、丁基三氯化锡、丁基三氯硅烷、二甲基氯硅烷、1,4-氯甲基苯、双(三氯甲硅烷基)乙烷等。

[0053] 上述聚合物(P)及上述二烯类聚合物(Q)的氢化(加氢)是对嵌段中的烯键性不饱和键进行的。通过使氢化率高达优选大于等于 80%、更优选大于等于 85%、特别优选大于等于 90%,可以提高使用所得氢化物制成成型体时的耐光性、形状保持性及力学性质。此外,上述聚合物(P)及上述二烯类聚合物(Q)的氢化可以采用特开平 2-133406 号公报、特开平 3-128957 号公报、特开平 5-170844 号公报等公开的方法等进行。

[0054] 另外,上述异丁烯-异戊二烯共聚物,是一般用作“丁基橡胶”的共聚物,但也可以是异丁烯和异戊二烯与其他单体,例如具有极性基团的化合物(以下也称为“含有极性基团的化合物”)的共聚物。此外还可以是使用该含有极性基团的化合物等的部分交联共聚

物等。

[0055] 作为上述含有极性基团的化合物,可以使用具有选自羟基、环氧基、氨基、羧基、酸酐基、烷氧基甲硅烷基、腈基等至少 1 种的化合物。另外,上述部分交联共聚物通常通过使用具有多官能性不饱和键的化合物与这些含有极性基团的化合物进行共聚而制得。作为该化合物,可举出多元烯丙基化合物、多元(甲基)丙烯酸酯化合物、二乙烯基化合物、双马来酰亚胺化合物、二脒化合物等。

[0056] 作为上述丁基橡胶,也可以是将异丁烯-异戊二烯共聚物等卤化的氯化异丁烯-异戊二烯共聚物、溴化异丁烯-异戊二烯共聚物等。

[0057] 作为上述烯烃类聚合物,可举出聚乙烯、聚丙烯、乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物、乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物等。应予说明,上述乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物和乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物中的 $\alpha$ -烯烃为不包括乙烯的 $\alpha$ -烯烃。作为该 $\alpha$ -烯烃,可举出丙烯、1-丁烯、1-戊烯、3-甲基-1-丁烯、1-己烯、3-甲基-1-戊烯、4-甲基-1-戊烯、3-乙基-1-戊烯、1-辛烯、1-癸烯、1-十一碳烯等,优选 $C_{3-12}$ 的 $\alpha$ -烯烃,特别优选丙烯和 1-丁烯。再者,上述列举的 $\alpha$ -烯烃可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0058] 作为上述乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物,可举出乙烯-丙烯共聚物、乙烯-1-丁烯共聚物、乙烯-1-戊烯共聚物、乙烯-3-甲基-1-丁烯共聚物、乙烯-1-己烯共聚物、乙烯-3-甲基-1-戊烯共聚物、乙烯-4-甲基-1-戊烯共聚物、乙烯-3-乙基-1-戊烯共聚物、乙烯-1-辛烯共聚物、乙烯-1-癸烯共聚物、乙烯-1-十一碳烯共聚物等。其中,优选乙烯-丙烯共聚物和乙烯-1-丁烯共聚物。再者,上述列举的乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

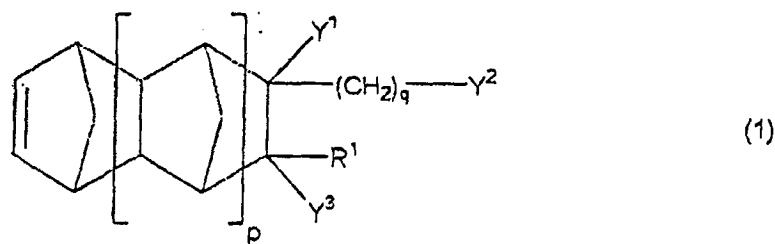
[0059] 另外,作为制成乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物时的上述非共轭二烯,可列举 1,4-戊二烯、1,4-己二烯、1,5-己二烯、1,7-辛二烯、1,9-癸二烯、3,6-二甲基-1,7-辛二烯、4,5-二甲基-1,7-辛二烯、5-甲基-1,8-壬二烯、双环戊二烯、5-亚乙基-2-降冰片烯、5-乙烯基-2-降冰片烯、2,5-降冰片二烯等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0060] 作为上述乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物,可举出乙烯-丙烯-双环戊二烯共聚物、乙烯-丙烯-5-亚乙基-2-降冰片烯共聚物、乙烯-1-丁烯-双环戊二烯共聚物、乙烯-1-丁烯-5-亚乙基-2-降冰片烯共聚物等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0061] 此外,上述乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物及上述乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物,也可以是各聚合物中含有其他单体(a)构成的单体单元的聚合物。作为其他单体(a),优选具有羧基、羟基、环氧基、氨基、烷氧基甲硅烷基、磺酸基、腈基等官能团的不饱和化合物。这样的不饱和化合物可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。另外,上述不饱和化合物的使用量相对于全部单体优选为 0.01 ~ 10 质量%,更优选为 0.1 ~ 5 质量%。

[0062] 作为具有羧基的不饱和化合物,可以使用马来酸酐、(甲基)丙烯酸、下述通式(1)表示的环式化合物等。

[0063]



[0064] (上述通式(1)中,  $R^1$  是氢原子或  $C_{1-10}$  的烃基,  $Y^1$ 、 $Y^2$  及  $Y^3$  各自独立地是氢原子、 $C_{1-10}$  的烃基或  $-COOH$ ,  $Y^1$ 、 $Y^2$  及  $Y^3$  中至少 1 个是  $-COOH$ , 另外,  $Y^1$ 、 $Y^2$  及  $Y^3$  中大于等于 2 个是  $-COOH$  时, 也可以是这些相互连接形成的酸酐 ( $-CO-(O)-CO-$ )。p 是 0 ~ 2 的整数, q 是 0 ~ 5 的整数)。

[0065] 作为上述通式(1)表示的环式化合物, 可举出 5,6-二甲基-5,6-二羧基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5,6-二乙基-5,6-二羧基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5,6-二甲基-5,6-双(羧甲基)-双环[2.2.1]-2-庚烯、5,6-二乙基-5,6-双(羧甲基)-双环[2.2.1]-2-庚烯、5-甲基-5-羧基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5-乙基-5-羧基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5-羧基-5-羧甲基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5-甲基-5-羧甲基-双环[2.2.1]-2-庚烯、5-乙基-5-羧甲基-双环[2.2.1]-2-庚烯、8,9-二甲基-8,9-二羧基-四环[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]-3-十二碳烯、8,9-二乙基-8,9-二羧基-四环[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]-3-十二碳烯、8-甲基-8-羧基-四环[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]-3-十二碳烯、8-乙基-8-羧基-四环[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]-3-十二碳烯等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0066] 使用上述通式(1)所示环式化合物时, 其使用量相对于全部单体优选为 0.01 ~ 15 质量%, 更优选为 0.1 ~ 10 质量%。

[0067] 使上述通式(1)所示环式化合物共聚的乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物或乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物优选是无规共聚物。另外, 共聚得到的无规共聚物采用 GPC 测定的聚苯乙烯换算的重均分子量  $M_w$  优选为 1000 ~ 3000000, 更优选为 3000 ~ 1000000, 进一步优选为 5000 ~ 700000。

[0068] 作为本发明所涉及的烯烃类聚合物, 可以将上述列举的乙烯- $\alpha$ -烯烃共聚物及乙烯- $\alpha$ -烯烃-非共轭二烯共聚物各自单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0069] 作为上述丙烯酸类聚合物, 可举出由含有丙烯酸烷基酯的单体制得的聚合物等。

[0070] 作为上述丙烯酸烷基酯, 可举出丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸正丙酯、丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯、丙烯酸正戊酯、丙烯酸异戊酯、丙烯酸正己酯、丙烯酸 2-甲基戊酯、丙烯酸正辛酯、丙烯酸 2-乙基己酯、丙烯酸正癸酯、丙烯酸正十二烷酯、丙烯酸正十八烷酯、丙烯酸氰基甲酯、丙烯酸 1-氰基乙酯、丙烯酸 2-氰基乙酯、丙烯酸 1-氰基丙酯、丙烯酸 2-氰基丙酯、丙烯酸 3-氰基丙酯、丙烯酸 4-氰基丁酯、丙烯酸 6-氰基己酯、丙烯酸 2-乙基-6-氰基己酯、丙烯酸 8-氰基辛酯等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0071] 上述丙烯酸类聚合物只要是丙烯酸烷基酯与其他单体的共聚物, 可以是树脂也可以是橡胶。上述丙烯酸类聚合物, 例如为丙烯酸橡胶时, 可以使用丙烯酸烷氧基烷基酯、烯键式不饱和化合物、交联性化合物等作为其他单体。

[0072] 作为上述丙烯酸烷氧基烷基酯, 可举出丙烯酸 2-甲氧基乙酯、丙烯酸 2-乙氧基乙酯、丙烯酸 2-正丙氧基乙酯、丙烯酸 2-正丁氧基乙酯、丙烯酸 3-甲氧基丙酯、丙烯酸 3-乙

氧基丙酯、丙烯酸 2-正丙氧基丙酯、丙烯酸 2-正丁氧基丙酯等。

[0073] 作为上述烯键式不饱和化合物,可举出丙烯酸、甲基丙烯酸、巴豆酸、2-戊烯酸、马来酸、富马酸、衣康酸等具有羧基的化合物;(甲基)丙烯酸 1,1-二氢全氟乙酯、(甲基)丙烯酸 1,1-二氢全氟丙酯、(甲基)丙烯酸 1,1,5-三氢全氟己酯、(甲基)丙烯酸 1,1,2,2-四氢全氟丙酯、(甲基)丙烯酸 1,1,7-三氢全氟庚酯、(甲基)丙烯酸 1,1-二氢全氟辛酯、(甲基)丙烯酸 1,1-二氢全氟癸酯等含氟丙烯酸酯;(甲基)丙烯酸 1-羟基丙酯、(甲基)丙烯酸 2-羟基丙酯、(甲基)丙烯酸羟基乙酯等具有羟基的化合物;(甲基)丙烯酸二乙氨基乙酯、(甲基)丙烯酸二丁氨基乙酯等具有叔氨基的单体;甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸辛酯等甲基丙烯酸酯;甲基乙烯基酮等烷基乙烯基酮;乙烯基乙基醚、烯丙基甲基醚等乙烯基及烯丙基醚;苯乙烯、 $\alpha$ -甲基苯乙烯、氯苯乙烯、乙烯基甲苯等乙烯基芳香族化合物;丙烯腈、甲基丙烯腈等乙烯基氰化合物;乙烯、丙烯、丁烯、氯乙烯、偏氯乙烯、氟乙烯、偏氟乙烯、醋酸乙烯酯、丙酸乙烯酯、富马酸烷基酯等。

[0074] 作为上述交联性化合物,可举出二烯类化合物、具有二氢双环戊二烯基的(甲基)丙烯酸酯、具有环氧基的烯键式不饱和化合物、含有活性卤素的烯键式不饱和化合物、具有羧基的烯键式不饱和化合物、具有活性氢基的烯键式不饱和化合物等。

[0075] 作为上述氨基甲酸酯类聚合物,可举出使有机二异氰酸酯、高分子二元醇与链增长剂反应得到的聚氨酯等。

[0076] 作为上述有机二异氰酸酯,可举出 4,4'-二苯基甲烷二异氰酸酯、甲苯二异氰酸酯、1,5-萘二异氰酸酯、苯二亚甲基二异氰酸酯、苯二异氰酸酯、3,3'-二氯-4,4'-二苯基甲烷二异氰酸酯等芳香族二异氰酸酯类;六亚甲基二异氰酸酯、异佛尔酮二异氰酸酯、4,4'-二环己基甲烷二异氰酸酯、氢化苯二亚甲基二异氰酸酯等脂肪族或脂环式二异氰酸酯类等。这些有机二异氰酸酯可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0077] 另外,作为上述高分子二元醇,可举出聚酯二元醇、聚醚二元醇、聚碳酸酯二元醇、聚酯聚碳酸酯二元醇、聚酯聚醚二元醇等。

[0078] 其中,作为聚酯二元醇,可举出由脂肪族二元醇与脂肪族二羧酸或它们的酯形成性衍生物的反应得到的脂肪族聚酯二元醇、由脂肪族二元醇与芳香族二羧酸或它们的酯形成性衍生物的反应得到的芳香族聚酯二元醇等。此外,作为聚醚二元醇,可举出聚乙二醇、聚丙二醇、聚 1,4-丁二醇或它们的嵌段共聚物等。此外,作为聚碳酸酯二元醇,可举出由脂肪族二元醇与碳酸酯化合物的反应制得的聚碳酸酯二元醇、由双酚 A 等芳香族二元醇与碳酸酯化合物的反应制得的聚碳酸酯二元醇等。这些高分子二元醇可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0079] 作为上述链增长剂,可以使用以往公知的链增长剂。上述链增长剂,可以列举例如分子中具有大于等于 2 个能与异氰酸酯基反应的活性氢原子的分子量小于等于 300 的低分子化合物,例如乙二醇、丙二醇、1,4-丁二醇、1,6-己二醇、1,4-双( $\beta$ -羟基乙氧基)苯、1,4-环己二醇、对苯二甲酸二( $\beta$ -羟基乙基)酯、苯二甲醇等二元醇类;肼、乙二胺、丙二胺、苯二甲胺、异佛尔酮二胺、哌嗪及其衍生物、苯二胺、甲苯二胺、二甲苯二胺、己二酸二肼、间苯二甲酸二肼等二胺类;氨基乙醇、氨基丙醇等氨基醇类等。这些可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0080] 作为上述聚酰胺类聚合物,可举出由聚酰胺构成的硬链段与聚酯、聚醚、聚酯-聚

醚等构成的软链段构成的共聚物等。

[0081] 作为上述聚酰胺链段,可举出由  $\omega$ -氨基己酸、 $\omega$ -氨基庚酸、 $\omega$ -氨基辛酸、 $\omega$ -氨基壬酸、 $\omega$ -氨基癸酸、11-氨基十一烷酸、12-氨基十二烷酸等大于等于  $C_6$  的氨基羧酸衍生的链段;由己内酰胺、月桂内酰胺等内酰胺衍生的链段;由乙二胺、1,2-丙二胺、1,3-丙二胺、1,4-丁二胺、1,5-戊二胺、3-甲基-1,5-戊二胺、1,6-己二胺、1,7-庚二胺、1,8-辛二胺、2-甲基-1,8-辛二胺、1,9-壬二胺、1,10-癸二胺、1,11-十一烷二胺、1,12-十二烷二胺、环己二胺等二胺成分与戊二酸、己二酸、庚二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十二烷二酸、对苯二甲酸、间苯二甲酸、邻苯二甲酸、萘-2,6-二甲酸、联苯-4,4'-二甲酸、二苯氧基乙烷二甲酸等二羧酸成分衍生的链段等。

[0082] 作为上述聚酯链段,可举出由  $\omega$ -羟基己酸等羟基羧酸衍生的链段;由  $\epsilon$ -己内酯等内酯衍生的链段;由戊二酸、己二酸、庚二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十二烷二酸、对苯二甲酸、间苯二甲酸、邻苯二甲酸、萘-2,6-二甲酸、联苯-4,4'-二甲酸、二苯氧基乙烷二甲酸等二羧酸成分与乙二醇、二甘醇、三甘醇、四甘醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,4-丁二醇、1,3-丁二醇、新戊二醇、1,5-戊二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、1,6-己二醇、1,7-庚二醇、1,8-辛二醇、2-甲基-1,8-辛二醇、1,9-壬二醇、1,10-癸二醇、环己烷二甲醇、环己二醇等二醇成分衍生的链段等。

[0083] 另外,作为上述聚醚链段,可举出聚亚甲基二醇、聚乙二醇、聚丙二醇、聚 1,4-丁二醇、聚 1,6-己二醇等链段等。

[0084] 此外,作为上述聚酯聚醚链段,可举出由上述聚酯链段的二羧酸成分与聚亚甲基二醇、聚乙二醇、聚丙二醇、聚 1,4-丁二醇、聚 1,6-己二醇等二醇成分衍生的链段等。

[0085] 作为上述聚酯类聚合物,可举出以聚对苯二甲酸丁二醇酯等聚酯为硬链段,以聚四亚甲基二醇醚 (PTMG)、PTMEGT (PTMG 与对苯二甲酸的缩合物) 等聚醚为软链段的聚酯-聚醚型聚合物;以聚酯为硬链段,以聚己内酯等脂肪族聚酯为软链段的聚酯-聚酯型聚合物等。

[0086] 作为上述氟类聚合物,可举出由含有偏氟乙烯的单体制得的聚合物等。作为其他单体,可举出全氟乙烯基醚、四氟乙烯、六氟丙烯、三氟氯乙烯、乙烯、丙烯、交联性化合物等。

[0087] 上述列举的聚合物中,作为柔软性聚合物组合物所含有的聚合物,优选二烯类聚合物和烯炔类聚合物。它们通过成为如上所述的特定的结构,可以形成具有透明性的成型体,例如即使是与透明的玻璃、塑料等密合时也不会导致透明性的降低。

[0088] 此外,本发明所涉及的柔软性聚合物组合物中含有的聚合物,除了上述列举的聚合物外,也可以将乙烯-醋酸乙烯酯共聚物、苯乙烯类聚合物、聚碳酸酯、聚缩醛、环氧类聚合物等聚合物任意组合使用。

[0089] 本发明所涉及的柔软性聚合物组合物可以是只含有上述列举的聚合物构成的组合物,在不损害成型体透明性的范围内也可以含有添加剂等。作为添加剂,可举出软化剂、增塑剂、润滑剂、交联剂、交联助剂、抗氧化剂、防老剂、热稳定剂、阻燃剂、抗菌-防霉剂、耐候剂、紫外线吸收剂、增粘剂、成核剂、颜料、染料、有机填充剂、无机填充剂、硅烷偶联剂、钛偶联剂等。

[0090] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料不仅具有透明性,也具有柔软性。本发明



足上述条件的物质,则适宜使用软化剂、增塑剂、润滑剂、液态聚合物等。

[0098] 作为软化剂,可举出石蜡类油等天然或合成的石油类软化剂,乙烯- $\alpha$ -烯烃类低聚物,硬沥青等矿物油类软化剂,油酸、蓖麻醇酸等脂肪酸等。作为增塑剂,可举出邻苯二甲酸衍生物、间苯二甲酸衍生物、四氢邻苯二甲酸衍生物、己二酸衍生物、癸二酸衍生物、富马酸衍生物、柠檬酸衍生物、壬二酸衍生物、磷酸衍生物、马来酸衍生物等各种脂肪酸的衍生物等。作为润滑剂,可举出石蜡类润滑剂、烃类润滑剂、金属皂等。另外,作为液态聚合物,可举出液态聚丁二烯、液态苯乙烯-丁二烯橡胶等液态橡胶,聚异丁烯,硅油等。上述列举的液态物质可以单独使用 1 种或将大于等于 2 种组合使用。

[0099] 上述液态物质的使用量,将上述柔软性聚合物组合物所含有的聚合物的总量计为 100 质量份时,优选为 50 ~ 5000 质量份,更优选为 50 ~ 4000 质量份,进一步优选为 50 ~ 3000 质量份,特别优选为 70 ~ 2000 质量份。上述液态物质的配合量低于 50 质量份时,有时不能得到具有所期望弹性模量的成型体。而上述液态物质的配合量大于 5000 质量份时,有时液态物质从成型体中渗出,有时难以维持透明性。

[0100] 使用上述柔软性聚合物组合物,采用注射成型、挤出成型、中空成型、压缩成型、真空成型、层压成型、压延成型、流延成型、涂覆成型、辊成型、T 型模涂覆、T 型模挤出成型、浇铸成型等公知的方法,可以制得具有所期望形状的成型体。制得的成型体的透明性优异,厚度为 0.5mm 时,其雾度优选低于 5%,更优选小于等于 4.5%,进一步优选小于等于 4%。另外,制得的成型体的总光线透过率优选大于等于 90%,更优选大于等于 91%,进一步优选大于等于 92%。上述总光线透过率可在宽温度范围内获得,例如可在 -100 ~ 110°C、优选 -50 ~ 100°C 获得。雾度和总光线透过率的测定方法将后述。

[0101] 另外,制得的成型体具有优异的强度及柔软性。制得的成型体在 30°C、1Hz 的条件下采用动态粘弹性测定得到的剪切贮能模量 ( $G'$ ) 优选小于等于  $1 \times 10^{10}$  dyn/cm<sup>2</sup>,更优选小于等于  $1 \times 10^8$  dyn/cm<sup>2</sup>,进一步优选小于等于  $1 \times 10^6$  dyn/cm<sup>2</sup>,通常为大于等于 1 dyn/cm<sup>2</sup>。剪切贮能模量的测定方法将后述。

[0102] 另外,制得的成型体耐热性也优异。制得的成型体优选在 -80 ~ 110°C、更优选在 -50 ~ 100°C 下同时具有柔软性、透明性及形状保持性。

[0103] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料,因具有如上所述的性质,故至少适合密封发光元件整体,进而填埋围绕发光元件的空间部分。

[0104] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料的形状没有限定,可以制成符合空间部分形状的形状。另外,也可以制成具有薄壁部分的薄壁体,可制成板状体、凹状体等。在这种情况下最薄部分的厚度优选为小于等于 2000  $\mu$ m,更优选 0.1 ~ 2000  $\mu$ m,进一步优选 0.1 ~ 1000  $\mu$ m,特别优选 0.1 ~ 500  $\mu$ m,进一步优选为 0.1 ~ 100  $\mu$ m。

[0105] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料,例如可以配置在图 1 所示 EL 显示屏 1 的规定位置。即,图 1 所示的形态是有机 EL 元件用透明密封材料 2 填埋图 3 所示发光元件 3(图 1 中的构成部件 31 ~ 34)的发光面(图 1 中的上方)和密封部件 4 之间的空间部分而密合于这两者进行配置的说明图。本发明的有机 EL 元件用透明密封材料,如上所述由于柔软性优异,故可以密合发光元件使之充分密封,因此图像的可视性提高。

[0106] 另外,本发明的有机 EL 元件用透明密封材料也可以以图 2 所示的形态使用。即,也可以配置透明密封材料使之填埋发光元件(图 1 中的构成部件 31 ~ 34)的发光面(图

2 中的上方) 和密封部件 4(图 2 中的形状有时也称为“密封罐”) 之间的空间部分。

[0107] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料的使用方法并不限于图 1 及图 2 所示的形态, 不论是哪种配置方法均可以长时间地持续维持上述说明的性质。即, 本有机 EL 元件用透明密封材料不随使用时间而劣化, 而且对发光元件损伤少, 产生暗斑也少。

[0108] 上述密封部件(图 1 和图 2 中序号 4) 可以是具有不严重阻碍显示屏显示内容可视性的性质的材料。作为构成上述密封部件的材料, 例如可以使用玻璃、树脂等。作为玻璃, 可举出硼硅酸玻璃、铝硅酸玻璃、铝硼硅酸玻璃、石英玻璃、低碱玻璃、钠钙玻璃等。此外, 作为树脂, 可举出聚碳酸酯类树脂、聚缩醛类树脂、1,2- 聚丁二烯树脂、优选含有大于等于 3 质量% 醋酸乙烯酯单元的乙烯-醋酸乙烯酯共聚物、聚乙烯、聚丙烯等烯烃类树脂、苯乙烯类树脂、丙烯酸类树脂、乙烯基酯类树脂、饱和聚酯类树脂、聚酰胺类树脂、聚偏氟乙烯等氟树脂、氨基甲酸酯类树脂、环氧类树脂、不饱和聚酯类树脂、硅氧烷类树脂等。

[0109] 上述密封部件的形状可以如图 1 所示是板状, 也可以如图 2 所示是覆盖发光部件等的盖型形状。

## 实施例

[0110] 以下, 列举实施例对本发明进行具体说明。本发明不受这些实施例的任何限制。另外, 实施例中的“%”及“份”, 只要没有特殊说明则是质量基准。

[0111] 1. 柔软性聚合物组合物的制备

[0112] 使用采用以下所示方法制得的聚合物和液态物质, 按表 1 所述的比例进行混合, 制备柔软性聚合物组合物(i) ~ (vii)。

[0113] 1-1. 聚合物

[0114] (1) 丁二烯嵌段聚合物的氢化物(A1)

[0115] 向氮气置换过的内容积 50 升的反应容器中投入 25kg 环己烷、1g 四氢呋喃、1500g 1,3- 丁二烯及 3.9g 正丁基锂, 在 70℃ 下进行绝热聚合。反应结束后, 使反应溶液的温度为 40℃, 添加 100g 四氢呋喃及 3500g 1,3- 丁二烯再进行绝热聚合。30 分钟后, 添加 2.7g 甲基二氯硅烷, 进行 15 分钟反应, 完成反应。

[0116] 然后, 以 0.4MPa-G 的压力供给氢气, 边搅拌反应溶液边与作为活性阴离子存活的聚合物末端锂反应 20 分钟, 形成氢化锂。然后, 使反应溶液为 90℃, 再添加 0.8g 四氯硅烷, 搅拌约 20 分钟。接着, 向反应溶液中加入以二茂钛化合物为主体的氢化催化剂, 使氢气的供给压力为 0.8MPa, 进行 2 小时氢化反应, 在氢的吸收结束的时刻, 使反应溶液恢复到常温、常压, 从反应容器中抽出。然后, 通过将反应溶液搅拌投入水中, 经水蒸汽蒸馏除去溶剂, 得到氢化嵌段聚合物 A1。制得的氢化嵌段聚合物 A1 的氢化率为 99%, 重均分子量为 34 万, 氢化前聚合物第 1 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量为 15%, 氢化前聚合物第 2 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量为 49%。

[0117] (2) 丁二烯嵌段聚合物的氢化物(A2)

[0118] 向氮气置换过的内容积 50 升的反应容器中投入 25kg 环己烷、1g 四氢呋喃、1500g 1,3- 丁二烯及 4.1g 正丁基锂, 在 70℃ 下进行绝热聚合。反应结束后, 使反应溶液的温度为 35℃, 添加 27g 四氢呋喃及 3500g 1,3- 丁二烯再进行绝热聚合。30 分钟后添加 2.9g 甲基二氯硅烷, 进行 15 分钟反应, 完成反应。

[0119] 然后,以 0.4MPa-G 的压力供给氢气,边搅拌反应溶液边与作为活性阴离子存活的聚合物末端锂进行 20 分钟反应,形成氢化锂。然后,使反应溶液为 90℃,再添加 0.9g 四氯硅烷,搅拌约 20 分钟。接着,向反应溶液中加入以二茂钛化合物为主体的氢化催化剂,使氢气的供给压力为 0.8MPa,进行 2 小时氢化反应,在氢的吸收结束的时刻,使反应溶液恢复到常温、常压,从反应容器中抽出。然后将反应溶液搅拌投入水中,经水蒸汽蒸馏除去溶剂,制得氢化嵌段聚合物 A2。制得的氢化嵌段聚合物 A2 的氢化率为 98%,重均分子量为 29 万,氢化前聚合物第 1 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量为 14%,氢化前聚合物第 2 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量为 35%。

[0120] (3) 丁二烯嵌段聚合物的氢化物 (A 3)

[0121] 向氮气置换过的内容积 50 升的反应容器中投入 25kg 环己烷、1g 四氢呋喃、1500g 1,3-丁二烯及 4.1g 正丁基锂,在 70℃ 下进行绝热聚合。反应结束后,使反应溶液的温度为 5℃,添加 350g 四氢呋喃及 3500g 1,3-丁二烯再进行绝热聚合。30 分钟后,添加 2.9g 甲基二氯硅烷,进行 15 分钟反应,完成反应。

[0122] 然后,以 0.4MPa-G 的压力供给氢气,边搅拌反应溶液边与作为活性阴离子存活的聚合物末端锂进行 20 分钟反应,形成氢化锂。然后,使反应溶液为 90℃,再添加 0.9g 四氯硅烷,搅拌约 20 分钟。接着,向反应溶液中加入以二茂钛化合物为主体的氢化催化剂,使氢气的供给压力为 0.8MPa,进行 2 小时氢化反应,在氢的吸收结束时刻,使反应溶液恢复到常温、常压,从反应容器中抽出。然后将反应溶液搅拌投入水中,经水蒸汽蒸馏除去溶剂,得到氢化嵌段聚合物 A3。制得的氢化嵌段聚合物 A3 的氢化率为 99%,重均分子量为 30 万,氢化前聚合物第 1 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量为 15%,氢化前聚合物第 2 段的丁二烯聚合物嵌段的乙烯基键含量是 78%。

[0123] (4) 二烯类聚合物的氢化物 (A4)

[0124] 向氮气置换过的内容积 50 升的反应容器中投入 25kg 环己烷、1g 四氢呋喃、200g 苯乙烯及 4.1g 正丁基锂,在 50℃ 下进行绝热聚合。反应结束后,使反应溶液的温度为 10℃,添加 750g 四氢呋喃、200g 苯乙烯及 4500g 1,3-丁二烯再进行绝热聚合。反应完成后,再添加 200g 苯乙烯进行绝热聚合。

[0125] 然后,以 0.4MPa-G 的压力供给氢气,边搅拌反应溶液边与作为活性阴离子存活的聚合物末端锂进行 20 分钟反应,形成氢化锂。此后,使反应溶液为 90℃,向反应溶液中加入以二茂钛化合物为主体的氢化催化剂,使氢气的供给压力为 0.8MPa,进行 2 小时氢化反应,在氢的吸收结束时刻,将反应溶液恢复到常温、常压,从反应容器中抽出。然后,通过将反应溶液搅拌投入水中,经水蒸汽蒸馏除去溶剂,制得氢化嵌段聚合物 A4。制得的氢化嵌段聚合物 A4 的氢化率为 99%,重均分子量为 30 万,氢化前聚合物第 2 段的聚合物嵌段的乙烯基键含量为 80%。

[0126] (5) 烯炔类聚合物 (A5)

[0127] 将含有乙烯形成的结构单元 75.1 摩尔%、丙烯形成的结构单元 22.8 摩尔%、5-亚乙基-2-降冰片烯形成的结构单元 1.8 摩尔%、及 8-甲基-8-羧基四环[4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>]-3-十二碳烯形成的结构单元 0.3 摩尔%,重均分子量 (Mw) 为  $16.0 \times 10^4$  的含有官能团的烯炔类共聚物 100 份溶解于 1000 份甲苯中,然后相对于含有官能团的烯炔类共聚物中的官能团 1 当量,加入 1 当量的丁氧基锆 (IV) (使用 85% 的 1-丁醇溶液 (和光

纯药工业公司制), 在 80℃ 下搅拌 1 小时后, 干燥除去甲苯制得聚合物 A5。

[0128] 1-2. 液态物质

[0129] B1 : 是 40℃ 下的运动粘度为 30.85mm<sup>2</sup>/s 的矿物油类软化剂 (出光兴产公司制, 商品名“PW-32”)。

[0130] B2 : 是 40℃ 下的运动粘度为 95.54mm<sup>2</sup>/s 的矿物油类软化剂 (出光兴产公司制, 商品名“PW-90”)。

[0131] B3 : 是 40℃ 下的运动粘度为 381.6mm<sup>2</sup>/s 的矿物油类软化剂 (出光兴产公司制, 商品名“PW-380”)。

[0132] 另外, 作为比较例中使用的柔软性聚合物组合物 (viii), 使用热塑性聚氨酯 (Kuraray 公司制, 商品名“Kuramilon U1190”) A6。

[0133] 表 1

[0134]

|              |    | 柔软性重合物组合物 |      |       |      |     |      |       |        |      |     |
|--------------|----|-----------|------|-------|------|-----|------|-------|--------|------|-----|
|              |    | (i)       | (ii) | (iii) | (iv) | (v) | (vi) | (vii) | (viii) | (ix) | (x) |
| 重合物<br>(份)   | A1 | 100       | 100  | 100   |      |     | 100  |       |        |      |     |
|              | A2 |           |      |       | 100  |     |      |       |        |      |     |
|              | A3 |           |      |       |      | 100 |      |       |        |      |     |
|              | A4 |           |      |       |      |     |      | 100   | 100    |      |     |
|              | A5 |           |      |       |      |     |      |       |        | 100  |     |
|              | A6 |           |      |       |      |     |      |       |        |      | 100 |
| 液态物<br>质 (份) | B1 | 1600      | 800  | 400   |      |     |      |       |        |      |     |
|              | B2 |           |      |       | 800  | 800 |      |       | 100    |      |     |
|              | B3 |           |      |       |      |     | 800  |       |        |      |     |

[0135] 2. 有机 EL 元件用透明密封材料的制造及其评价

[0136] 实施例 1

[0137] 使用上述柔软性聚合物组合物 (i), 采用涂覆成型制得板状薄壁体, 将其作为有机 EL 元件用透明密封材料, 对该有机 EL 元件用透明密封材料采用以下的方法进行评价。将其结果示于表 2。

[0138] (1) 总光线透过率及雾度

[0139] 将厚度 0.5mm 的薄壁体夹在 2 片厚度 0.7mm 的熔融成型铝硅酸薄板玻璃 (康宁公司制, 商品名“Corning 1737”) 之间, 使用总光线透过率雾度测定装置 (BYK-Gardner 公司制, 商品名“Haze-gard plus4725”) 测定 25℃ 下的总光线透过率 (%) 及雾度 (%). 透明度在雾度低于 5%、透明度优异时记为“○”, 雾度大于等于 5%、透明度差时记为“×”。

[0140] (2) 图像的可视性

[0141] 使印刷物密合于厚度 500 μm 的有机 EL 元件用透明密封材料上, 目视判断印刷物的可视性。良好时记为“○”, 不良时记为“×”。

[0142] (3) 粘弹性

[0143] 使用动态粘弹性测定装置 (Rheology 公司制“MR-500”), 在温度 30°C、1Hz 的条件下测定剪切贮能模量 ( $G'$ ) 及  $\tan \delta$ 。 $G'$  也在 70°C、1Hz 的条件下进行测定。该剪切贮能模量大于 200 万时评价为柔软性差, 小于等于 200 万则评价为柔软性优异。

[0144] (4) 密封性

[0145] 制造在绝缘性透明玻璃形成的基板 31 上具有阳极层 32, 该阳极层上面具有发光层 33, 在该发光层上面又具有阴极层 34 的发光元件 3 (参照图 3), 然后, 在上述发光元件 3 的上述阴极层 34 的上面静置由上述柔软性聚合物组合物 (i) 制作的厚度 500  $\mu\text{m}$  的有机 EL 元件用透明密封材料 2。然后, 在上述有机 EL 元件用透明密封材料 2 的上面设置作为密封部件 4 的绝缘性透明玻璃, 制造 EL 显示屏的样品 (参照图 1)。此时, 将柔软性聚合物组合物柔软性优异, 可以无空隙地密合 EL 显示屏内部产生的空间部分的场合作为密封性好, 记为“○”, 将柔软性聚合物组合物柔软性差, 不能无空隙地密合 EL 显示屏内部产生的空间部分的场合作为密封性差, 记为“×”。

[0146] (5) 暗斑

[0147] 接着, 将上述样品在 80°C 下加热 100 小时, 然后冷却到室温 (25°C) 后, 起动发光元件, 观察暗斑 (不发光部位)。暗斑的面积相对于整体低于 5% 时为抑制暗斑的产生优异, 记为“○”, 大于等于 5% 时为抑制暗斑的产生差, 记为“×”。

[0148] 实施例 2 ~ 6、8

[0149] 使用上述柔软性聚合物组合物 (ii) ~ (vi)、(viii), 与实施例 1 同样地制得有机 EL 元件用透明密封材料。与实施例 1 同样地评各有机 EL 元件用透明密封材料。将其结果一并示于表 2。

[0150] 实施例 7、9

[0151] 使用上述柔软性聚合物组合物 (vii)、(ix), 在 200°C 下进行热压, 制得厚度 500  $\mu\text{m}$  的有机 EL 元件用透明密封材料。与实施例 1 同样地评价该有机 EL 元件用透明密封材料。将其结果一并示于表 2。

[0152] 比较例 1

[0153] 除了使用上述柔软性聚合物组合物 (X) (聚合物 A6), 在 160°C 下进行热压, 制得厚度 500  $\mu\text{m}$  的有机 EL 元件用透明密封材料以外, 与实施例 7 同样地进行评价。将其结果一并示于表 2。

[0154]

表 2

|                           | 实施例   |       |        |        |       |       |         |       |           |           | 比较例 |
|---------------------------|-------|-------|--------|--------|-------|-------|---------|-------|-----------|-----------|-----|
|                           | 1     | 2     | 3      | 4      | 5     | 6     | 7       | 8     | 9         | 1         |     |
| 雾度 (%)                    | 2.4   | 3.2   | 4.5    | 2.5    | 2.6   | 2.6   | 2.1     | 2     | 3         | 29.9      |     |
| 总光线透过率 (%)                | 94    | 94    | 93     | 94     | 94    | 94    | 94      | 94    | 93        | 93        |     |
| 透明度                       | ○     | ○     | ○      | ○      | ○     | ○     | ○       | ○     | ○         | ×         |     |
| 可视性                       | ○     | ○     | ○      | ○      | ○     | ○     | ○       | ○     | ○         | ×         |     |
| 剪断贮能模量                    | 1,900 | 5,800 | 27,300 | 10,700 | 5,500 | 6,100 | 332,000 | 5,800 | 1,240,000 | 4,690,000 |     |
| G' (dyn/cm <sup>2</sup> ) | 100   | 1,900 | 11,700 | 3,900  | 1,800 | 2,300 | 261,000 | 5,100 | 429,000   | 3,700     |     |
| 密封性                       | ○     | ○     | ○      | ○      | ○     | ○     | ○       | ○     | ○         | ×         |     |
| 暗斑                        | ○     | ○     | ○      | ○      | ○     | ○     | ○       | ○     | ○         | ×         |     |

[0155] 3. 评价结果

[0156] 由表 2 看出,比较例 1 因透明性差,故图像的可视性不良。此外,暗斑的面积也变

大。另一方面,实施例 1 ~ 9 的透明性、柔软性均优异,可以无空隙地密合填埋 EL 显示屏内部产生的空间部分。另外,实施例 1 ~ 9 的图像的可视性均高,可以充分地抑制暗斑的产生。

[0157] 本发明的有机 EL 元件用透明密封材料可适用于可视性高的有机 EL 显示屏。本发明的有机 EL 元件用透明密封材料可用于移动电话、便携信息终端、台式计算机、笔记本电脑、电视、车载用信息机、钟表等。

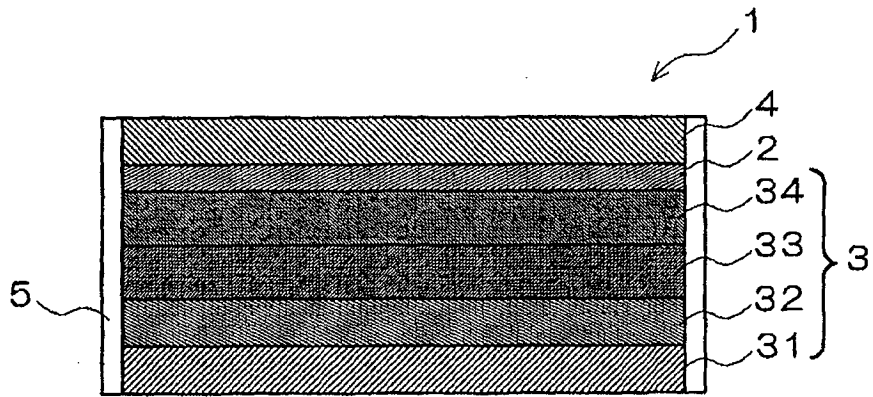


图 1

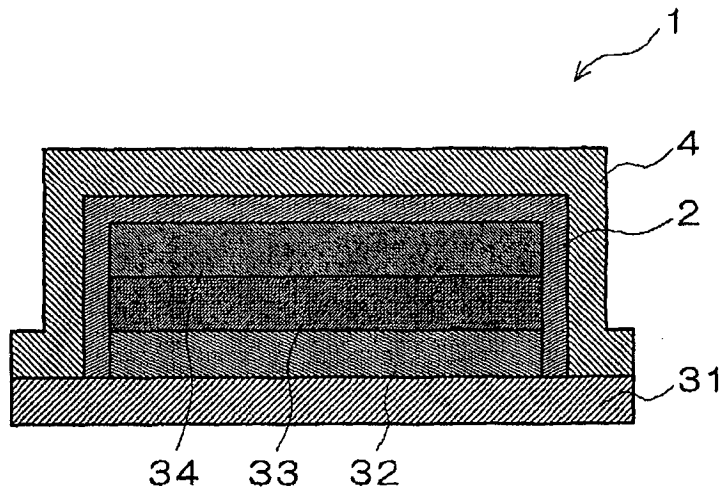


图 2

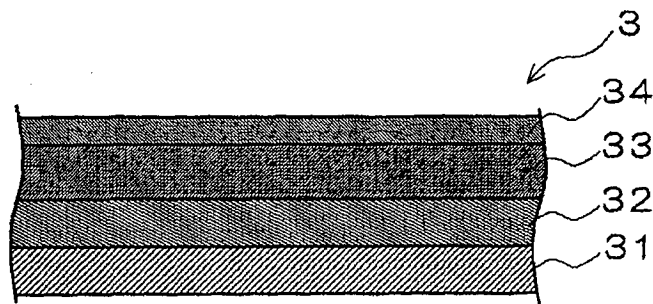


图 3

|                |  |         |            |
|----------------|--|---------|------------|
| 专利名称(译)        | 有机EL元件用透明密封材料  |         |            |
| 公开(公告)号        | <a href="#">CN1864438B</a>   | 公开(公告)日 | 2010-04-28 |
| 申请号            | CN200480028779.2   | 申请日     | 2004-10-01 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 杰瑟股份有限公司   |         |            |
| 申请(专利权)人(译)    | JSR株式会社  |         |            |
| 当前申请(专利权)人(译)  | JSR株式会社  |         |            |
| [标]发明人         | 铃木昌则<br>川田隆<br>沟内博行<br>森川明彦  |         |            |
| 发明人            | 铃木昌则<br>川田隆<br>沟内博行<br>森川明彦  |         |            |
| IPC分类号         | H05B33/04 H05B33/14 H01L51/52  |         |            |
| CPC分类号         | H01L2251/5338 H01L2251/5315 H01L51/5237 H01L51/5253 H01L51/524 Y10T428/26 Y10T428/3154 Y10T428/31551 Y10T428/31663 Y10T428/31725 Y10T428/31786 Y10T428/31855 Y10T428/31935 Y10T428/31938 |         |            |
| 代理人(译)         | 王健   |         |            |
| 审查员(译)         | 李莹   |         |            |
| 优先权            | 2003346262 2003-10-03 JP   |         |            |
| 其他公开文献         | CN1864438A   |         |            |
| 外部链接           | <a href="#">Espacenet</a> <a href="#">SIPO</a>   |         |            |

摘要(译)

本发明提供柔软性优异，可充分地密封有机EL元件，制成有机EL显示器时可抑制暗斑的产生，使图像的可视性提高的有机EL元件用透明密封材料。本发明的有机EL元件用透明密封材料2由柔软性聚合物组合物形成，配置于电致发光显示屏1的发光元件3的发光面与密封部件4之间，所述电致发光显示屏1具有依次含有基板31、阳极层32、发光层33和阴板层34的发光元件3以及配置在该发光元件3的发光面侧的密封部件4。

