

7₂ (19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 7 月 4 日 (04.07.2013)



(10) 国際公開番号
W O 2013/099875 A 1

- (51) 国際特許分類 :
G02B 5/18 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
G02B 5/00 (2006.01) H05B 33/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号 : PCT/JP20 12/083497
- (22) 国際出願日 : 2012 年 12 月 25 日 (25.12.2012)
- (25) 国際出願の言語 : 日本語
- (26) 国際公開の言語 : 日本語
- (30) 優先権データ :
特願 201 1-284820 201 1 年 12 月 27 日 (27.12.201 1) JP
特願 2012-024035 2012 年 2 月 7 日 (07.02.2012) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 旭化成株式会社 (ASAHI KASEI KABUSHIKI KAISHA)
[JP/JP]; 〒5308205 大阪府大阪市北区中之島三丁目3番23号 Osaka (JP).
- () 発明者 ; および
() 出願人 (米国についてのみ): 山口 布士人 (YAMAGUCHI, Fujito) [JP/JP]; 〒1018101 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 Tokyo (JP).
古池 潤 (KOIKE, Jun) [JP/JP]; 〒1018101 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 Tokyo (JP).
井上 直樹 (NOUE, Naoki) [JP/JP]; 〒1018101 東京

都千代田区神田神保町一丁目105番地 Tokyo (JP)-

(74) 代理人 : 青木 宏義 (AOKI, Hiroyoshi); 〒1020084 東京都千代田区二番町4番3 二番町カシユービル7 F Tokyo (JP).

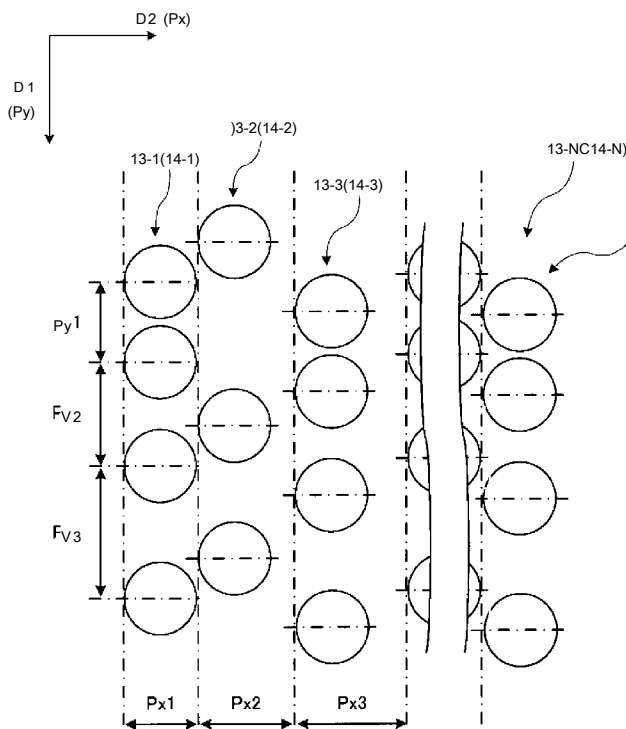
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, ML, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: OPTICAL SUBSTRATE AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称 : 光学用基材および発光デバイス



(57) Abstract: Provided is an optical substrate capable of reducing color shifts due to refraction of light. An optical substrate (12) is provided with a micro structure layer including a plurality of dots (31) configured from projections or depressions, the micro structure layer extending in the out-of-plane direction from the principal plane of the substrate, the micro structure layer has a plurality of dot rows in which a plurality of dots are arranged at a pitch (Py) in a first direction in the principal plane of the substrate, and has a plurality of dot rows in which a plurality of dots are arranged at a pitch (Px) in a second direction orthogonal to the first direction in the principal plane of the substrate, and the pitch (Py) and the pitch (Px) are both indefinite intervals and are each nano-order.

(57) 要約 : 光の回折に起因するカラーシフトを低減可能な光学用基材を提供する。光学用基材 (12) は、基材主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部から構成されるドット (31) を含む微細構造層を備え、この微細構造層は、基材主面内の第1方向において、複数のドットがピッチ (Py) で配列された複数のドット列を有し、基材主面内の第1方向に直交する第2方向において、複数のドットがピッチ (Px) で配列された複数のドット列を有しており、ピッチ (Py) およびピッチ (Px) はともに不定間隔であり、それぞれナノオーダーである。



(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称 : 光学用基材および発光デバイス

技術分野

[0001] 本発明は、ディスプレイ、照明等に使用される有機ＥＬに適用可能な光学用基材およびそれを用いた発光デバイスに関する。

背景技術

[0002] 近年、有機ＥＬ、蛍光、ＬＥＤ等の発光デバイスにおける発光効率の改善のために、発光材料の改善、低電圧化、光取り出し効率の改善等が検討されている。

[0003] 光取り出し効率を改善する方法としては、発光デバイスにおける光散乱層や低屈折率層の導入等が検討されている（特許文献１、特許文献２）。また、光の回折を利用して、導波モードの光の進行方向を発光デバイス面方向に偏光させることにより、光取り出し効率を上げる方法が知られている（特許文献３）。さらに、発光デバイスにおける発光部近傍に金属の周期格子構造もしくは微粒子の分散体を設け、表面プラズモンを励起することによって、高効率で光を外部に取り出す技術も考案されている（特許文献４、特許文献５、非特許文献１～非特許文献５）。

[0004] 金属表面の伝播型表面プラズモンは、金属等の導電体表面に入射した電磁波（可視光等）により生じる自由電子の分極波が、表面で横波の電場を形成するものである。平坦な金属表面に存在する伝播型表面プラズモンの場合、伝播光の分散直線とプラズモンの分散曲線は交差しないため、伝播光はプラズモンを直接励起できない。しかし、金属表面に周期格子構造があると、格子によってブラッグ反射された回折波がプラズモンの分極曲線と交差するようになるため、入射した電磁波と金属表面の自由電子の分極波が共鳴状態を作ることができる（非特許文献６）。

[0005] このとき、表面プラズモンの波数ベクトルは、光の波長と同程度の値となっており、励起子と光とがコヒーレントに結合して励起子ポラトリンとなる

。ボラ トリンは、自由電子の分極波と電磁波とが共鳴によりエネルギーをやり取りしている状態である。周期格子構造のピッチや高さが実質的に一定のとき、すなわち周期格子構造の結晶性が高いときには、表面プラズモンは 1 つの波数ベクトルを持つようになり、特定の入射角、周波数（波長）の光と結合し、いわゆる表面プラズモン共鳴による発光増強現象が観察される。

[0006] 例えば、非特許文献 5 においては、有機発光デバイス内の発光層における光と表面プラズモンの結合を誘発するために、周期的な波形の格子構造を使用することにより、放出された光の横方向の透過および導波を防止するとともに、当該構造体の光出力および効率を高めることが提案されている。この方法によれば、理論的には、有機 E L 発光デバイス内の有機発光材料が放出した光を最大 93 % までカップリングすることが可能である。

[0007] また、非特許文献 3 には半導体量子井戸構造の紫外励起による青色光の発光効率が、銀の周期構造により増強されることが示されている。また、非特許文献 4 には、同じく銀の周期構造により、L E D の発光効率が増強されることが示されている。

[0008] また、有機 E L 等の発光デバイスは、高屈折率領域が低屈折率領域によって挟まれる構成をとる。発光部は、高屈折率領域内部に含まれるため、発光部において発光した光は、導波モードとなり、高屈折率領域内部に閉じ込められるとともに、導波過程において吸収され減衰する。したがって、光をデバイス外部に取り出すことができず、光取り出し効率は大きく減少する。

[0009] 光取り出し効率を効果的に向上させるためには、発光した光が減衰される前に、導波モードを早期に乱す必要がある。そこで、光取り出し効率を改善するために、低屈折率領域と高屈折率領域との間に中間の屈折率層を形成する方法が提案されている（特許文献 6）。

[0010] しかしながら、特許文献 6 に記載の方法では、全反射を乱すことができないため、全反射した光は導波モードを維持し減衰するため、大幅な光取り出し効率の改善は見込めない。一方、導波モードを乱し、光取り出し効率を改善した例として、導波モードにより閉じ込められた光を、基板近傍に設けた

周期構造により、回折光として取り出す方法が提案されている（特許文献7）。

先行技術文献

特許文献

- [001 1] 特許文献1：特開2008-235605号公報
特許文献2：特表2004-513483号公報
特許文献3：特開2001-230069号公報
特許文献4：特開2004-31350号公報
特許文献5：特開2009-158478号公報
特許文献6：特開昭62-172691号公報
特許文献7：特表2010-533932号公報

非特許文献

- [001 2] 非特許文献1：Opt. Lett. , 30, 2302 (2005) Enhancement of EL through a two-dimensional corrugated metal film by grating-induced surface plasmon cross coupling
非特許文献2：App L. Phys. Lett. , 93, 051106 (2008) Enhancement of surface plasmon-mediated radioactive energy transfer through a corrugated metal cathode in organic light-emitting devices
非特許文献3：Nature Mater. , 3, 601 (2004) Surface Plasmon enhanced Light emitters based on InGaN quantum wells
非特許文献4：App L. Phys. Lett. , 77, 15, 2295 (2000) Optimization of the emission characteristics of LED by SP and surface waveguide mode
非特許文献5：App L. Phys. Lett. , Vol. 80, No. 20, 3679 (2002)
非特許文献6：光ナノテクノロジーの基礎 オーム社 P. 35 (2003)

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[001 3] これらの先行技術のうち、発光部近傍に金属の周期格子構造を導入し、表面プラズモン共鳴を利用した発光デバイスからの光取り出しにおいては、デバイス面全面にわたって実質的に均一な周期格子構造を設ける必要があり、また、その周期が可視光の光を回折するサイズであったため、観察方向を変えると光の回折に起因する急峻なカラーシフトが生じるという問題があった。

[0014] また、周期構造に基づく光の回折を利用して導波モードを乱す特許文献２に記載の方法では、発光デバイスから取り出された光に周期構造に基づく、光の回折特有のギラツキが生じる。ここで、ギラツキとは、特定角度で特定波長の光が点状の輝点として観察される現象を指し、カラーシフトを伴った輝点状の発光である。

[001 5] 上記した、カラーシフトとギラツキは、ディスプレイ、あるいは、照明用の発光デバイスとしては、致命的な問題であり、デバイス全体としての光取り出し効率は向上しても、実用としては採用し難い。このように、回折構造を利用した場合、光取り出し効率とカラーシフトおよびギラツキの発光特性とは、相反するものであった。

[001 6] 本発明はかかる点に鑑みてなされたものであり、光取り出し効率を改善し、かつ、光の回折に起因するカラーシフトとギラツキを抑えることができる光学用基材および発光デバイスを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[001 7] 本発明の光学用基材は、少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機ＥＬ発光デバイスに適用される光学用基材であって、基材主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部から構成されるドットを含む微細構造層を備え、前記微細構造層は、前記基材主面内の第１方向において、前記複数のドットがピッチ P_y で配列された複数のドット列を構成し、一方、前記基材主面内の前記第１方向に直交する第２方向において、前記複数のドット列がピッチ P_x で配列された複数のドット列を構成しており、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x はいずれか

一方がナノオーダーの一定間隔であり他方がナノオーダーの不定間隔であるか、またはいずれもナノオーダーの不定間隔であることを特徴とする。

[001 8] 本発明の光学用基材においては、前記ナノオーダーの不定間隔が変動幅 δ であることが好ましい。

[001 9] 本発明の光学用基材においては、不定間隔の前記ピッチ P_y は、各ドットの中心間の距離に等しく、不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記複数のドットが前記ピッチ P_y で配列された複数のドット列間距離に等しく、かつ、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x は各ドットの直径より大きく、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (1) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ピッチ $P_{y\ 1} \sim P_{y\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列され、前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 。ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である。) は、下記式 (2) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ピッチ $P_{x\ 1} \sim P_{x\ n}$ で構成されるドット列群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

$$P_{y\ 1} < P_{y\ 2} < P_{y\ 3} < \dots < P_{y\ a} > \dots > P_{y\ n} \quad (1)$$

$$P_{x\ 1} < P_{x\ 2} < P_{x\ 3} < \dots < P_{x\ a} > \dots > P_{x\ n} \quad (2)$$

[0020] 本発明の光学用基材においては、不定間隔の前記ピッチ P_y は、各ドットの中心間の距離に等しく、不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記複数のドットが前記ピッチ P_y で配列された複数のドット列間距離に等しく、かつ、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x は各ドットの直径より大きく、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、上記式 (1) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ピッチ $P_{y\ 1} \sim P_{y\ n}$ で

構成されるドット群が、長周期単位 $L y z$ を繰り返し配列した構成であり、かつ、前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{x n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、上記式 (2) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ピッチ $P_{x 1} \sim P_{x n}$ で構成されるドット列群が、長周期単位 $L x z$ を繰り返し配列した構成であることが好ましい。

[0021] 本発明の光学用基材においては、前記したドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減し、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{y n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (3) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット径 $D_{y 1} \sim D_{y n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列され、前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{x n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (4) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット径 $D_{x 1} \sim D_{x n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

$$D_{y 1} < D_{y 2} < D_{y 3} < \dots < D_{y a} > \dots > D_{y n} \quad (3)$$

$$D_{x 1} < D_{x 2} < D_{x 3} < \dots < D_{x a} > \dots > D_{x n} \quad (4)$$

[0022] 本発明の光学用基材においては、前記したドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減し、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{y n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、上記式 (3) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット径 $D_{y 1} \sim D_{y n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L y z$ で繰り返し配列され、かつ、前記ピッチ P

x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_x n$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (4) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット径 $D_x 1 \sim D_x n$ で構成されるドット群が長周期単位 L_{xz} で繰り返し配列されることが好ましい。

- [0023] 本発明の光学用基材においては、前記したドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対応して増減し、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ $H_y n$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (5) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット高さ $H_y 1 \sim H_y n$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列され、前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ $H_x n$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (6) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット径 $H_x 1 \sim H_x n$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

$$H_y 1 < H_y 2 < H_y 3 < \dots < H_y a > \dots > H_y n \quad (5)$$

$$H_x 1 < H_x 2 < H_x 3 < \dots < H_x a > \dots > H_x n \quad (6)$$

- [0024] 本発明の光学用基材においては、前記したドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対応して増減し、前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ $H_y n$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (5) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット高さ $H_y 1 \sim H_y n$ で構成されるドット群が長周期単位 L_{yz} で繰り返し配列され、かつ、前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の

前記ピッチを構成するドット高さ $H \times n$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、上記式 (6) の関係を満たすとともに、前記第 2 方向において、前記ドット高さ $H \times 1 \sim H \times n$ で構成されるドット群が長周期単位 $L \times z$ で繰り返し配列されることが好ましい。

[0025] 本発明の光学用基材は、少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機 EL 発光デバイスに適用される光学用基材であって、基材の主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部で構成される複数のドットを含む微細構造層を備え、前記微細構造層は、前記基材の主面内の第 1 方向において前記複数のドットが一定間隔のナノオーダーのピッチ P_y で配列されたドット列を構成し、且つ、これらのドット列を前記第 1 方向に直交する第 2 方向に一定間隔のナノオーダーのピッチ P_x で並設し、隣接する第 1 ドット列及び第 2 ドット列間の前記第 1 方向におけるシフト量 α_1 と、前記第 2 ドット列及び前記第 2 ドット列に隣接する第 3 ドット列間の前記第 1 方向におけるシフト量 α_2 とが互いに異なることを特徴とする。

[0026] 本発明の光学用基材においては、前記シフト量 α_1 と前記シフト量 α_2 の差分が一定でないことが好ましい。

[0027] 本発明の光学用基材は、少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機 EL 発光デバイスに適用される光学用基材であって、前記基材の基材主面から面外方向に延在する複数の凸部から構成されるラインを含む微細構造層を形成し、前記基材主面内の前記第 1 方向に沿ってライン構造を形成し、前記基材主面内の前記第 1 方向に直交する第 2 方向において、前記複数のラインがピッチ P_x で配列された複数のライン列を有しており、前記ピッチ P_x はナノオーダーの不定間隔であることを特徴とする。

[0028] 本発明の光学用基材においては、上記した不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記ライン構造の凸部幅より大きく、少なくとも、隣接する 4 個以上 m 個以

下の前記ピッチ $P_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (7) の関係を満たし、前記第 2 方向において、前記ピッチ $P_{x\ 1} \sim P_{x\ n}$ で構成される長周期 L_z が繰り返し配列されることが好ましい。

$$P_{x\ 1} < P_{x\ 2} < P_{x\ 3} < \dots < P_{x\ a} > \dots > P_{x\ n} \quad (7)$$

[0029] 本発明の光学用基材においては、前記基材は、樹脂からなることが好ましい。

[0030] 本発明の光学用基材においては、前記基材の表面に、金属膜が被覆されることが好ましい。さらに、前記基材が、金属からなることも好ましい。

[0031] 本発明の光学用基材においては、前記基材は、少なくとも、基材と前記微細構造層を構成する材料とで構成され、前記微細構造層を構成する材料の屈折率と、前記基材の屈折率との差が、0.15 以下であることが好ましい。

[0032] 本発明の光学用基材においては、前記基材の表面に、金属膜が被覆されることが好ましい。

[0033] 本発明の光学用基材においては、前記基材は、金属からなることが好ましい。

[0034] 本発明の光学用基材においては、前記基材の微細構造層の前記ドット上又は前記ライン上に設けられ、前記微細構造層の前記複数の凸部または凹部から構成されるドットまたは前記複数の凸部から構成されるラインに対応する形状の微細凹凸構造を有する透明誘電体層を具備し、前記透明誘電体層の前記微細凹凸構造を有する面とは反対側の面が平坦化されることが好ましい。

[0035] 本発明の発光デバイスは、上記光学用基材を少なくとも 1 つ有し、前記発光層は、前記光学用基材の微細構造層側の主面に対向して配置されていることを特徴とする。

発明の効果

[0036] 本発明によれば、光取り出し効率を改善し、かつ、光の回折に起因するカラーシフトとギラツキを抑えることができる光学用基材および発光デバイスを提供することができる。

図面の簡単な説明

- [0037] [図1] 第1の実施の形態に係る光学用基材の一例を示す斜視模式図である。
- [図2] 第1の実施の形態に係る光学用基材の他の例を示す斜視模式図である。
- [図3] 第1の実施の形態に係る光学用基材の平面模式図である。
- [図4] 第1の実施の形態に係る光学用基材における平均ピッチの概念図である。
- [図5] 第1の実施の形態に係る光学用基材の平面模式図である。
- [図6] 第1の実施の形態に係る光学用基材をD2方向からみた時の複数のドットの配置を示す模式図である。
- [図7] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図8] 第1の実施の形態に係る光学用基材におけるD2方向におけるドットの配置例を示す模式図である。
- [図9] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図10] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図11] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図12] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図13] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図14] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図15] 第1の実施の形態に係る光学用基材における複数のドットの配置の一例を示す模式図である。
- [図16] 第1の実施の形態に係る光学用基材におけるD2方向における異なる

ドット径を有するドットの配置例を示す模式図である。

[図17] 第1の実施の形態に係る光学用基材におけるD2方向における異なるドット高さを有するドットの配置例を示す模式図である。

[図18] 第2の実施の形態における光学用基材の平面模式図である。

[図19] 本発明の有機EL発光デバイスの一例を示す断面模式図である。

[図20] 本発明の有機EL発光デバイスの一例を示す断面模式図である。

[図21] 本発明の実施の形態に係る光学用基材の断面模式図である。

[図22] 本発明の有機EL発光デバイスの一例を示す断面模式図である。

[図23] 本発明の光学用基材の製造方法の一例を示す説明図である。

[図24] 本発明の光学用基材の製造方法におけるスピンドルモーターのZ相信号を基準信号として基準パルス信号、変調パルス信号を設定した一例を説明する説明図である。

[図25] 本発明の光学用基材の製造方法における基準パルス信号と変調パルス信号から、位相変調パルス信号を設定した一例を説明する説明図である。

[図26] 本発明の光学用基材の製造方法におけるレーザ光を照射する加工ヘッド部の移動速度の一例を説明する説明図である。

発明を実施するための形態

[0038] 本発明の実施の形態について、以下具体的に説明する。

本実施の形態に係る光学用基材は、基材主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部から構成されるドットを含む微細構造層を備え、前記微細構造層は、前記基材主面内の第1方向において、前記複数のドットがピッチ P_y で配列された複数のドット列を構成し、一方、前記基材主面内の前記第1方向に直交する第2方向において、前記複数のドット列がピッチ P_x で配列された複数のドット列を構成しており、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x はいずれか一方がナノオーダーの一定間隔であり他方がナノオーダーの不定間隔であるか、またはいずれもナノオーダーの不定間隔であることを特徴とする。

[0039] この構成によれば、ナノオーダーの凹凸が基材表面に設けられることによ

り、表面プラズモンを利用した場合は、発光効率が向上すると同時に、ナノオーダーの周期性が乱れることとなり、発光デバイスからの発光に対し、光散乱性を強く発現し、光取り出し効率を向上することができる。さらにナノオーダーの凹凸間隔は長周期で穏やかに変動しており、これにより、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上におけるカラーシフトを緩和することが可能となる。

[0040] また、デバイス内部の導光モードの光についても、ナノオーダーの凹凸が基材表面に設けられることにより、ピッチ P_x とピッチ P_y の両方、またはいずれか一方が不定間隔であることから、基材表面に設けられる凹凸のナノオーダーでの周期性は乱れることになり、発光層からの発光に対し、光散乱性を強く発現させることができる。この光散乱性によって、導光モードを乱し、光取り出し効率を高めることが可能となる。さらに、凹凸のナノオーダーでの均一性が乱れることによって、カラーシフトを低減し、より自然光に近い発光特性を得ることが可能となり、ギラツキを抑制することができる。

[0041] さらにピッチ P_y とピッチ P_x の両方、または、いずれか一方が不定間隔であることから、光学用基材表面に設けられる凹凸のナノオーダーでの周期性は乱れることとなり、発光デバイスからの発光に対し、光散乱性を強く発現させることが可能となる。この光散乱性によって、導光モードを解消し、同時に、カラーシフトとギラツキを抑制できる。

[0042] ここで、ピッチ P_y とピッチ P_x がともに不定間隔である場合には、周期性の乱れによる光散乱効果とカラーシフト低減効果を高めることができる。すなわち、導波モードを効果的に乱し、光取り出し効率を改善するとともに、より自然光に近い発光特性を得ることが可能となり、ギラツキの抑制に効果的である。表面プラズモン共鳴においても、発光効率向上の効果は低減するが、周期性の乱れによる光散乱効果をより高めることができる。

[0043] 一方、ピッチ P_y あるいはピッチ P_x のいずれかが不定間隔であり、もう一方が一定間隔の場合は、ピッチ P_y およびピッチ P_x がともに不定間隔である場合に比べて、周期性の乱れが減少し、散乱効果が減少するため、自然

光に近い発光特性は低下するが、回折効果による光取り出し効率が向上する。表面プラズモン共鳴においても、ピッチ P_y およびピッチ P_x がともに不定間隔である場合に比べて、ナノオーダーの凹凸間隔は、より均一性が高まる。これにより、周期性の乱れによるカラーシフト低減効果と光散乱効果は低下するが、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上効果を高めることができる。

[0044] ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とするか、あるいは、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とするかは、本発明の光学用基材を適用した発光デバイスの発光特性と用途等により種々選択し、最適な構造とすることができる。例えば、比較的カラーシフトが問題となりにくし、一般照明用途の場合は、回折による光取り出し効率向上効果をより高めるために、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とする構造を採用すればよい。逆に、色特性や角度依存性が問題となりやすいディスプレイ用途の場合は、ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とする構造を採用すればよい。

[0045] また、例えば、表面プラズモン共鳴によるカラーシフトが比較的生じにくい発光デバイスの場合には、表面プラズモン共鳴による発光効率向上効果を高めるために、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とする構造を採用すればよい。また、表面プラズモン共鳴によるカラーシフトが大きい発光デバイス、あるいは、製造条件の場合には、カラーシフト低減効果を高めるため、ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とする構造を採用すればよい。

[0046] 以下、本実施の形態に係る光学用基材について説明する。本発明における光学用基材とは、少なくとも陽極と陰極と発光層とで構成され、発光層が一層以上の有機層を有する有機EL発光デバイスに適用される光学用基材である。なお、本発明において、ピッチとは、間隔を意味しており、必ずしも一定間隔を意味するものではなく、一定間隔、不定間隔のいずれも含むものとする。

[0047] まず、図 1 を参照して、本実施の形態にかかる光学用基材の構成について説明する。図 1 は、本実施の形態に係る光学用基材 1 の一例を示す模式的な斜視図である。図 1 に示すように、光学用基材 1 は、概して平板形状を有しており、基材 11 と、この基材 11 の一主面上に設けられた微細構造層 12 と、を備えている。微細構造層 12 は、基材 11 の主面から上方に突出する複数の凸部 13（凸部列 13₁ ~ 13_N）を含む。凸部 13 は、基材 11 の主面から面外方向に延在しており、それぞれ特定の間隔を持って配置されている。

[0048] また、微細構造層 12 は、基材 11 の主面上に別途形成しても、あるいは基材 11 を直接加工して形成してもよい。また、光学用基材 1 は、平板形状の他、フィルム形状であってもよい。

[0049] なお、図 1 においては、微細構造層 12 の微細構造が複数の凸部 13 で構成される例について示しているが、これに限られず、微細構造層の微細構造は複数の凹部で構成されていてもよい（図 2 参照）。図 2 は、本実施の形態に係る光学用基材 1 の他の例を示す斜視模式図である。図 2 に示すように、光学用基材 11a は、概して平板形状を有しており、基材 11a と、この基材 11a の一主面上に設けられた微細構造層 12a と、を備えている。微細構造層 12a は、微細構造層 12a の表面 S から基材 11a 主面側に向けて陥没した複数の凹部 14（凹部列 14₁ ~ 14_N）を含む。凹部 14 は、基材 11 の主面から面外方向に延在しており、それぞれ特定の間隔を持って配置されている。

[0050] また、微細構造層 12a は、基材 11a の主面上に別途形成しても、あるいは基材 11a を直接加工して形成してもよい。また、光学用基材 1 は、平板形状の他、フィルム形状であってもよい。

[0051] 以下、光学用基材 1、1a における微細構造層 12、12a の微細構造を構成する凸部 13 または凹部 14 を「ドット」と称する。

[0052] （微細構造層 ドット配列）

図 3 は、光学用基材 1 の平面模式図である。図 3 に示すように、ドット（

凸部 13 または凹部 14) は、基材 11 主面内の D1 方向において、複数のドットが不定間隔 P_y (ピッチ P_{y1} , P_{y2} , P_{y3} , ...) で配列された複数のドット列 (凸部列 13_1 ~ 13_N または凹部列 14_1 ~ 14_N) を構成する。また、各ドット列は、基材 11 主面内で第 1 方向 (D1 方向) に直交する第 2 方向 (D2 方向) において、不定間隔 P_x (ピッチ P_{x1} , P_{x2} , P_{x3} , ...) で配置されている。

[0053] また、本実施の形態の光学用基材において、ナノオーダーの不定間隔が変動幅 δ であることが好ましい。具体的には図 3 において、ピッチ P_{y1} , P_{y2} , P_{y3} は、 $P_{yav} \pm \delta$ の範囲である。

[0054] 平均ピッチの概念図を図 4 に示す。ここで、変動幅 δ は、D1 方向におけるドット 13_1 間のピッチ P_y の標準偏差 σ の 3 倍の値であり、D1 方向のピッチ P_y を 100 点以上計測して算出される値で定義される。また、変動幅 δ は、平均ピッチ P_{yav} より小さいことが好ましい。変動幅 δ は、特に、平均ピッチ P_{yav} の 1% 以上 50% 以下の範囲であると、複数のドット 13_1 間のピッチ P_y の大きさが適度な範囲となるので、光散乱性による発光効率向上効果とカラーシフト低減効果を実現できる。変動幅 δ は、さらに、平均ピッチ P_{yav} の 5% 以上 30% 以下の範囲であると、光散乱性による光取り出し効率向上効果とカラーシフト低減効果に加え、さらに、回折による光取り出し効率向上効果と、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上効果が共に得られるのでより好ましい。

[0055] 以上は、D1 方向のピッチ P_y についての記述であるが、D2 方向のピッチ P_x については、 P_y を P_x と読み替えて定義することができる。

[0056] 図 5 は、第 1 の実施の形態に係る光学用基材 1 の平面模式図である。図 5 に示すように、凹凸構造 12 において、基材 11 本体の主面内に属する D1 方向において複数のドット 13 が配列されたドット列 32_1 ~ 32_N を複数並設している。各ドット列 32_1 ~ 32_N に属する複数のドット 31 は、互いに異なるピッチ (P_{y1} , P_{y2} , P_{y3} , ...) で不定間隔に配列されている。また、各ドット列 32_1 ~ 32_N は、基材 11 本体

の主面内でD1方向に直交するD2方向において、一定間隔のピッチ P_x で並設されている。

[0057] すなわち、第1の実施の形態に係る光学用基材1においては、各ドット列 $32-1 \sim 32-N$ に属する複数のドット31がD1方向に不定間隔 P_{y1} 、 P_{y2} 、 P_{y3} で配置されると共に、各ドット列 $32-1 \sim 32-N$ がD2方向に一定間隔 P_x で設けられている。この構成により、基材11本体をD2方向から見た場合に、主面（図1における主面S）内に配設される複数のドット間の繰り返しパターンの周期性が低減される。例えば、基材11本体の主面S内の斜め方向のピッチ P_a 、 P_b が異なる値となる。これにより、回折効果と表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上効果を高めることができる。また、凹凸構造12による光散乱性が向上するので、カラーシフト低減効果と散乱による導波モードの解消による光取り出し効率向上効果も期待できる。

[0058] 図6は、D2方向に前記複数のドットが一定間隔のピッチ P_x で配列された複数のドット列を有し、D1方向において、変動幅 δ を有するピッチ P_y で配列されている第1の実施の形態の光学用基材1をD2方向から見た時の複数のドットの配置を示す模式図である。図6中、複数のドット31は、ドット列 $32-1$ に属するもの（図中実線で示す）と、ドット列 $32-2$ に属する者（図中一点破線で示す）と、ドット列 $32-3$ に属するもの（図中二点破線で示す）に分けられる。同一のドット列に属する複数のドット31が、D1方向に不定間隔 P_{y1} 、 P_{y2} 、 P_{y3} で配置されている。これにより、図6に示すように複数のドット31が互いにずれて不規則に配置され、配置が乱れることにより光散乱効果を発現させることができる。

[0059] 図7は、第1の実施の形態に係る光学用基材1における凹凸構造12を構成する複数のドット31の配置（ドットパターン）の一例を示す模式図である。図7においては、各ドット31のピッチ P_y およびピッチ P_x が略等しく、変動幅 δ がピッチ P_{ya} の20%である例を示している。図7に示すように、各ドット列 $32-a$ 、 $32-b$ がピッチ P_x で一定間隔に並んでい

ても、D 1 方向における ドット 3 1 間のピッチ P_y に周期性はないことがわかる。このように、複数の ドット 3 1 の存在により、光学用基材 1 上に設けた有機 EL からの光取り出し効率向上を高めることができ、さらに、複数の ドット 3 1 の配置が乱れることにより光散乱効果とカラーシフト低減効果を発現させることができる。

[0060] ここで、互いに異なるピッチ P_x で不定間隔に配置された D 2 方向における ドット列の配置例について説明する。図 8 は、D 2 方向における ドット列の配置例を示す模式図である。図 8 に示すように、D 2 方向における ドット列 (図 8 中 DL) は、8 列ずつ特定の間隔 (ピッチ P_x) で配置されており、かつ、8 列の ドット列が繰り返し配置されている。この複数 (z) の ドット列で構成された単位を、長周期単位 $L_x z$ (ただし、 z は正の整数) と称する。なお、互いに異なるピッチ P_y で不定間隔に配置された D 1 方向における ドットについても、長周期単位 $L_y z$ を使用し、以下の説明と同様に配置できる。

[0061] 不定間隔のピッチ P_y は、各 ドットの中心間の距離に等しく、不定間隔のピッチ P_x は、複数の ドットがピッチ P_y で配列された複数の ドット列間距離に等しい。また、ピッチ P_y およびピッチ P_x は各 ドットの直径より大きい。

[0062] ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の ドット間のピッチ $P_{y n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m, a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (1) の関係を満たすとともに、第 1 方向において、ピッチ $P_{y 1} \sim P_{y n}$ で構成される ドット群が、長周期単位 $L_y z$ を繰り返し配列した構成であり、かつ、ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の ドット間の前記ピッチ $P_{x n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m, a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (2) の関係を満たすとともに、第 2 方向において、ピッチ $P_{x 1} \sim P_{x n}$ で構成される ドット列群が、長周期単位 $L_x z$ を繰り返し配列した構成であることが好

ましい。

$$P_{y1} < P_{y2} < P_{y3} < \dots < P_{ya} > \dots > P_{yn} \quad (1)$$

$$P_{x1} < P_{x2} < P_{x3} < \dots < P_{xa} > \dots > P_{xn} \quad (2)$$

[0063] 図8は、長周期単位 L_{xz} が8列のドット列で構成される場合、すなわち、 $m=8$ の場合を示している。この場合、 $n=7$ 、 $a=3$ となるため、長周期し1において、ドット列間のピッチ P_{xn} には、次の式の関係が成り立っている。

$$P_{x1} < P_{x2} < P_{x3} > P_{x4} > P_{x5} > P_{x6} > P_{x7}$$

[0064] また、長周期単位 L_{xz} におけるピッチ P_x は、ピッチ P_x の最大値 ($P_{x(max)}$) と、最小値 ($P_{x(min)}$) との差で表される最大位相ずれ δ が、 $(P_{x(min)}) \times 0.01 < \delta < (P_{x(min)}) \times 0.66$ 、好ましくは、 $(P_{x(min)}) \times 0.02 < \delta < (P_{x(min)}) \times 0.5$ 、より好ましくは、 $(P_{x(min)}) \times 0.1 < \delta < (P_{x(min)}) \times 0.4$ 、を満たすよう設定されている。

[0065] 例えば、図8に示す長周期単位 L_1 においては、各ドット列間のピッチ P_{xn} は次のように表される。

$$P_{x1} = P_{x(min)}$$

$$P_{x2} = P_{x(min)} + 8a$$

$$P_{x3} = P_{x(min)} + \delta b = P_{x(max)}$$

$$P_{x4} = P_{x(min)} + 8c$$

$$P_{x5} = P_{x(min)} + 8d$$

$$P_{x6} = P_{x(min)} + 8e$$

$$P_{x7} = P_{x(min)} + \delta f$$

ただし、 δa から δf の値は、 $P_{x(min)} \times 0.01 < (\delta a \sim \delta f) < P_{x(min)} \times 0.5$ を満たす。隣接する長周期単位 L_2 についても同様である。

[0066] また、長周期単位 L_{xz} 、あるいは長周期単位 L_{yz} における z の最大値は、 $4 \leq z \leq 1000$ 、好ましくは、 $4 \leq z \leq 100$ 、より好ましくは、4

$\leq z \leq 20$ 、を満たすよう設定されている。

[0067] なお、D1方向およびD2方向における長周期単位 L_{xz} および L_{yz} は互いに同一である必要はない。

[0068] 本実施の形態の光学用基材1において、D1方向においては、上記した長周期単位 L_{yz} を有するドット群が少なくとも1個以上配列され、D2方向においては、上記した長周期単位 L_{xz} を有するドット群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

[0069] ピッチ P_y の不定期間隔に配置された配置は、上記説明した互いに異なるピッチ P_x で不定期間隔に配置された第2方向におけるドット列の配置例において、ドット列をドットと読み替えることで定義される。すなわち、ピッチ P_y が不定期間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ドット間のピッチ P_{yn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である)は、上記式(1)の関係を満たすと共に、第1方向において、ピッチ $P_{y1} \sim P_{yn}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列され、ピッチ P_x が不定期間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下のドット間のピッチ P_{xn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である)は、上記式(2)の関係を満たすとともに、第2方向において、ピッチ $P_{x1} \sim P_{xn}$ で構成されるドット列群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

[0070] 第1の実施の形態に係る光学用基材1においては、微細構造層12(12a)の微細構造を構成するドットは、D1方向、D2方向ともに上記説明したような不定期間隔のピッチ P_x 、 P_y で配置することもできるし(図9参照)、D1方向、D2方向のいずれか一方のみを上記説明したような不定期間隔のピッチで配置し、他方を一定間隔のピッチで配置することもできる(図10参照)。なお、図10においては、D1方向におけるドットが不定期間隔で配置され、D2方向におけるドット列が一定間隔に配置されている。

[0071] さらに、隣接する第1ドット列及び第2ドット列間、あるいは第1ドット

列及び第3ドット列がそろった配置とすることもできる(図11、図12、図13、図14参照)。

[0072] ピッチ P_y およびピッチ P_x のいずれか一方が一定間隔であり、他方が不定間隔である場合には、ピッチ P_y およびピッチ P_x がともに不定間隔である場合に比べて、周期性の乱れが減少し、散乱効果が減少するため、自然光に近い発光特性は低下するが、回折効果による光取り出し効率が向上する。表面プラズモン共鳴においても、ピッチ P_y およびピッチ P_x がともに不定間隔である場合に比べて、ナノオーダーの凹凸間隔は、より均一性が高まる。これにより、周期性の乱れによるカラーシフト低減効果と光散乱効果は低下するが、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上効果を高めることができる。

[0073] 一方、ピッチ P_y とピッチ P_x がともに不定間隔である場合には、周期性の乱れによる光散乱効果とカラーシフト低減効果を高めることができる。すなわち、導波モードを効果的に乱し、光取り出し効率を改善するとともに、より自然光に近い発光特性を得ることが可能となり、ギラツキの抑制に効果的である。表面プラズモン共鳴においても、光取り出し効率向上の効果は低減するが、周期性の乱れによる光散乱効果をより高めることができる。

[0074] ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とするか、あるいは、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とするかは、本発明の光学用基材を適用した発光デバイスの発光特性と用途等により種々選択し、最適な構造とすることができる。例えば、比較的カラーシフトが問題となりにくし、一般照明用途の場合は、回折による光取り出し効率向上効果をより高めるために、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とする構造を採用すればよい。逆に、色特性や角度依存性が問題となりやすいディスプレイ用途の場合は、ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とする構造を採用すればよい。

[0075] また、例えば、表面プラズモン共鳴によるカラーシフトが比較的生じにくい発光デバイスの場合には、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上

効果を高めるために、ピッチ P_y かピッチ P_x のいずれか一方を不定間隔とする構造を採用すればよい。また、表面プラズモン共鳴によるカラーシフトが大きい発光デバイス、あるいは、製造条件の場合には、カラーシフト低減効果を高めるため、ピッチ P_y とピッチ P_x の両方を不定間隔とする構造を採用すればよい。

[0076] また、 D_1 方向におけるドット間距離、あるいは D_2 方向におけるドット列間距離のいずれか一方が一定間隔で配置される場合には、一定間隔のピッチに対する不定間隔のピッチの比が、特定の範囲内にあることが好ましい。

[0077] ここで、 D_1 方向におけるドットが一定間隔 P_{yc} で配置され、 D_2 方向におけるドット列が不定間隔 P_x で配置される例について説明する。この場合には、一定間隔のピッチ P_{yc} に対する、不定間隔のピッチ P_x の比は、85%~100%の範囲内にあることが好ましい。一定間隔のピッチ P_{yc} に対する、不定間隔のピッチ P_x の比が85%以上であれば、隣接するドット間の重なりが小さくなるため好ましい。また、一定間隔のピッチ P_{yc} に対する、不定間隔のピッチ P_x の比が100%以下であれば、ドットを構成する凸部13の充填率が向上するため好ましい。なお、一定間隔のピッチ P_{yc} に対する、不定間隔のピッチ P_x の比は、90%~95%の範囲内にあることが、より好ましい。

[0078] また、1つの長周期単位 L_{xz} あるいは L_{yz} は、5個以上のドットから構成されると（属するピッチ P_x または P_y が4以上であると）、有機EL発光デバイスで発生した光の屈折率の長周期の変動が、ナノオーダーから遠ざかり、光散乱が生じやすくなるため好ましい。一方、十分な光取り出し効率向上効果を得るためには、長周期単位 L_{xz} 、あるいは L_{yz} は、1001個以下のドットから構成される（属するピッチ P_x または P_y が1000以下である）ことが好ましい。

[0079] 第1の実施の形態に係る光学用基材1（1a）は、以上のような微細構造層12（12a）の微細構造の関係を満足することにより、光散乱効果が十分となり、かつ、ドット（凸部13または凹部14）の間隔はナノオーダー

であるため、表面プラズモン共鳴による光取り出し効率向上効果が発現する。その結果、ナノオーダーの凹凸で表面プラズモン共鳴と回折効果による光取り出し効率が向上すると同時に、ナノオーダーの周期性が乱れることとなり、有機EL発光デバイスからの発光に対し、光散乱性を強く発現することができる。さらに、ナノオーダーの凹凸間隔は長周期変動により穏やかに変動するため、表面プラズモン共鳴と回折効果による光取り出し効率向上におけるカラーシフトが低減され、より自然光に近い発光特性を得ることが可能となり、ギラツキを抑制することができる。

[0080] また、図15に示すように、各ドット（凸部13または凹部14）の間隔は、ピッチの大小により領域が分けられる（図中13a～13c）。そのため、各領域で励起される表面プラズモンの励起波長が異なり、かつ、その境界は滑らかであるので、発光効率が向上する波長を広い範囲で調整が可能である。各ドット（凸部13または凹部15）の間隔と長周期 L_x あるいは L_y の変動は、任意に調整可能であるので、発光デバイスの用途により、適宜、発光波長を調整できる。例えば、照明用途であれば、発光波長を選択することにより、暖色系、自然色系、クール色等を選択できる。

[0081] 続いて、本実施の形態に係る光学用基材1の微細構造層12（12a）の微細構造を構成するドット形状（凹凸構造）について説明する。凸部13および凹部14の形状は、本発明の効果が得られるもの範囲であれば特に限定されず、用途に応じて適時変更可能である。凸部13および凹部14の形状としては、例えば、ビラー形状、ホール形状、円錐形状、角錐形状および楕円錐形状、ラインアンドスペース構造等を用いることができる。また、これらの構造の側面（内面）にさらに微細な構造を具備していてもよい。

[0082] 光学用基材1における微細構造層12（12a）の微細構造が、ラインアンドスペース構造で構成される場合には、ラインの長軸方向を第1方向と定義する。第1方向に配列した複数のライン列において、隣接するラインの中央線間の最短距離がピッチ P_x に相当する。換言すれば、上記ドット形状の説明において、第1方向にピッチ P_y で配列するドット列のピッチ P_y をゼ

口に漸近し、隣接するドットをつなげた状態がラインアンドスペース構造におけるラインに相当する。

[0083] なお、本発明における複数の凸部から構成されるライン形状は、ラインの長さ L_x と凸部幅 W_x との比率（ライン長/凸部幅）が1より大きいものと定義する。すなわち、長半径/短半径が1より大きい楕円形状から、光学用基材1表面に渡り途切れることなく連なった柵状耐までを含む。

[0084] ラインを構成する形状として、光学用基材1表面全面に渡り途切れることなく連なった形状とするか、あるいは、ライン長 L_x /凸部幅 W_x が1より大きい範囲で途切れた形状にするかは、使用する用途により適宜選択することができる。途切れることなく連なった形状の場合、回折により取り出す光の方向の限定度合（異方性）が強く、回折効果も大きいため、カラーシフトに対する要求が低い用途に適している。一方、ライン長 L_x /凸部幅 W_x が1より大きい範囲で途切れた形状の場合、ライン長がピッチ P_x に近づくほど、光散乱の効果をより発現できるため、カラーシフトを抑制することができる。そのため、途切れた構造の場合、カラーシフト抑制への要求が高い用途に適している。

[0085] なお、ライン長 L_x /凸部幅 W_x は、用途により適宜選択できるが、1.5以上であると好ましく、2.5以上であるとより好ましく、最も好ましくは5.0以上場合である。

[0086] ピッチ P_x は、不定間隔であると、ライン構造による回折光により導波モードの光を取り出すとともに、散乱効果を奏することが可能となり、ギラツキを抑制できるため好ましい。

[0087] さらに、ピッチ P_x は、ドット形状で説明したピッチ P_x と同様に、長周期 L_{xz} を併せ持つことで、この効果を一層発揮できる。

[0088] 本実施の形態に係る光学用基材1（1a）の微細構造層12（12a）の微細構造を構成するドット形状（凹凸構造）においては、ドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減することが好ましい。なお、本発明において、ドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減するとは、ピッチ P_y またはピッチ P_x の

増加にともなう、ドットの各々の直径が増加する、あるいは、減少するいずれかを指す。

[0089] 以下、ピッチに対応して増減するドットの直径の例について、詳細に説明する。

本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) において、ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下のピッチを構成するドット径 $D_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (3) の関係を満たすとともに、第 1 方向において、ドット径 $D_{y\ 1} \sim D_{y\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも 1 個以上配列され、ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下のピッチを構成するドット径 $D_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (4) の関係を満たすとともに、第 2 方向において、ドット径 $D_{x\ 1} \sim D_{x\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも 1 個以上配列されることが好ましい。

$$D_{y\ 1} < D_{y\ 2} < D_{y\ 3} < \dots < D_{y\ a} > \dots > D_{y\ n} \quad (3)$$

$$D_{x\ 1} < D_{x\ 2} < D_{x\ 3} < \dots < D_{x\ a} > \dots > D_{x\ n} \quad (4)$$

[0090] さらに、本実施の形態に係る光学用基材においては、ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下のピッチを構成するドット径 $D_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (3) の関係を満たすとともに、第 1 方向において、ドット径 $D_{y\ 1} \sim D_{y\ n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L_{y\ z}$ で繰り返し配列され、かつピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下のピッチを構成するドット径 $D_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (4) の関係を満たすとともに、第 2 方向において、ドット径 $D_{x\ 1} \sim D_{x\ n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L_{x\ z}$ で繰り返し配列されることが好ましい。

[0091] 図 16 は、長周期単位 $L \times z$ が 8 列の ドット列で構成される場合、すなわち、 $m = 8$ の場合を示している。この場合、 $n = 7$ 、 $a = 3$ となるため、長周期 1 において、ドット列を構成する各 ドットの径 $D \times n$ には、上記式 (4) の関係が成り立っている。

[0092] 図 16 においては、隣接する ドット間隔が広くなると、ドット径が小さくなり、ドット間隔が狭くなるとドット径が大きくなっている。増減するドット径の増減範囲は、大きすぎると隣接する ドットと接するようになり好ましくなく、小さすぎると、光取り出し効率が低下するため好ましくない。同じ長周期単位 $L \times z$ 内における、ドットの平均径に対し、 $\pm 20\%$ 以内であると、光取り出し効率が増加し好ましい。

[0093] 上記説明は、ドットを構成するピッチが減少すると、ドット径が増加する例についてであるが、同様に、ドットを構成するピッチが減少すると、それに対応してドット径が減少してもよい。いずれの場合でもドット径の増減の長周期は、ドットを構成するピッチの増減の長周期と一致することが好ましい。

[0094] 上記構成により、発光光に対する ドットによる周期性の乱れが大きくなり、有機 EL 発光デバイスにおける光取り出し効率が増加することとなる。

[0095] また、本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) の微細構造層 12 (12a) の微細構造を構成する ドット形状 (凹凸構造) においては、各 ドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対して増減することが好ましい。

[0096] 以下、ピッチに対応して増減する ドット高さの例について、詳細に説明する。

本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) において、ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下のピッチを構成する ドット高さ H_{y_n} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (5) の関係を満たすとともに、第 1 方向において、ドット高さ $H_{y_1} \sim H_{y_n}$ で構成される ドット

ト群が少なくとも1個以上配列され、ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ $H_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (6) の関係を満たすとともに、第2方向において、ドット径 $H_{x\ 1} \sim H_{x\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列されることが好ましい。

$$H_{y\ 1} < H_{y\ 2} < H_{y\ 3} < \dots < H_{y\ a} > \dots > H_{y\ n} \quad (5)$$

$$H_{x\ 1} < H_{x\ 2} < H_{x\ 3} < \dots < H_{x\ a} > \dots > H_{x\ n} \quad (6)$$

[0097] さらに、本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) においては、ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下のピッチを構成するドット高さ $H_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (5) の関係を満たすとともに、第1方向において、ドット高さ $H_{y\ 1} \sim H_{y\ n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L_{y\ z}$ で繰り返し配列され、ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下のピッチを構成するドット高さ $H_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、上記式 (6) の関係を満たすとともに、かつ、第2方向において、ドット高さ $H_{x\ 1} \sim H_{x\ n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L_{x\ z}$ で繰り返し配列されることが好ましい。

[0098] 図17は、長周期単位 $L_{x\ z}$ が8列のドット列で構成される場合、すなわち、 $m=8$ の場合を示している。この場合、 $n=7$ 、 $a=3$ となるため、長周期 $L_{x\ z}$ において、ドット列を構成する各ドットの高さ $H_{x\ n}$ には、上記式 (6) の関係が成り立っている。

[0099] 図17においては、隣接するドット間隔が広くなると、ドット高さが小さくなり、ドット間隔が狭くなるとドット高さが大きくなっている。増減するドット高さの増減範囲は、大きすぎるとその部分における光取り出し効率のムラが大きくなり好ましくなく、小さすぎると、ドット高さの増減による光取り出し効率の向上効果が低下するため好ましくない。同じ長周期単位 $L_{x\ z}$

z 内における、ドットの平均高さに対し、 $\pm 20\%$ 以内であると、光取り出し効率がムラなく増加し好ましい。

[01 00] 上記構成により、発光光に対するドットによる周期性の乱れが大きくなり、有機 EL 発光デバイスにおける光取り出し効率が増加することとなる。

[01 01] また、本実施の形態に係る光学用基材 1 (1 a) において、基材 1 1 (1 1 a) の主面から面外方向に延在する複数の凸部 1 3 または凹部 1 4 で構成される複数のドットを含む微細構造層 1 2 (1 2 a) を備え、微細構造層 1 2 (1 2 a) は、基材 1 1 (1 1 a) の主面内の第 1 方向において複数のドットが一定間隔 P_y で配列されたドット列を構成し、且つ、これらのドット列を第 1 方向に直交する第 2 方向に一定間隔のピッチ P_x で並設し、隣接する第 1 ドット列及び第 2 ドット列間の第 1 方向におけるシフト量 α_1 と、第 2 ドット列及び第 2 ドット列に隣接する第 3 ドット列間の第 1 方向におけるシフト量 α_2 と、が互いに異なることが好ましい。

[01 02] この構成によれば、まず、ピッチ P_y およびピッチ P_x がともに一定間隔で、且つ、周期構造を有する一方、各ドット列間の第 1 方向におけるシフト量 α_1 、 α_2 が互いに異なるので、微細構造層 1 2 (1 2 a) を構成する複数のドットの配置の周期性が乱れ、光散乱効果を生じさせることができる。

[01 03] また、この構成によれば、微細構造層において、ナノオーダーの一定間隔ピッチ P_x で並設された複数のドット列が基材の表面に設けられるので、回折効果と、表面プラズモン共鳴により光取り出し効率が向上する。

[01 04] 図 18 は、本発明の第 2 の実施の形態に係る光学用基材の平面模式図である。第 2 の実施の形態に係る光学用基材 60 においては、複数のドット 6 1 は、基材本体の主面内の D 1 方向においてピッチ P_y で一定間隔のピッチ P_y に配列され、ドット列 6 2 _ 1 ~ 6 2 _ N を構成している。各ドット列 6 2 _ 1 ~ 6 2 _ N は、基材本体の主面内で D 1 方向に直交する D 2 方向に一定間隔のピッチ P_x で並設されている。そして、互いに隣接するドット列間に D 1 方向においてシフト量 α (位置差) が生じるように配列されている。

[01 05] すなわち、第 2 の実施の形態に係る光学用基材 60 においては、凹凸構造

は、D2方向において隣接する第1ドット列62₁及び第2ドット列62₂との間のD1方向におけるシフト量 α_1 と、第2ドット列62₂及びこの第2ドット列62₂に隣接する第3ドット列62₃との間のシフト量 α_2 とが、互いに異なるように設けられる。

[01 06] この構成により、基材本体の主面内における斜め方向の複数のドット61間のピッチP₁〜ピッチP₃が不規則となり、繰り返しパターンの周期性が低減されるので、凹凸構造による光散乱性がより強まる。

[01 07] また、第2の実施の形態に係る光学用基材60においては、シフト量 α_1 とシフト量 α_2 との差分が一定でないことが好ましい。この構成により、凹凸構造を構成する複数のドット62の配置の周期性、すなわち、繰り返しパターンの周期性がより低減され、さらに光散乱性を強めることができるので、有機EL発光デバイスにおける光取り出し効率を向上させるとともに、カラーシフトを低減し、ギラツキを抑制することができる。

[01 08] また、第2の実施の形態に係る光学用基材60においては、ピッチP_y及びピッチP_xが共に一定間隔となるように設けている。このため、第1の実施の形態に係る光学用基材1においてピッチP_xのみが一定間隔であり、D1方向のピッチP_yが変動幅 δ を有して不定間隔である場合に比べて、ドット60の間隔が小さくなる。これにより、周期性の乱れによる光散乱効果は低下するが、回折効果と表面プラズモン共鳴により光取り出し効率を向上させることができる。

[01 09] また、ピッチP_yが不定間隔である第1の実施の形態に係る光学用基材1と比較して、回折効果または表面プラズモン共鳴による光取り出し効果は低下するが、複数のドット61の配置の周期性の乱れによる光散乱効果をより高めることができ、導波モードを解消することによる光取り出し効率の増加とカラーシフト、ギラツキを抑制することが可能である。

[01 10] この場合、シフト量 α_1 とシフト量 α_2 の差分が一定でないことが好ましい。この構成により、光散乱効果が更に向上するので、導波モードを解消し光取り出し効率をさらに高め、カラーシフト、ギラツキを抑制することが可

能となる。

[01 11] また、上記した本発明の第 1 及び第 2 の実施の形態に係る光学用基材において、ピッチ P_x およびピッチ P_y は、それぞれ 100 nm 以上 1000 nm 以下であることが好ましい。ピッチ P_x , P_y がこの範囲内にあると、ナノオーダーの凹凸が光学用基材 1 (60) 表面に設けられることにより、光学用基材 1 (60) 上に有機 EL 発光デバイスを設定した場合に、回折子効果と表面プラズモン共鳴により、発光層からの発光効率を向上させることができる。ピッチ P_x 、 P_y は、 100 nm 以上であることにより、有機 EL 発光デバイスの光取り出し効率が向上し、表面プラズモン共鳴による発光効率向上の効果が現れる。また、ピッチ P_x 、 P_y が 1000 nm 以下であることにより、回折効果と表面プラズモン共鳴による発光効率の効果が現れる。

[01 12] また、上述したように、基材の基材主面から面外方向に延在する複数の凸部から構成されるラインを含む微細構造層の場合には、すなわち、微細構造層 12 (12a) の微細構造が、ラインアンドスペース構造で構成される場合には、基材主面内の第 1 方向に沿ってライン構造を形成し、基材主面内の第 1 方向に直交する第 2 方向において、複数のラインがピッチ P_x で配列された複数のライン列を有しており、ピッチ P_x はナノオーダーの不定間隔であることが好ましい。

[01 13] この場合において、不定間隔のピッチ P_x は、ライン構造の凸部幅より大きく、少なくとも、隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ピッチ $P_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (7) の関係を満たし、第 2 方向において、ピッチ $P_{x\ 1} \sim P_{x\ n}$ で構成される長周期 L_z が繰り返し配列されることが好ましい。

$$P_{x\ 1} < P_{x\ 2} < P_{x\ 3} < \dots < P_{x\ a} > \dots > P_{x\ n} \quad (7)$$

[01 14] 続いて、本実施の形態に係る光学用基材により、光取り出し効率が向上する原理について説明する。ここでは、微細構造層 12 (12a) の微細構造が複数のドットである場合で説明する。

[01 15] 先述のとおり、光学用基材 60 に、ナノオーダーの凹凸（ドット）から構成される微細構造層を設けることにより、1) 表面プラズモン共鳴による光取り出し効率の改善、2) 回折効果による光取り出し効率の改善、3) 光散乱により導波モードを解消することによる光取り出し効率の改善、4) 光散乱によるカラーシフト及びギラツキを抑制する効果、の4つの効果が得られる。

[01 16] 複数のドットから構成される長周期単位 $L \times z$ を繰り返し並べることにより、長周期単位 $L \times z$ ごとに屈折率が変化し、長周期単位 $L \times z$ を構成する複数のドットが1単位となって繰り返された場合と同じ効果を生じることとなる。換言すると、波長と同程度の複数のドットの場合、平均的な屈折率分布で光の挙動を説明できるため（有効媒質近似）、空間の平均屈折率分布を計算すると、あたかも、長周期単位 $L \times z$ の複数のドットが1単位として繰り返されたように光に作用する。このように長周期単位 $L \times z$ で並べられた複数のドットは、光散乱効果を奏する。

[01 17] また、ナノオーダーの凹凸が光学用基材 60 表面に設けられることにより、凹凸の間隔に調和した表面プラズモン共鳴が起き、有機EL発光デバイスから発生した光エネルギーの発光効率を向上させることができる。あるいは、凹凸の間隔に調和した回折が生じ、導光モードにより閉じ込められた発光光を効果的に取り出すことができる。

[01 18] さらに、本実施の形態に係る光学用基材においては、ドットの各々の直径が、ピッチに応じて増減する。空間の平均屈折率分布は、構成単位の体積分率に依存し変化するため、長周期単位 $L \times z$ の複数のドットにおいて、各ドットの体積が変化するとそれだけ、平均屈折率分布の変化が大きくなり、同じ長周期単位 $L \times z$ でも、より光散乱効果が高まることとなる。この効果は、ドット間ピッチが狭い場合、ドットの直径を大きく、ドット間ピッチが広い場合、ドットの直径を小さくすることでより顕著となる。

[01 19] さらに、本実施の形態にかかる光学用基材においては、ドットの高さもドット間ピッチに応じて増減する。この場合も上記した理由と同様、ドット間

ピッチが狭い場合、ドット高さを大きくし、ドット間ピッチが広い場合、ドット高さを小さくすると、長周期単位 $L \times z$ 内の平均屈折率分布が大きくなり、光散乱効果を増加させることになる。

[0120] さらに、複数のドットから構成される長周期単位 $L \times z$ を繰り返し並べた配列において、上記したドットの各々の直径とドットの高さの両方を、ピッチに応じて増減させると、有効媒質近似により記述される屈折率分布の差がさらに大きくなるため好ましい。この場合、ドット間ピッチが狭い場合、ドットの直径とドットの高さを大きくし、ドット間ピッチが広い場合、ドットの直径とドットの高さを小さくすると、空間の平均屈折率分布において、構成単位の体積分率の差が大きくなり、より光散乱効果が高まり好ましい。

[0121] 以上のような光散乱効果により導光モードを解消し光取り出し効率を高めることが可能となる。これに加えて、凹凸のナノオーダーでの均一性が乱れることによって、カラーシフトを低減し、より自然光に近い発光特性を得ることが可能となるため、ギラツキを抑制できる。

[0122] (有機EL発光デバイスの構成)

図19は、本実施の形態に係る光学用基材1(1a)を適用した有機EL発光デバイス40の断面模式図である。図19に示すように、有機EL発光デバイス40は、光学用基材1(1a)を少なくとも1つ有し、発光層は、光学用基材1(1a)の微細構造層12(12a)側の主面に対向して配置される。有機EL発光デバイス40は、微細構造層12(12a)を有する光学用基材41(1、1a)上に順次積層された発光部42、透明導電膜層43(ITO層に代表されるTCO層)から構成される。光学用基材41(1、1a)を構成する材料に限定はなく、誘電体、半導体、金属等の材料を用いることができる。有機EL発光デバイス40において、発光部42と接している透明導電膜層43の他の主面に光拡散性基材を設けてもよい。この場合、光拡散性基材は、発光部42からの射出光および光学用基材41(1、1a)を反射した光を拡散し、光の回折に起因するカラーシフトをさらに低減することができる。

[01 23] ここで発光部 4 2 は、陰極（金属電極）、電子注入層、電子輸送層、発光層、ホール輸送層、ホール注入層、陽極（透明導電膜層）を順次積層することで作製され、少なくとも、陰極、発光層、陽極の 3 層とで構成され、発光層は 1 層以上の有機層とする。この場合、光学用基材 4 1（1、1 a）表面が金属面で存在する場合は、光学用基材 4 1（1、1 a）を陰極とし、発光部 4 2 の陰極形成を省略してもよい。電子注入層、電子輸送層、発光層、ホール輸送層、ホール注入層については、一つの層が二つ以上の機能を兼ねてもよいし、ホール輸送層や電子輸送層は省略しても良い。ホールと電子が出会う場所として発光層は必要である。最も単純な系としては、陽極導電層と陰極導電層に挟まれた発光層だけがあれば良い。

[01 24] 図 1 9 に示すように、光学用基材 4 1（1、1 a）を反射型とする場合には、光学用基材 4 1（1、1 a）を誘電体や半導体、または、これらと金属との組み合わせで形成することができる。

[01 25] 本発明の実施の形態に係る発光部 4 2 は、光学用基材 4 1（1、1 a）上に作成した凹凸構造が E L 発光した光の回折光を生じ、陰極の表面プラズモンと共鳴状態を作るようにする。有機 E L 発光デバイスから発光した光は、光取り出し面の方向に進むものと、取り出せない陰極の金属面に進むものがあるが、陰極表面の金属膜の凹凸により光は、表面プラズモンのエネルギーに一時的に変換され、後に、高強度の放射光として陰極表面から取り出し面側に向かって放射される。陰極表面から放射される放射光は指向性が高く、光の取り出し効率を向上することができる。この目的のために、陰極の材料は電子の輸率が高くロスが少ない材料（仕事関数の低い材料）が適するので、A g、A u 等を選択するか、一般的に選択される A l 等との共蒸着（A l / A g 等）を用いてもよいが、材料選択はかならずしもこれらに限定されない。

[01 26] 下面発光型有機 E L 発光デバイスの場合は、光学用基材 4 1（1、1 a）上に、最初に陽極（透明導電膜）を形成し、続いて、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極を順次積層して完成する。

この操作によって、光学用基材 4 1 (1、 1 a) の微細凹凸の形状は、陰極まで伝わり、陰極が表面プラズモン共鳴状態をつくるようになる。形状が伝わるためには各層の厚さは極力薄い必要があるが、通常有機 E L 発光デバイスのこれらの各層はおおよそ 2 0 ~ 1 0 0 n m 程度で形成するため問題ない。

[01 27] 図 2 0 は、本実施の形態に係る光学用基材 1 (1 a) を適用した他の形態の有機 E L 発光デバイス 8 0 の断面模式図である。図 2 0 に示すように、有機 E L 発光デバイス 8 0 は、微細構造層 1 2 (1 2 a) を有する光学用基材 8 1 (1、 1 a) 上に、透明誘電体層 8 2 を介して、透明導電膜層 8 3 を形成し、透明導電膜層 8 3 上に発光部 8 4 を積層している。

[01 28] ここで発光部 8 4 は、陽極 (透明導電膜層)、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極 (金属電極) を順次積層することで作成され、少なくとも、陽極、発光層、陰極の 3 層とで構成され、発光層は 1 層以上の有機層とする。透明導電膜層 8 3 を形成するので、発光部 8 4 の陽極形成を省略してもよい。ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層については、一つの層が二つ以上の機能をかねてもよいし、ホール輸送層や電子輸送層は省略してもよい。ホールと電子が出会う場所として発光層は必要である。もっとも単純な系としては、発光層と陰極だけがあればよい。

[01 29] 本発明で用いる陽極、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極の作製法は特に限定しないが、一般的な下面発光型有機 E L 発光デバイスを例にとり説明すると以下ようになる。すなわち、陽極 (透明導電膜層) および陰極は真空蒸着法またはスパッタリング法等によって行い、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子移動層、電子注入層は有機蒸着法または薄膜塗工法によって行う。

[01 30] 各層の積層は基材に近い層から順に行われるので、最初に陽極 (透明導電膜層) が形成される。下面発光型の有機 E L 発光デバイスの場合、陽極導電層は透明でなければならないので、材質は I T O (I n d i u m T i n

Oxide) や ZnO (Zinc Oxide)、ZTO (Zinc Tin Oxide) 等の透明導電材料 (TCO) が選択される。

[0131] 次にホール注入・移動層として、芳香族アミン化合物等を成膜する。a-NPD や CuPc 等の芳香族アミン化合物は、イオン化ポテンシャルとホール輸送特性が適切であり、電気化学的に可逆であるため、ホール輸送材料として最も多く使用される。次に発光層を積層する。発光層に単独で用いられる材料は蛍光性色素化合物である BBA や DTE 等が挙げられるが、ホールや電子輸送化合物に蛍光性色素化合物をドーピングしてもよい。蛍光発光性材料の置き換えで、りん光発光性材料を用いると、理論変換効率が約 25% から約 100% に向上するため好ましい。

[0132] 次に、電子輸送層を積層する。電子輸送層としては、オキサジオール系 (PBD 等)、トリアゾール系 (TAZ) 等が使用される。金属錯体系 (Alq3 等) の物質を用いると、電子輸送層と発光層を兼ねることができ便利である。

[0133] 最後に陰極導電層を積層する。陰極導電層の材料は一般に LiF や Li 系化合物等をごく少量付けた後、Al や Ag や Al/Ag 合金等を積層する方法が一般的である。

[0134] 発光デバイス 80 において、透明誘電体層 82 と透明導電膜層 83 との間に、図示しない光拡散層を設けてもよい。この場合には、カラーシフトをより抑制することができる。

[0135] また、発光デバイス 80 において、透明導電膜層 83 と接している発光部 84 の主面と反対側の主面上に、図示しない光反射層を設けてもよい。この場合には、光学用基材 81 (1、1a) へ到達する光強度を向上させることができる。

[0136] ここで本実施の形態に係る光学用基材の表面に設ける誘電体層について、さらに詳細に説明する。図 21 に示すように、本実施の形態に係る光学用基材 71 (1、1a) は、微細構造層 12 (12a) のドット面上に、ドット形状またはライン形状に対応する形状を有した透明導電膜層 72 を具備して

いてもよい。さらに、透明誘電体層 72 における、微細構造層 12 (12a) と反対側の主面 73 が平坦化されていることが好ましい。なお、ドット形状またはライン形状に対応する形状とは、透明誘電体層 72 の有するドット形状またはライン形状と、微細構造層 12 (12a) の有するドット形状または、ライン形状とが、転写形状の関係にあることを意味する。すなわち、微細構造層 12 (12a) の微細構造は、透明誘電体層 72 により充填されていることを意味する。

[0137] 透明誘電体層 72 における微細構造層 12 (12a) と反対側の主面 73 が平坦化されていることにより、有機 EL 発光デバイスとして使用した場合に、有機 EL 発光デバイスの電流短絡を抑制でき、信頼性の向上につながる。平坦化の程度は、使用される発光デバイスの特性に合わせて適宜選択することができる。例えば、短絡を抑制するという観点から、 $Ra \leq 10 \text{ nm}$ であることが好ましく、 $Ra \leq 5 \text{ nm}$ がより好ましく、 $Ra \leq 2 \text{ nm}$ がさらに好ましく、最も好ましくは $Ra \leq 1 \text{ nm}$ である。なお、 Ra は原子間力顕微鏡 (AFM) にて測定可能であり、 Ra を算出する際の AFM 測定の範囲は、 $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ として測定される。

[0138] 図 22 は、本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) を適用した他の形態の有機 EL 発光デバイス 50 の断面模式図である。図 22 に示すように、有機 EL 発光デバイス 50 は、発光部 54 上に透明導電膜層 53 を積層し、透明導電膜層 53 上に透明誘電体層 52 を介して光学用基材 51 (1、1a) を貼り付けて構成される。このとき、光学用基材 51 (1、1a) における透明誘電体層 52 側が、透明導電膜層 53 に接するように配置される。すなわち、光学用基材 51 (1、1a) における基材 11 の露出する面が、発光部 54 から最も離れて配置される。

[0139] 有機 EL 発光デバイス 50 において、発光部 54 の透明導電膜層 53 と接している主面と反対側の主面上に、図示しない光拡散層を設けてもよい。この場合には、カラーシフトをより抑制することができる。また、発光デバイス 50 において、発光部 54 の透明導電膜層 53 と接している主面と反対側

の主面上に、図示しない光反射層を設けてもよい。この場合には、光学用基材 5 1 (1、 1 a) へ到達する光強度を向上させることができる。

[0140] なお、図 2 2 に示した有機 E L 発光デバイス 5 0 に場合、光学用基材 5 1 (1、 1 a) における基材は、有機 E L 発光デバイス 5 0 上に配置したままでもよいし、透明導電膜層 5 3 上に光学用基材 5 1 (1、 1 a) を貼り付けた後に除去してもよい。さらに、透明導電膜層 5 3 上に光学用基材 5 1 (1、 1 a) を貼り付けた後に、基材および微細構造層 1 2 (1 2 a) を除去してもよい。

[0141] (光学用基材の材料構成)

本発明における光学用基材 1 (1 a) は、表面に周期性のドット構造を有する基材であれば特に限定されるものではなく、樹脂、誘電体、半導体、金属のいずれかの材料を用いることができる。

[0142] 有機 E L 発光デバイスからの発光光が、図 1 9 に図示したように、本発明の光学用基材 4 1 (1、 1 a) に反射して、発光デバイスから発光する場合、本発明の光学用基材 4 1 (1、 1 a) の表面は、少なくとも、金属等の反射性材料で構成されている必要がある。光学用基材 4 1 (1、 1 a) として、金属を用いた場合、光学用基材 4 1 (1、 1 a) 上に有機 E L 発光デバイスを設けた場合、表面プラズモン共鳴による光取り出し効果を得やすく好ましい。

[0143] この場合、光学用基材 4 1 (1、 1 a) は、例えば、誘電体からなるドット構造を有する光学用基材の表面上に金属膜を被覆して形成されることが好ましい。あるいは、誘電体等の表面にフラットな金属膜を形成し、その後、金属膜にパターンニングする等の手法により得られるが、製法にはとくに限定はない。光学用基材 4 1 (1、 1 a) が樹脂基材で構成されている場合には、ドット構造を有する樹脂基材の上に金属膜を被覆する方法で得られる。

[0144] 光学用基材 4 1 (1、 1 a) に適用される金属は、目的とする波長により適宜選択される。例えば、紫外光の発光デバイスに用いる場合には、電磁波の振動により金属の自由電子が追従できなくなる周波数 (プラズマ周波数)

の高いアルミニウムが好ましく、可視域青色～緑色、例えば380 nm～650 nm領域の発光デバイスに用いる場合は、可視の全波長域において高い反射率を示す銀、またはアルミニウムを用いることが好ましく、さらに誘電率の実部の絶対率の小さい銀を用いることが特に好ましい。可視域の赤色、例えば580 nm～780 nmにおいては、その波長帯における反射率の高い銀または金を用いることが好ましい。

[0145] 有機EL発光デバイスからの発光光が、図20、図22に図示したように、本発明の光学用基材1(1a)を透過する発光デバイスの構成である場合、本発明の光学用基材1(1a)は光透過性の材料で構成されていることが必要である。

[0146] また、基材11(11a)と微細構造層12(12a)が同じ材料で構成されていてもよく、異なる材料で構成されていてもよい。基材11(11a)と微細構造層(12a)が異なる材料で構成されていると、各々に要求される特性を種々選択することが可能となり好ましい。

[0147] (基材11(11a)の材質)

基材11(11a)としては、樹脂、誘電体、半導体、金属のいずれかの材料を用いることができる。例えば、石英、ガラス、金属、シリコン、セラミック等の無機基材や、樹脂基材等を用いることができる。樹脂基材としては、例えば、ポリビニルアルコール樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、ポリメタクリル酸メチル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、シクロオレフィン樹脂(COP)、架橋ポリエチレン樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニル共重合体樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリ塩化ビニリデン共重合体樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリフエニレンエーテル樹脂、変性ポリフエニレンエーテル樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエーテルサルフォン樹脂、ポリサルフォン樹脂、ポリエーテルケトン樹脂等の非晶性熱可塑性樹脂を用いることができる。また、樹脂基材としては、ポリエチレンテレフタレート(PET)樹脂、ポリエチレンナフタレート樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、芳香族

ポリエステル樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂等の結晶性熱可塑性樹脂を用いることができる。さらに、アクリル系、エポキシ系、ウレタン系等の紫外線（UV）硬化性樹脂や熱硬化性樹脂等を用いることができる。また、光学用基材 41（51）として、紫外線硬化性樹脂や熱硬化性樹脂と、ガラス等の無機基材、熱可塑性樹脂、トリアセテート樹脂等を組み合わせた複合基材を用いてもよい。

[0148] 基材 11（11a）として樹脂基材を用いると、フレキシブルかつ軽い光学用基材 1（1a）を得られる。また、ロールツーロール方式の製造方法に容易に適用できる等、工業生産上の利点が多い。

[0149] （微細構造層 12（12a）の材質）

有機 EL 発光デバイスからの発光光が、図 19 に図示したように本発明の光学用基材 1（1a）に反射して、発光デバイスから発光する場合、少なくとも微細構造層 12（12a）は金属等の反射性材料であることが好ましい。微細構造層 12（12a）として、金属を用いた場合、光学用基材 1（1a）上に有機 EL 発光デバイスを設けた場合、表面プラズモン共鳴による光取り出し効果を得やすく好ましい。また、誘電体等の金属以外の材料を使用した場合は、その表面を金属膜で被覆する。

[0150] この場合、微細構造層 12（12a）に適用される金属は、目的とする波長により適宜選択される。例えば、紫外光の発光デバイスに用いる場合には、電磁波の振動により金属の自由電子が追従できなくなる周波数（プラズマ周波数）の高いアルミニウムが好ましく、可視域青色～緑色、例えば 380 nm～650 nm 領域の発光デバイスに用いる場合は、可視の全波長域において高い反射率を示す銀、またはアルミニウムを用いることが好ましく、さらに誘電率の実部の絶対率の小さい銀を用いることが特に好ましい。可視域の赤色、例えば 580 nm～780 nm においては、その波長帯における反射率の高い銀または金を用いることが好ましい。

[0151] （光透過性材料である微細構造層 12（12a）の材質）

有機 EL 発光デバイスからの発光光が、図 20、図 22 に図示したように

本発明の光学用基材 1 (1 a) を透過する発光デバイスの構成である場合、本発明の光学用基材 1 (1 a) は、以下のような光透過性の材料で構成されていることが必要である。

[01 52] さらに、微細構造層 1 2 (1 2 a) を構成する材料の屈折率と、基材 1 1 (1 1 a) を構成する材料の屈折率との差は、0.15 以下であることが好ましい。屈折率差がこの範囲にあることにより、微細構造層 1 2 (1 2 a) 側から基材 1 1 (1 1 a) 側へと透過する発光光の、微細構造層 1 2 (1 2 a) と基材 1 1 (1 1 a) との界面での反射が抑制されるため、光取り出し効率が向上する。この効果をより一層発揮する観点から、屈折率差は 0.1 以下であるとより好ましい。最も好ましくは、微細構造層 1 2 (1 2 a) を構成する材料の屈折率と、基材 1 1 (1 1 a) を構成する材料の屈折率とが実質的に等しい、または同等な場合である。

[01 53] ここで、屈折率が実質的に等しいとは、界面における反射が、光取り出し効率に対して問題にならない程度の屈折率差を有する場合を含む。例えば、基材 1 1 (1 1 a) の屈折率が 1.45 である場合、光取り出し効率として問題にならない 0.1% 以下の界面反射率を実現するためには、界面における微細構造層 1 2 (1 2 a) を形成する材料の屈折率は、1.37 以上 1.54 以下 (屈折率差は、0.08 ~ 0.09 以下程度) である必要がある。このため、実質的に等しい屈折率としては、上述の範囲を含む。なお、上記屈折率が同等な範囲は、微細構造層 1 2 (1 2 a) を構成する材料の屈折率と、基材 1 1 (1 1 a) を構成する材料の屈折率が同じ場合 (屈折率差が 0) の場合を含む。

[01 54] 微細構造層 1 2 (1 2 a) が、基材 1 1 (1 1 a) を直接加工し微細構造層 1 2 (1 2 a) を形成している場合は、微細構造層 1 2 (1 2 a) と基材 1 1 (1 1 a) との界面において、これらの屈折率が実質的に等しくなる。一方、基材 1 1 (1 1 a) 上に別途微細構造層 1 2 (1 2 a) を形成する場合は、微細構造層 1 2 (1 2 a) を構成する材料の屈折率が、微細構造層 1 2 (1 2 a) と基材 1 1 (1 1 a) との界面において、これらの屈折率が実

質的に等しくなるような材料を選定することが好ましい。この場合、微細構造層 12 (12a) を構成する材料は、上記屈折率の範囲を満たせば特に限定されないが、例えば、種々の公知樹脂有機樹脂、有機無機複合樹脂、無機前駆体、無機縮合体、金属酸化物フィラー、金属酸化物微粒子等、またはこれらを組み合わせた組成物を使用することができる。

[01 55] 微細構造層 12 (12a) を構成する材料は、加熱処理後においても光学的に透明であると好ましい。ここで加熱処理温度は、150℃以上が好ましく、200℃以上がより好ましい。加熱時間は10分以上が好ましい。また、加熱雰囲気は、低酸素環境下（例えば、真空状態、窒素置換状態等）が好ましい。

[01 56] 微細構造層 12 (12a) を構成する材料に適用される無機物としては、例えば、ゾルゲル材料や無機フィラー（無機微粒子）を含むことができる。ゾルゲル材料や無機フィラー（無機微粒子）を含むことで、上記範囲において、屈折率を容易に調整可能であり、かつ、本実施の形態に係る光学用基材 1 を発光デバイスとして使用した場合の、微細構造層 12 (12a) の劣化を抑制できるため好ましい。微細構造層 12 (12a) を構成する材料は、上述したようにゾルゲル材料や無機フィラー（無機微粒子）を含むことができるが、ゾルゲル材料のみで構成されても、有機樹脂（光重合性樹脂や熱重合性樹脂、熱可塑性樹脂等）との有機無機ハイブリッド材料で構成されても、有機樹脂のみで構成されてもよい。特に、微細構造層 12 (12a) の成形性・成形速度の観点から、光重合性樹脂を含むことが好ましい。

[01 57] 微細構造層 12 (12a) に含まれる光重合性基としては、アクリロイル基、メタクリロイル基、アクリロキシ基、メタクリロキシ基、アクリル基、メタクリル基、ビニル基、エポキシ基、アリル基、オキセタニル基等が挙げられる。

[01 58] また、微細構造層 12 (12a) に含まれる金属元素としては、チタン (Ti)、ジルコニウム (Zr)、クロム (Cr)、亜鉛 (Zn)、スズ (Sn)、ホウ素 (B)、インジウム (In)、アルミニウム (Al)、シリコ

ン (S i) からなる群から選ばれた少なくとも 1 種であることが好ましい。
特に、チタン (T i) , ジルコニウム (Z r) , シリコン (S i) であることが好ましい。

[01 59] 微細構造層 1 2 (1 2 a) に含まれる樹脂としては、光重合性と熱重合性の両方、またはいずれか一方の樹脂が挙げられる。例えば、ハードコート材料として使用される感光性樹脂や、ナノインプリントリソグラフィ用途で用される光重合性樹脂および熱重合性樹脂等が挙げられる。

[01 60] 微細構造層 1 2 (1 2 a) を形成する材料は、ゾルゲル材料を含むことが好ましい。ゾルゲル材料を含むことで、微細構造層 1 2 (1 2 a) の耐熱性が向上するため好ましい。ゾルゲル材料としては、単一の金属種を持つ金属アルコキシドのみを用いても、異なる金属種を持つ金属アルコキシドを併用してもよいが、金属種 M 1 (ただし、M 1 は、T i , Z r , Z n , S n , M g , I n からなる群から選択される少なくとも 1 種の金属元素) を持つ金属アルコキシドと、金属種 S i を持つ金属アルコキシドとの、少なくとも 2 種類の金属アルコキシドを含有することが好ましい。または、これらのゾルゲル材料と、公知の光重合性樹脂とのハイブリッドも使用できる。

[01 61] 上述した屈折率範囲を満たす観点から、ゾルゲル材料は、金属種の異なる、少なくとも 2 種類の金属アルコキシドを含むことが好ましい。金属種の異なる 2 種類の金属アルコキシドの、金属種の組み合わせとしては、例えば、S i と T i , S i と S n , S i と Z r , S i と Z n , S i と I n , S i と M g , T i と Z r , T i と Z n , T i と M g 等が挙げられる。特に、金属種の異なる 2 種の金属アルコキシドを含み、且つ一方の金属アルコキシドの金属種が S i の場合、S i を金属種に持つ金属アルコキシドのモル濃度 (C S i) と、S i 以外の金属種 M 1 を持つ金属アルコキシド (C M 1) との比率 C_{M1} / C_{Si} は、0.2 ~ 1.5 であることが好ましい。微細構造層 1 2 の成形性の観点から、 C_{M1} / C_{Si} は 0.5 ~ 1.5 であることが好ましく、 C_{M1} / C_{Si} は 5 ~ 8 であることがより好ましい。

[01 62] 微細構造層 1 2 (1 2 a) は、無機のセグメントと有機のセグメントを含

むハイブリッドであってもよい。ハイブリッドとしては、例えば、無機微粒子（無機フィラー）と、光重合（あるいは熱重合）可能な樹脂の組み合わせや、無機前駆体と光重合（あるいは熱重合）可能な樹脂、や、有機ポリマーと無機セグメントが共有結合にて結合した分子、無機微粒子（無機フィラー）と水素結合を形成するポリマー（PVP等）等が挙げられる。無機前駆体としてゾルゲル材料を使用する場合は、シランカップリング剤を含むゾルゲル材料の他に、光重合可能な樹脂を含むことを意味する。ハイブリッドの場合、例えば、金属アルコキシド、光重合性基を具備したシランカップリング材、ラジカル重合系樹脂等を混合することができる。成形性をより向上させるために、これらにシリコーンを添加してもよい。また、微細構造層12（12a）の成形性を向上させる観点から、ゾルゲル材料部分は、予め予備縮合を行いプレポリマー化してもよい。シランカップリング剤を含む金属アルコキシドと、光重合性樹脂の混合比率は、微細構造層12の成形性の観点から、3：7～7：3の範囲が好ましい。より好ましくは、3.5：6.5～6.5：3.5の範囲である。ハイブリッドに使用する樹脂は、光重合可能であれば、ラジカル重合系でも、カチオン重合系でも特に限定されない。

[0163] 微細構造層12（12a）を構成する光重合可能なラジカル重合系の樹脂としては、例えば（メタ）アクリレートおよび光重合開始剤の混合物である樹脂組成物を用いることができる。

[0164] （メタ）アクリレートとしては、硬化後のガラス転移温度が100℃以上であれば、より好ましくは120℃以上であれば特に限定されないが、アクリロイル基またはメタクリロイル基を有するモノマー、ビニル基を有するモノマー、アリル基を有するモノマーが好ましく、アクリロイル基またはメタクリロイル基を有するモノマーがより好ましい。ここで硬化後のガラス転移温度は、使用する（メタ）アクリレートの混合物の硬化物に対するガラス転移温度を意味する。即ち、例えば（メタ）アクリレートA、（メタ）アクリレートB、（メタ）アクリレートCを使用した場合に、硬化後の（メタ）アクリレートA、B、Cのガラス転移温度がそれぞれ60℃、100℃、12

0℃の場合でも、それらの混合物（（メタ）アクリレートA＋（メタ）アクリレートB＋（メタ）アクリレートC）の硬化後のガラス転移温度が105℃だとすれば、ガラス転移温度として105℃を採用するものとする。

[01 65] 重合性モノマーとしては、重合性基を複数具備した多官能性モノマーであることが好ましく、重合性基の数は、重合性に優れることから1～6の整数が好ましい。また、2種類以上の重合性モノマーを混合して用いる場合、重合性基の平均数は2～5が好ましい。単一モノマーを使用する場合は、重合反応後の架橋点を増やし、硬化物の物理的安定性（強度、耐熱性等）を得るため、重合性基の数が3以上のモノマーであることが好ましい。また、重合性基の数が1または2であるモノマーの場合、重合性数の異なるモノマーと併用して使用することが好ましい。特に、屈折率調整の観点からスチレン部位（ベンゼン環部位）を具備することが好ましい。

[0166] (メタ)アクリレートモノマーの具体例としては、下記の化合物が挙げられる。アクリロイル基またはメタクリロイル基を有するモノマーとしては、(メタ)アクリル酸、芳香族系の(メタ)アクリレート[フェノキシエチルアクリレート、ベンジルアクリレート等]、炭化水素系の(メタ)アクリレート[ステアリルアクリレート、ラウリルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、アリルアクリレート、1,3-ブタンジオールジアクリレート、1,4-ブタンジオールジアクリレート、1,6-ヘキサジオールジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールトリアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート等]、エーテル性酸素原子を含む炭化水素系の(メタ)アクリレート[エトキシエチルアクリレート、メトキシエチルアクリレート、グリシジルアクリレート、テトラヒドロフルフリールアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、ネオペンチルダリコールジアクリレート、ポリオキシエチレングリコールジアクリレート、トリプロピレングリコールジアクリレート等]、官能基を含む炭化水素系の(メタ)アクリレート[2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、4-ヒドロキシプロ

チル ビニル エーテル、 N , N—ジェチル アミノエチル アクリレー ト、 N , N—ジメチル アミノエチル アクリレー ト、 N—ビニル ピロリドン、 ジメチル アミノエチル メタクリレー ト等]、シリコン系の アクリレー ト等が挙げられる。他には、 E O 変性 グリセロール トリ (メタ) アクリレー ト、 E C H 変性 グリセロール トリ (メタ) アクリレー ト、 P O 変性 グリセロール トリ (メタ) アクリレー ト、 ペンタエリス リトール トリアクリレー ト、 E O 変性 リン酸 トリアクリレー ト、 トリメチロール プロパン トリ (メタ) アクリレー ト、 カプロラク トン変性 トリメチロール プロパン トリ (メタ) アクリレー ト、 P O 変性 トリメチロール プロパン トリ (メタ) アクリレー ト、 トリス (アクリロキシエチル) イソシアヌレー ト、 E O 変性 トリメチロール プロパン トリ (メタ) アクリレー ト、 ジペンタエリス リトール ヘキサ (メタ) アクリレー ト、 カプロラク トン変性 ジペンタエリス リトール ヘキサ (メタ) アクリレー ト、 ジペンタエリス リトール ヒドロキシペンタ (メタ) アクリレー ト、 アルキル 変性 ジペンタエリス リトール ペンタ (メタ) アクリレー ト、 ジペンタエリス リトール ポリ (メタ) アクリレー ト、 ジトリメチロール プロパン テトラ (メタ) アクリレー ト、 アルキル 変性 ジペンタエリス リトール トリ (メタ) アクリレー ト、 ペンタエリス リトール エトキシテトラ (メタ) アクリレー ト、 ペンタエリス リトール テトラ (メタ) アクリレー ト、 ジエチレングリコール モノエチル エーテル (メタ) アクリレー ト、 ジメチロール ジシクロペンタンジ (メタ) アクリレー ト、 ジ (メタ) アクリル 化 イソシアヌレー ト、 1 , 3—ブチレングリコール ジ (メタ) アクリレー ト、 1 , 4—ブタンジオール ジ (メタ) アクリレー ト、 E O 変性 1 , 6—ヘキサンジオール ジ (メタ) アクリレー ト、 E O 変性 1 , 6—ヘキサンジオール ジ (メタ) アクリレー ト、 アリロキシポリエチレングリコール アクリレー ト、 1 , 9—ノナンジオール ジ (メタ) アクリレー ト、 E O 変性 ビスフェノール A ジ (メタ) アクリレー ト、 P O 変性 ビスフェノール A ジ (メタ) アクリレー ト、 変性 ビスフェノール A ジ (メタ) アクリレー ト、 E O 変性 ビスフェノール F ジ (メタ) アクリレー ト、 E C H 変性 ヘキサヒドロフタル酸 ジアクリレー ト、 ネオペンチルグリ

コールジ (メタ) アクリレート、ヒドロキシビバリン酸ネオペンチルダリコールジ (メタ) アクリレート、E O 変性ネオペンチルダリコールジアクリレート、P O 変性ネオペンチルダリコールジアクリレート、カプロラクトン変性ヒドロキシビバリン酸エステルネオペンチルダリコール、ステアリン酸変性ペンタエリスリトールジ (メタ) アクリレート、E C H 変性プロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、E C H 変性フタル酸ジ (メタ) アクリレート、ポリ (エチレングリコール-テトラメチレングリコール) ジ (メタ) アクリレート、ポリ (プロピレングリコール-テトラメチレングリコール) ジ (メタ) アクリレート、ポリプロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、シリコーンジ (メタ) アクリレート、テトラエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、トリエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、ポリエステル (ジ) アクリレート、ポリエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、ジメチロールトリシクロデカンジ (メタ) アクリレート、ネオペンチルグリコール変性トリメチロールプロパンジ (メタ) アクリレート、ジプロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、トリプロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、トリグリセロールジ (メタ) アクリレート、E O 変性トリプロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、ジビニルエチレン尿素、ジビニルプロピレン尿素、2-エチル-2-ブチルプロパンジオールアクリレート、2-エチルヘキシル (メタ) アクリレート、2-エチルヘキシルカルビトール (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシエチル (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシブチル (メタ) アクリレート、2-メトキシエチル (メタ) アクリレート、3-メトキシブチル (メタ) アクリレート、4-ヒドロキシブチル (メタ) アクリレート、アクリル酸ダイマー、ベンジル (メタ) アクリレート、ブタンジオールモノ (メタ) アクリレート、ブトキシエチル (メタ) アクリレート、ブチル (メタ) アクリレート、セチル (メタ) アクリレート、E O 変性クレゾール (メタ) アクリレート、エトキシ化フェニル (メタ) アクリレート、エチル (メタ) アクリレート、ジプロピレングリコール (メタ) アクリレ

ー ト、イソアミル (メタ) アクリレー ト、イソブチル (メタ) アクリレー ト、イソオクチル (メタ) アクリレー ト、シクロヘキシル (メタ) アクリレー ト、ジシクロペンタニル (メタ) アクリレー ト、イソボルニル (メタ) アクリレー ト、ジシクロペンタニルオキシエチル (メタ) アクリレー ト、イソミリスチル (メタ) アクリレー ト、ラウリル (メタ) アクリレー ト、メトキシジプロピレングリコール (メタ) アクリレー ト、メトキシポリエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、メトキシトリエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、メチル (メタ) アクリレー ト、メトキシトリプロピレングリコール (メタ) アクリレー ト、ネオペンチルダリコールベンゾエー ト (メタ) アクリレー ト、ノニルフエノキシポリエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、ノニルフエノキシポリプロピレングリコール (メタ) アクリレー ト、オクチル (メタ) アクリレー ト、パラクミルフエノキシエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、E C H変性フエノキシアクリレー ト、フエノキシジエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、フエノキシヘキサエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、フエノキシテトラエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、フエノキシエチル (メタ) アクリレー ト、ポリエチレングリコール (メタ) アクリレー ト、ポリエチレングリコール-ポリプロピレングリコール (メタ) アクリレー ト、ポリプロピレングリコール (メタ) アクリレー ト、ステアリル (メタ) アクリレー ト、E O変性コハク酸 (メタ) アクリレー ト、t e r t _ プチル (メタ) アクリレー ト、トリプロモフェニル (メタ) アクリレー ト、E O変性トリプロモフェニル (メタ) アクリレー ト、トリドデシル (メタ) アクリレー ト、イソシアヌル酸 E O変性ジおよびトリアクリレー ト、ε-カプロラク トン変性 トリス (アクロキシエチル) イソシアヌレー ト、ジトリメチロールプロパンテトラアクリレー ト等が挙げられる。アリル基を有するモノマーとしては、p-イソプロペニルフェノール、ビニル基を有するモノマーとしては、スチレン、α-メチルスチレン、アクリロニトリル、ビニルカルバゾール等が挙げられる。なお、E O変性とはエチレンオキシド変性をE C H変性とはエピクロロヒドリン変性を、P O変性

とはプロピレンオキシド変性を意味する。また、例えば、ビスフエノール A 系としは、ビスフエノール A の両端にそれぞれ平均 2 モルずつのプロピレンオキサイドと平均 6 モルずつのエチレンオキサイドを付加したポリアルキレングリコールのジメタクリレートや、ビスフエノール A の両端にそれぞれ平均 5 モルずつのエチレンオキサイドを付加したポリエチレングリコールのジメタクリレート (新中村化学工業 (株) 製 NK エステル BPE-500) およびビスフエノール A の両端にそれぞれ平均 2 モルのエチレンオキサイドを付加したポリエチレングリコールのジメタクリレート (新中村化学工業 (株) 製 NK エステル BPE-200) を採用することもできる。例えば、1, 6-ヘキサンジオールジ (メタ) アクリレート、1, 4-シクロヘキサンジオールジ (メタ) アクリレート、ポリプロピレングリコールジ (メタ) アクリレート、ポリエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、2-ジ (p-ヒドロキシフェニル) プロパンジ (メタ) アクリレート、グリセロールトリ (メタ) アクリレート、トリメチロールプロパントリ (メタ) アクリレート、ポリオキシプロピルトリメチロールプロパントリ (メタ) アクリレート、ポリオキシエチルトリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラ (メタ) アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ (メタ) アクリレート、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテルトリ (メタ) アクリレート、ビスフエノール A ジグリシジルエーテルジ (メタ) アクリレート、 β -ヒドロキシプロピル- β' - (アクリロイルキシ) プロピルфтаレー ト、フェノキシポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、ノニルフエノキシポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、ノニルフエノキシポリアルキレングリコール (メタ) アクリレート、ポリプロピレングリコールモノ (メタ) アクリレート等が挙げられる。ウレタン化合物としては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、又は 2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等のジイソシアネート化合物と、一分子中にヒドロキシル基と (メタ) アクリル基を有する化合物 (2-ヒドロキシプロピルアクリレート、オリゴプロピレング

リコールモノメタクリレート等)との反応で得られるウレタン化合物等が挙げられる。具体的には、ヘキサメチレンジイソシアネートとオリゴプロピレングリコールモノメタクリレート(日本油脂(株)製、プレナーPP1000)との反応物がある。

[0167] また、屈折率を調整する観点から、バインダー樹脂を含んでもよい。バインダー樹脂を含むことで屈折率の調整および、耐熱性が向上するため好ましい。

[0168] バインダー樹脂は反応性バインダー樹脂であってもよい。バインダー樹脂の重量平均分子量は、成形性の観点から、5000~500000であることが好ましい。前記効果をより一層発揮するため、5000~100000であることがより好ましく、さらに好ましくは5000~60000である。分散度(分子量分布と呼ぶこともある)は下記式の重量平均分子量と数平均分子量の比で表される。 $(\text{分散度}) = (\text{重量平均分子量}) / (\text{数平均分子量})$ 。分散度は概ね1~6程度のものが用いられ好ましくは1~4である。なお、分子量は、日本分光(株)製ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)、(ポンプ:Guiliver、PU-1580型、カラム:昭和電工(株)製Shodex(登録商標)(KF-807、KF-806M、KF-806M、KF-802.5)4本直列、移動層溶媒:テトラヒドロフラン、ポリスチレン標準サンプルによる検量線使用)により重量平均分子量(ポリスチレン換算)として求められる。

[0169] バインダー樹脂としては、特に限定されないが、例えば、下記の2種類の単量体の中より、各々一種又はそれ以上の単量体を共重合させることにより得られる樹脂をバインダー樹脂として使用することができる。

[0170] 第1の単量体としては、例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート等のアルキル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリロニトリル、ベンジル(メタ)アクリレート、メトキシベ

ンジル (メタ) アクリレート、クロロベンジル (メタ) アクリレート、フルフリル (メタ) アクリレート、テトラヒドロフルフリル (メタ) アクリレート、フェノキシエチル (メタ) アクリレート、フェニル (メタ) アクリレート、クレジル (メタ) アクリレート、ナフチル (メタ) アクリレート等のアリール (メタ) アクリレート、フェニル基を有するビニル化合物 (例えば、スチレン) 等を用いることができる。

[0171] ベンジル (メタ) アクリレート或いはフェニル基を有するビニル化合物 (例えばスチレン) を上記第2の単量体として用いることが好ましい。ベンジル (メタ) アクリレート或いはフェニル基を有するビニル化合物 (例えばスチレン) はバインダー用樹脂1分子中に10質量%~95質量%共重合されることが好ましい。特に、20質量%以上90質量%以下がより好ましい。

[0172] 光重合開始剤としては、特に限定されないが、光学用基材1を使用する環境において、使用波長に対する吸収が実質的にないことが好ましい。光重合開始剤は、光によりラジカル反応またはイオン反応を引き起こすものであり、ラジカル反応を引き起こす光重合開始剤が好ましい。光重合開始剤としては、下記の光重合開始剤が挙げられる。

[0173] アセトフェノン系の光重合開始剤として、アセトフェノン、*p*-tert-ブチルトリクロロアセトフェノン、クロロアセトフェノン、2,2-ジエトキシアセトフェノン、ヒドロキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2'-フェニルアセトフェノン、2-アミノアセトフェノン、ジアルキルアミノアセトフェノン等が挙げられる。ベンゾイン系の光重合開始剤としては、ベンジル、ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニル-2-メチルプロパン-1-オン、1-(4-イソプロピルフェニル)-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン、ベンジルジメチルケタール等が挙げられる。ベンゾフェノン系の光重合開始剤としては、ベンゾフェノン、ベンゾイル安息香酸、ベンゾイル安息香酸メチル、

メチル α -ベンゾイルベンゾエート、4-フェニルベンゾフェノン、ヒドロキシベンゾフェノン、ヒドロキシプロピルベンゾフェノン、アクリルベンゾフェノン、4,4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン、ペルフルオロベンゾフェノン等が挙げられる。

[0174] チオキサントンの系の光重合開始剤としては、チオキサントン、2-クロロチオキサントン、2-メチルチオキサントン、ジエチルチオキサントン、ジメチルチオキサントン等が挙げられる。

[0175] アントラキノン系の光重合開始剤としては、2-メチルアントラキノン、2-エチルアントラキノン、2-tert-ブチルアントラキノン、1-クロロアントラキノン、2-アミルアントラキノン等が挙げられる。

[0176] ケタール系の光重合開始剤としては、アセトフェノンジメチルケタール、ベンジルジメチルケタール等が挙げられる。

[0177] その他の光重合開始剤としては、 α -アシルオキシムエステル、ベンジル-(α -エトキシカルボニル)- α -モノオキシム、アシルホスフィンオキサイド、ダリオキシエステル、3-ケトクマリン、2-エチルアンスラキノン、カンファーキノン、テトラメチルチウラムスルフィド、アゾビスイソプロチロニトリル、ベンゾイルペルオキシド、ジアルキルペルオキシド、tert-ブチルペルオキシピバレート等。フッ素原子を有する光重合開始剤：ペルフルオロtert-ブチルペルオキシド、ペルフルオロベンゾイルペルオキシド等、の公知慣用の光重合開始剤を単独で又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0178] 市販されている開始剤の例としては、BASFジャパン(株)製の「Irgacure(登録商標)」(例えば、Irgacure 651、184、500、2959、127、754、907、369、379、379EG、819、1800、784、O26E01、O26E02)や「Darocur(登録商標)」(例えば、Darocur 1173、MBF、TPO、4265)等が挙げられる。

[0179] 微細構造層12を構成する光重合可能なカチオン重合系の樹脂は、少なく

ともカチオン硬化性モノマーと、光酸発生剤とを含む組成物を意味する。カチオン硬化性樹脂組成物におけるカチオン硬化性モノマーとは、カチオン重合開始剤の存在下で、例えば、UV照射や加熱等の硬化処理を行うことにより硬化物が得られる化合物である。カチオン硬化性モノマーとしては、エポキシ化合物、オキセタン化合物、およびビニルエーテル化合物が挙げられ、エポキシ化合物としては、脂環式エポキシ化合物、およびグリシジルエーテルが挙げられる。これらの中でも脂環式エポキシ化合物は、重合開始速度が向上し、オキセタン化合物は重合率の向上効果があるので、使用することが好ましく、ダリシジルエーテルはカチオン硬化性樹脂組成物の粘度を低下させ、塗工性に効果があるので使用することが好ましい。より好ましくは、脂環式エポキシ化合物とオキセタン化合物とを併用することであり、さらに好ましくは脂環式エポキシ化合物とオキセタン化合物との重量比率が99:1～51:49の範囲で併用することである。

[0180] カチオン硬化性モノマーの具体例としては、以下のものが挙げられる。脂環式エポキシ化合物としては、例えば、3',4'-エポキシシクロヘキサンカルボン酸-3,4-エポキシシクロヘキシルメチル、3',4'-エポキシ-6'-メチルシクロヘキサンカルボン酸-3,4-エポキシ-6'-シクロヘキシルメチル、ビニルシクロヘキセンモノオキサイド1,2-エポキシ-4-ビニルシクロヘキサン、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が挙げられる。

[0181] グリシジルエーテルとしては、例えば、ビスフェノールAグリシジルエーテル、ビスフェノールFグリシジルエーテル、水添ビスフェノールAグリシジルエーテル、水添ビスフェノールFグリシジルエーテル、1,4-ブタンジオールグリシジルエーテル、1,6-ヘキサンジオールグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、グリシジルメタクリレート、3-グリシジロキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシジロキシプロピルエチルジエトキシシラン、3-ダリシジロキシプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。

[01 82] オキセタン化合物としては、例えば、3 _ エチル _ 3 _ (フエノキシメチル) オキセタン、ジ [1 —エチル (3 —オキセタニル)] メチルエーテル、3 _ エチル _ 3 アリルオキシメチルオキセタン、3 _ エチル _ 3 _ (2 —エチルヘキシロキシメチル) オキセタン、3 _ エチル _ 3 _ { [3 - (トリエトキシシリル) プロボキシ] メチル } オキセタン等が挙げられる。

[01 83] ビニルエーテルとしては、2 —ヒドロキシブチルビニルエーテル、ジエチレングリコールモノビニルエーテル、2 —ヒドロキシブチルビニルエーテル、4 —ヒドロキシブチルビニルエーテル、トリエチレングリコールジビニルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジビニルエーテル、1, 4 —ブタンジオールジビニルエーテル等が挙げられる。

[01 84] 光酸発生剤は、光照射により光酸を発生すれば、特に限定されるものではない。例えば、スルホニウム塩、ヨードニウム塩といった芳香族オニウム塩が挙げられる。光酸発生剤としては、例えば、スルホニウムヘキサフルオロアンチモネート、ベンジルトリフェニルホスホニウムヘキサフルオロホスフェート、ベンジルピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、トリフェニルスルホニウムヘキサフルオロホスフェート、ベンゾイントシレート、アデカオプトマー s p _ 170 (ADEKA社製)、アデカオプトマー s p - 172 (ADEKA社製)、W P A G _ 145 (和光純薬工業社製)、W P A G _ 170 (和光純薬工業社製)、W P A G _ 199 (和光純薬工業社製)、W P A G _ 281 (和光純薬工業社製)、W P A G _ 336 (和光純薬工業社製)、W P A G _ 367 (和光純薬工業社製)、C P I _ 100P (サンアプロ社製)、C P I - 101A (サンアプロ社製)、C P I _ 200K (サンアプロ社製)、C P I - 21OS (サンアプロ社製)、D T S — 102 (みどり化学社製)、T P S - T F (東洋合成工業社製)、D T B P I — P F B S (東洋合成工業社製)等が挙げられる。

[01 85] (透明誘電体層の材質)

本実施の形態に係る光学用基材の表面には、図21に示すように透明誘電

体層 7 2 を具備 していてもよい。

[01 86] 透明誘電体層 7 2 の屈折率は、1. 7 以上 2. 4 以下であることが好ましい。これにより、光学用基材 7 1 (1、1 a) を使用して、有機 E L 発光デバイス内部で導波モードとなり発光デバイス内部に閉じ込められた発光光をより効果的に取り出すことができる。特に、透明誘電体層 7 2 における微細構造層 1 2 (1 2 a) とは反対側の面 7 3 と、面 7 3 上に積層された層との界面において、透明誘電体層 7 2 を構成する材料の屈折率と面 7 3 上に積層された層を構成する材料との屈折率が実質的に等しいことが好ましい。特に、面 7 3 上に積層された層が、透明導電膜であると、発光デバイスとしての機能を発現するため、好ましい。以上より、透明誘電体層 7 2 の屈折率は、上記範囲において、使用される発光デバイスの特性に応じ、適宜選択することができる。

[01 87] 透明誘電体層 7 2 を構成する材料は、密度の揺らぎ (相分離) を含んでいてもよい。特に、50 nm ~ 800 nm の密度揺らぎが存在する場合、透明誘電体層 7 2 内部において、散乱効果を発現できるため好ましい。密度の揺らぎは、透明誘電体層 7 2 を構成する材料の相分離や、透明誘電体層 7 2 を構成する材料中に微粒子やフィラーを添加すること等で達成できる。さらに、この密度の揺らぎを屈折率として測定した場合、透明誘電体層 7 2 の微細構造とは反対側の面側 (面 7 3 側) から、微細構造面側へと、屈折率が減少するような密度揺らぎがあると、上述の効果に加え、透明誘電体層と透明誘電体層上に形成される発光デバイス界面での、光の反射を一層抑制できるため好ましい。前記密度の揺らぎとしては、例えば、微粒子またはフィラーの、微粒子 (フィラー) 濃度勾配が挙げられる。

[01 88] 透明誘電体層 7 2 を構成する材料は、上述した屈折率範囲を満たせば、特に限定されないが、種々の公知樹脂 (有機物) 、無機前駆体、無機縮合体、金属酸化物フィラー、金属酸化物微粒子等を使用できる。上述した屈折率範囲を満たすこと、ならびに、微細構造層 1 2 (1 2 a) と反対側の面 7 3 の平坦化および光学用基材 7 1 (1、1 a) の耐環境性の観点から、透明誘電

体層 7 2 を構成する材料は、無機前駆体、無機縮合体、無機前駆体または無機縮合体および金属ファイラー、無機前駆体または無機縮合体および有機物から構成される有機無機ハイブリッド、あるいは、無機前駆体または無機縮合体ならびに金属ファイラーおよび有機物から構成される有機無機ハイブリッドであることが好ましい。特に、透明誘電体層を構成する材料中に、 In 、 Sn 、 Ti 、 Zr 、 Zn 、 Mg かなる群から選ばれる少なくとも 1 種類の金属元素が含まれると、屈折率の範囲を満たす調整が容易であるため好ましい。

[01 89] 透明誘電体層 7 2 を構成する材料は、加熱処理後においても光学的に透明であると好ましい。ここで加熱処理温度は、 150°C 以上が好ましく、 200°C 以上がより好ましい。加熱時間は 10 分以上が好ましい。また、加熱雰囲気は、低酸素環境下（例えば、真空状態、窒素置換状態等）が好ましい。

[01 90] なお、有機無機ハイブリッド材料中に含まれる有機物は、屈折率調整および耐環境性の観点から、熱重合性樹脂、熱可塑性樹脂、あるいは光重合可能な光重合性基と熱重合可能な重合性基の両方、またはいずれか一方を含むと特に好ましい。また、無機前駆体、無機縮合体、無機ファイラーから選択される少なくとも 1 つの無機物と、水素結合を形成する部位を有することが好ましい。

[01 91] 透明誘電体層 7 2 を構成する材料に含まれる無機物には、例えば、ゾルゲル材料を含むことができる。ゾルゲル材料を含むことで、上記範囲において、屈折率を容易に調整可能であり、かつ、本実施の形態に係る光学用基材 7 1（1、1 a）を有機 EL 発光デバイスとして使用した場合の、微細構造層 1 2（1 2 a）の劣化を抑制できるため好ましい。微細構造層 1 2（1 2 a）を構成する材料は、上述したようにゾルゲル材料を含むことができるが、ゾルゲル材料のみで構成されても、ゾルゲル材料に金属酸化物微粒子（ファイラー）を含有しても、また、ゾルゲル材料と有機樹脂との有機無機ハイブリッド材料で構成されてもよい。

[01 92] また、ゾルゲル材料としては、モノマー（単分子）や 2 量体のみでなく、部分硬化体（プレポリマー）を用いることもできる。ゾルゲル材料、特に、

金属アルコキシドが部分的に縮合することで、金属種が酸素元素を介し連なったプレポリマーを得ることができる。つまり、部分的に縮合することで、分子量の大きなプレポリマーを作ることができる。これにより、未反応の官能基数が減少し、高密度化する。このため、屈折率をより高い方向へと変化させることができる。さらに、部分縮合により、未反応官能基数が減少するとともに粘度が上昇し、水蒸気等と反応する官能基数が減少するため、安定性が向上する。さらに、透明誘電体層 7 2 の微細構造層 1 2 (1 2 a) とは反対側の面 7 3 の平坦性が向上する。

[01 93] ゼルゲル材料とは、熱や触媒の作用により、加水分解重縮合が進行し、硬化する化合物群である。例えば、金属アルコキシド (金属アルコラート)、シルセスキオキサン化合物、金属キレート化合物、ハロゲン化金属、ハロゲン化シラン、液状ガラス、スピノングラス、シランカップリング剤、または、これらの反応物、これらに硬化を促進させる触媒を含ませたものである。これらは、要求される物性に応じて、単独で用いてもよいし、複数種類を組み合わせ用いてもよい。また、ゼルゲル材料に、シリコーンをはじめとするシロキサン材料や、反応抑制剤等を含ませてもよい。

[01 94] 透明誘電体層 7 2 を構成する材料としてのゼルゲル材料は、屈折率を高く調整する観点および面 7 3 の平坦性の観点から、金属種 M 1 (但し、M 1 は、 In 、 Sn 、 Ti 、 Zr 、 Zn 、 Mg からなる群から選択される少なくとも 1 種の金属元素) を持つ金属アルコキシドを含むことが好ましい。さらに、これら金属種 M 1 を有する金属アルコキシドと、金属種 S i を有する金属アルコキシドの、少なくとも 2 種類の金属アルコキシドを含有してもよい。金属種 M 1 を有する金属アルコキシドを含むことにより、屈折率を調整可能となる。また、金属種 S i を有する金属アルコキシドを含むことにより、透明誘電体層 7 2 を構成する材料の水蒸気に対する安定性が向上する。金属種 M 1 を有する金属アルコキシドを 2 成分以上用いても、金属種 S i を有する金属アルコキシドを 2 成分以上用いてもよい。また、金属種 M 1 を有する金属アルコキシドと金属種 S i を有する金属アルコキシドの他に、金属種 M 2 (

但し、 $M_2 \neq M_1$ 、かつ $M_2 \neq Si$ ）を有する金属アルコキシドを用いてもよい。同様に、金属種 M_3 （但し、 $M_3 \neq M_2$ 、 $M_3 \neq M_1$ 、かつ $M_3 \neq Si$ ）を有する金属アルコキシドを用いてもよい。

[01 95] 金属種の異なる2種類の金属アルコキシドの、金属種の組み合わせとしては、例えば、 Si と Ti 、 Si と Zr 、 Si と Zn 、 Si と Sn 、 Si と In 、 Si と Mg 、 Ti と Zr 、 Ti と Zn 、 Ti と Mg 、 I と II 、 Zn と Mg 、 II と III 、 Zn と Sn 等が挙げられる。特に、金属種の異なる2種の金属アルコキシドを含み、且つ一方の金属アルコキシドの金属種が Si の場合、 Si を金属種に持つ金属アルコキシドのモル濃度 (C_{Si}) と、 Si 以外の金属種 M1 を持つ金属アルコキシド (C_{M1}) との比率 $C_{\text{M1}}/C_{\text{Si}}$ は、0.2~1.5であることが好ましい。微細構造層12の成形性の観点から、 $C_{\text{M1}}/C_{\text{Si}}$ は0.5~1.5であることが好ましく、 $C_{\text{M1}}/C_{\text{Si}}$ は5~8であることがより好ましい。例えば、金属種の異なる3種類の金属アルコキシドの、金属種の組み合わせとしては、 Si と Ti と Zn 、 Si と Ti と Mg 、 Si と Ti と Zr 、 Si と Ti と In 、 Si と Ti と Sn 、 Si と Zr と Zn 、 Si と Zr と In 、 Si と Zr と Mg 、 Si と In と Sn 、 I と II と III 、 I と II と IV 、 I と II と V 、 Zn と Mg と Zr 等が挙げられる。

[01 96] 金属種 M 1 を有する金属アルコキシドのモル濃度 (C M 1) と、金属種 S i を有する金属アルコキシドのモル濃度 (C S i) との間の比を変えることで原子間距離を変化でき、その結果、屈折率を変化させることができる。C M 1 と C S i との間の比は、 $0.2 \leq C M 1 / C S i \leq 2.5$ を満たす範囲内で選択することができるため、屈折率を柔軟に変化可能である。ここで、金属種 S i を有する金属アルコキシドのモル濃度 (C S i) とは、透明誘電体層 7 1 を構成する材料に含まれる金属種 S i を有する金属アルコキシドの全濃度を意味する。

[0197] 一方で、金属種 M 1 を有する金属アルコキシドのモル濃度 (C M 1) とは、透明誘電体層 72 を構成する材料に含まれる金属種 S i を有する金属アル

コキシド以外の、金属種を持つ金属アルコキシド全てのモル濃度の合計を意味する。例えば、金属種 Ti 、金属種 Zr 、金属種 Mg を持つ金属アルコキシドが、それぞれ C_{Ti} 、 C_{Zr} 、 C_{Mg} のモル濃度で存在していた場合、 C_{M1} は、 $C_{Ti} + C_{Zr} + C_{Mg}$ となる。

[01 98] 金属種 $M1$ としては、 In 、 Sn 、 Ti 、 Zr 、 Zn 、 Mg からなる群から選ばれた少なくとも1種であることが、屈折率可変性の観点から好ましい。どの金属種の金属アルコキシドを使用するかは、ハンドリングや発光素子の層構成といった観点で、選定すればよい。

[01 99] また、透明誘電体層を構成する材料中に、バインダーポリマー、反応性希釈材、および重合開始材を含んでもよい。これらを含むことにより、図22に示すトップエミツション型発光デバイスに使用する際の貼合性が向上する。バインダーポリマーとしては、微細構造層12(12a)を構成する一材料として記載したバインダー樹脂を使用することができる。反応性希釈材としては、微細構造層12(12a)を構成する一材料として記載した光重合可能なラジカル重合系の樹脂、光重合可能なカチオン重合系の樹脂またはそれらの混合物を使用することができる。重合開始材としては、微細構造層12(12a)を構成する一材料として記載した光重合開始材または光酸発生材を使用することができる。

[0200] 本実施の形態に係る光学用基材1(1a)は、微細凹凸構造のサイズがナノスケールであるため、光学用基材1(1a)を使用した有機EL発光デバイスを作製する際に、透明誘電体層72と透明導電膜層との界面を容易に平坦化することが可能となる。

[0201] 本発明の光学用基材1(1a)は、基材11(11a)と微細構造層12(12a)との界面位置、または基材11(11a)の微細構造層12(12a)とは反対側の面上にバリア層を設けてもよい。バリア層を設けることにより、有機EL発光デバイスに本発明の光学用基材1(1a)を適用した際の、有機EL発光デバイスの信頼性が向上するため好ましい。バリア層は、例えば、酸化ケイ素、窒化ケイ素等の無機酸化物や無機窒化物、ダイヤモンド

ンドライクカーボン (DLC) 等で形成することができる。ガスバリア層は多層であるとより好ましい。十分なガスバリア性を発揮するためには、ガスバリア層の厚みは5 nm以上、より好ましくは10 nm以上、さらに好ましくは50 nm以上とする。逆に厚くしすぎるとガスバリア層にクラックが入る等の不具合も生じるため、ガスバリア層の厚みは10 μ m以下、さらには1 μ m以下であることが好ましい。

[0202] (光拡散性基材)

また、本実施の形態に係る光学用基材1(1a)を用いた有機EL発光デバイスにおいては、光拡散性基材を配置してもよい。光拡散性基材は、光拡散機能を有するシート(板状体)または光拡散機能を有するフィルムで形成することができる。具体的には、光拡散性基材としては、光拡散材がシートまたはフィルム内に分散されたもの、光拡散性を有する構造がシートまたはフィルム表面に形成されたもの、拡散材と光拡散性を有する構造を組み合わせたもの等を用いることができる。これらの中から発光デバイスで適用する波長の指向性等を考慮して適用すればよい。

[0203] 光拡散材がシートまたはフィルム内に分散された光拡散性基材の一例としては、恵和株式会社製のオルパスを適用できる。光拡散性を有する構造がシートまたはフィルム表面に形成された光拡散性基材の一例としては、Luminit社製のLIGHT SHAPING DIFFUSERを適用することができる。

[0204] 光拡散性基材を構成するシートまたはフィルムとしては、ガラスや樹脂等を用いることができるが、加工性の良さや軽量であること等から樹脂を用いることが好ましい。また、光拡散材としては空気等の低屈折率材料、酸化チタン等の高屈折率材料を用いることができる。

[0205] 光拡散性基材の界面反射を減らすことにより光の取り出し効率が上がるため、光拡散性を有するシートまたはフィルムを粘着材または接着剤を用いて貼り付けることが好ましい。また、ガスバリア性の観点からも、光拡散性を有するシートまたはフィルムを粘着材または接着剤を用いて貼り付けること

により空気層を設けない構成とすることが好ましい。

[0206] つぎに、本発明の光学用基材 1 (1a) の製造方法について説明する。ただし、以下にしめす製造方法は一例であって、光学用基材 1 (1a) の製造方法は、これに限定されるものではない。

[0207] 本実施の形態に係る光学用基材 1 (1a) は、ナノインプリント、EB 描画、フォトリソグラフィー、干渉露光等により作成することができる。

[0208] 図 23 は、光学用基材の製造方法の一例を示す説明図である。図 23 に示すように、露光装置 400 は、レジスト層が被覆されたロール状部材 401 を図示しないロール把持部により把持しており、回転制御部 402 と、加工ヘッド部 403 と、移動機構部 404 と、露光制御部 405 と、を備えている。回転制御部 402 は、ロール状部材 401 の中心を軸として、ロール状部材 401 を回転させる。加工ヘッド部 403 は、レーザ光を照射して、ロール状部材 401 のレジスト層を露光する。移動機構部 404 は、加工ヘッド部 403 をロール状部材 401 の長軸方向に沿って、制御速度で移動させる。露光制御部 405 は、回転制御部 402 によるロール状部材 401 の回転と同期した基準信号に基づいて、加工ヘッド部 403 によるレーザ露光のパルス信号を制御する。

[0209] 露光装置 400 によるロール状部材 401 の加工は、ロール状部材 401 を回転させた状態で、加工ヘッド部 403 からパルスレーザを照射することにより行う。加工ヘッド部 403 は、パルスレーザを照射しながら、移動機構部 404 によって、ロール状部材 401 の長軸方向に沿って移動する。ロール状部材 401 の回転数およびパルスレーザの周波数から、回転方向におけるロール状部材 401 の外周面のレジスト層に任意のピッチでパターン 406 が記録される。これが、ロールツーロールナノインプリントモールドにおける D1 方向のピッチ P_y となる。

[0210] さらに、ロール状部材 401 の長軸方向に沿って走査しているため、任意の位置からロール状部材 401 が 1 周すると、加工ヘッド部 403 が長軸方向にずれることになる。これがロールツーロールナノインプリントモールド

におけるD2方向のピッチ P_x となる。ロール状部材401の周長に比較して、パターン406のピッチ P_y 、 P_x は、ナノメートルオーダーと非常に小さいので、D1方向のピッチ P_y を維持しながら、長軸方向でみるとD1方向のシフト量がずれた列状パターンを形成することができる。さらに、上述したように、パターン406のピッチ P_y 、 P_x は、ロール状部材401の周長に比較して非常に小さいので、D1方向とD2方向は実質的に直交する。

[021 1] ロール状部材401は、円筒状に形成された部材に回転軸が備えられているものであり、材質としては、金属、カーボンコア、ガラス、石英等が適用できる。ロール状部材401は、高回転が可能な加工精度が必要とされることから、材質は、金属、カーボンコア等が好ましい。さらに、レーザ露光される円筒表面部のみ、異なる材料で被覆することもできる。特に、熱反応型レジストを使用するときは、断熱効果を高めるために金属よりも熱伝導率が低い材料を適用することが好ましく、ガラス、石英、酸化物、窒化物等が挙げられる。円筒表面に被覆した層を、後述するレジスト層をマスクとしてエッチングするエッチング層として、使用することも可能である。

[021 2] ロール状部材401を被覆するレジストは、レーザ光により露光されるものであれば、特に限定されるものではなく、光硬化型レジスト、光増幅型レジスト、熱反応型レジスト等が適用できる。特に、熱反応型レジストは、レーザ光の波長よりも小さい波長でパターン形成できるので好ましい。

[021 3] 熱反応型レジストは、有機レジストまたは無機レジストであることが好ましい。これらのレジストにより形成されたレジスト層は、単層構造であっても、複数のレジスト層を組み合わせた多層構造であってもよい。なお、どのようなレジストを選択するかは、工程や要求加工精度等によって適宜変更することができる。例えば、有機レジストは、ロール状部材401を被覆するレジスト層を形成する際に、ロールコーター等で塗布できるため工程が簡便となる。ただし、スリーブ上に塗布するためレジストの粘性に制限があり、塗布厚精度や制御あるいは多層にコーティングすることは難しい。

[0214] 有機レジストとしては、(株)情報機構発行「最新レジスト材料ハンドブック」や(株)工業調査会「フォトリマーハンドブック」にあるように、ノボラック樹脂またはノボラック樹脂とジアゾナフトキンとの混合物、メタクリレート系樹脂、ポリスチレン系樹脂、ポリエチレン系樹脂、フエノール系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリアミド系樹脂、シリコーン樹脂、ポリエステル系樹脂、エポキシ系樹脂、メラミン系樹脂、ビニル系樹脂等が挙げられる。

[0215] 一方、無機レジストは、ロール状部材401を被覆するレジスト層を、抵抗加熱蒸着法や電子ビームスパッタ法、CVD法等の気相法等によって設けることが好適である。これらの方法は、基本的に真空プロセスになるため、スリーブ上に形成するには工数が掛かるが、膜厚が精度良く制御でき、また、多層に積層することが容易である。

[0216] 無機レジスト材料は、反応させる温度によって種々選択することができる。例えば、無機レジスト材料としては、Al, Si, P, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, In, Sn, Sb, Te, Pb, Bi, Ag, Auおよびこれらの合金が挙げられる。また、無機レジスト材料は、Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Pd, Ag, In, Sn, Sb, Te, Ba, Hf, Ta, W, Pt, Au, Pb, Bi, La, Ce, Sm, Gd, Tb, Dyの酸化物、窒化物、窒酸化物、炭化物、硫化物、硫酸化物、フッ化物、塩化物や、これらの混合物を適用してもよい。

[0217] ロール状部材401を被覆するレジストとして熱反応型レジスト材料を使用した場合、下記のパターンを形成する露光前に、レジストをパターン形成時よりも低い温度で処理する予備加熱を施してもよい。予備加熱を加えることで、パターン形成時のパターン分解能を向上させることが可能となる。予備加熱によりパターン分解能が向上するメカニズムの詳細は不明だが、熱反応型レジスト材料の熱エネルギーによるレジスト層を形成する材料の変化が

複数の反応に基づく場合、予備加熱により、パターン形成時の反応以外を事前に終了させることで、パターン形成反応が単純となり、パターン分解能が向上すると推測される。

[021 8] ロール状部材 4 0 1 を被覆するレジストを予備加熱する方法としては、特に制限されるものではなく、ロール状部材全体を加熱する方法や、ロール状部材 4 0 1 にレーザーでパターンニングするよりも低い出力でロール表面全体を走査し、レジストに熱エネルギーを照射する方法等が挙げられる。

[021 9] ロール状部材 4 0 1 を被覆するレジストとして、熱反応型レジストを使用すると、後述する回転と同期した基準信号に基づいて位相変調させたパルス信号で露光する場合、パターンを形成するドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対応して増減するため好ましい。熱反応型レジストを使用した場合に、ピッチに対応してドットの直径が増減する明確なメカニズムは不明であるが、つぎのように推測される。

[0220] 熱反応型レジストの場合、照射部に照射されたレーザーの熱エネルギーによりレジスト層を形成する材料に変化が生じ、エッチング特性が変わることでパターンが形成される。この時、照射された熱はレジスト層の変化にすべて使われるのではなく、一部は蓄熱され隣接する領域に伝熱される。そのため、隣接する領域での熱エネルギーは、照射エネルギーに加え、隣接する領域からの伝熱エネルギーが加わることになる。ナノオーダーのパターン形成では、この伝熱エネルギーの寄与は無視できず、伝熱の寄与は、パターンを形成するドット間距離に反比例するため、結果として、得られるパターン径は、隣接するドット間距離の影響を受ける。

[0221] ここで、ドット間距離が位相変調により変わると、上記した伝熱エネルギーの寄与が、ドット毎に異なることになり、ドット間距離が広いと、伝熱エネルギーの寄与が小さくなり、ドット径が小さくなり、ドット間距離が狭いと、伝熱エネルギーの寄与が大きくなるため、ドット径が大きくなる。

[0222] また、ロール状部材 4 0 1 を被覆するレジストとして、熱反応型レジストを使用し、後述するエッチング層をもうけ、パターンの加工深さを制御する

と、前記したと同様、回転と同期した基準信号に基づいて位相変調させたパルス信号で露光する場合、パターンを形成するドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減するため好ましい。熱反応型レジストとエッチング層を併用した場合に、ピッチ P_x に対応してドットの直径が増減するメカニズムは不明であるが、上記した、ドット間距離に応じてドット径が増減することから説明が可能である。

[0223] すなわち、ナノオーダーのパターニングにおいて、ドット径に応じて、エッチング深さが増減し、ドット径が広くなるとエッチング深さは深くなり、ドット径が狭くなるとエッチング深さが浅くなる傾向がある。特に、エッチング手法がドライエッチングにおいて顕著である。これは、エッチャントの交換、あるいは、エッチング生成物の離脱が迅速に行われなためであると考えられる。

[0224] 前記したように、熱反応型レジストを使用すると、ドット間距離が広いとドット径が小さくなり、ドット間距離が狭いと、ドット径が大きくなる。ドット径に応じて、エッチング深さが増減する傾向があるため、結果として、ドット間距離が広いと、ドット深さは浅くなり、ドット間距離が狭いと、ドット深さが深くなる。

[0225] 以上ドット間距離と、ドット径、ドット深さの増減の影響は、平均ピッチが小さくなると顕著である。これは、上記した伝熱エネルギーの影響が大きくなるためと推定される。

[0226] 本発明においては、ロール状部材401を被覆するレジスト層を利用してそのままロールツーロールナノインプリントモールドとして適用してもよく、また、レジスト層をマスクとして、ロール状部材401の表面基材をエッチングすることによりパターンを形成してもよい。

[0227] ロール状部材401にエッチング層を設けることで、パターンの加工深さを自由に制御でき、かつ、熱反応レジスト層の厚みを加工に最適な膜厚に選択することができる。すなわち、エッチング層の厚みを制御することで、加工深さを自由に制御できる。また、加工深さはエッチング層で制御できるこ

とから、熱反応型レジスト層は露光や現像が容易な膜厚を選択すればよい。

[0228] 露光を行う加工ヘッド部403に用いるレーザは、波長150nm以上550nm以下が好ましい。また、波長の小型化および入手の容易さから、半導体レーザを使用することが好ましい。半導体レーザの波長は、150nm以上550nm以下であることが好ましい。波長が150nmより短い場合には、レーザの出力が小さくなり、ロール状部材401を被覆するレジスト層を露光することが困難なためである。一方、波長が550nmより長い場合には、レーザのスポット径を500nm以下にすることができず、小さな露光部を形成することが困難なためである。

[0229] 一方、スポットサイズが小さな露光部を形成するためには、加工ヘッド部403に用いるレーザとして、ガスレーザを使用することが好ましい。特に、XeF、XeCl、KrF、ArF、F₂のガスレーザは、波長が351nm、308nm、248nm、193nm、157nmと短く、非常に小さなスポットサイズに集光することができるため好ましい。

[0230] また、加工ヘッド部403に用いるレーザとして、Nd:YAGレーザの2倍波、3倍波、4倍波を用いることができる。Nd:YAGレーザの2倍波、3倍波、4倍波の波長は、それぞれ532nm、355nm、266nmであり、小さなスポットサイズを得ることができる。

[0231] ロール状部材401の表面に設けられたレジスト層に微細パターンを露光により形成する場合、ロール状部材401の回転位置精度が非常に高く、初めに焦点深度内に部材表面があるようにレーザの光学系を調整しておけば製造は容易である。しかしながら、ナノインプリントに適合するほどのロール寸法精度、回転精度を保持することは非常に困難である。そのため、露光に用いるレーザは対物レンズにより収束されロール状部材401表面が焦点深度の中に絶えず、存在するようにオートフォーカスがかけられていることが好ましい。

[0232] 回転制御部402は、ロール状部材401をロールの中心を軸に回転させる機能を有する装置であれば特に制限されるものではなく、例えば、スピン

トルモーター等が好適である。

[0233] 加工ヘッド部403をロール状部材401の長軸方向に移動させる移動機構部404としては、制御された速度で加工ヘッド部403を移動できれば特に制限されるものではなく、リニアサーボモーター等が好適に挙げられる。

[0234] 図23に示す露光装置400では、ロール状部材401の表面上に形成される露光パターンが回転制御部402の回転（例えば、スピンドルモーターの回転）と同期した基準信号に基づいて、位相変調させたパルス信号により露光制御部405で露光部の位置を制御している。基準信号としては、スピンドルモーターの回転に同期したエンコーダーからの出力パルスを用いることができる。

[0235] 回転と同期した基準信号に基づいて位相変調させたパルス信号は、例えば、次のように制御することができる。

[0236] 図24A～24Cを用いて、スピンドルモーターのZ相信号と、基準パルス信号、変調パルス信号との関係を説明する。Z相信号を基準とし、その m 倍（ $m > 2$ の整数）の周波数のパルス信号が基準パルス信号であり、 n 倍（ $m/n > k$ かつ $k > 1$ の整数）の周波数のパルス信号が変調パルス信号となる。基準パルス信号、変調パルス信号のいずれも、Z相信号の周波数の整数倍であるために、ロール状部材401が中心軸周りに1回転する時間内に整数のパルス信号が存在することになる。

[0237] 続いて、図25を用いて、基準パルス信号と変調パルス信号、位相変調パルス信号との関係を説明する。基準パルス信号の位相を変調パルス信号の波長で周期的に増減させると、位相変調パルス信号となる。例えば、基準パルス周波数 f_{Y0} を次の式(8)で表わし、変調周波数 f_{YL} を次の式(9)で表わすと、周波数変調させた変調パルス信号 f_Y は次の式(10)で表えられる。

$$f_{Y0} = A \sin(\omega_0 t + \phi_0) \quad (8)$$

$$f_{YL} = B \sin(\omega_1 t + \phi_1) \quad (9)$$

$$f_Y = A \sin(\omega_O t + \theta_O + C \sin(\omega_1 t)) \quad (10)$$

[0238] また、次の式 (11) で表わすように、基準パルス周波数 f_{YO} に、変調パルス信号から得られるサイン波を加算することでも位相変調パルス信号 $f_{Y'}$ を得ることができる。

$$f_{Y'} = f_{YO} + C' \sin(t - t_{YL} / f_{YO} \times 2\pi) \quad (11)$$

[0239] さらに、基準パルスのパルス波長 L_{YO} に、変調パルス信号の波長 L_Y から得られるサイン波を加算することで、位相変調パルス信号の波長 L_Y を得ることができる。

[0240] 図25に示すように、得られる位相変調パルス信号は、変調パルス信号の信号間隔に応じて、基準パルス信号のパルス間隔が周期的に増減した信号となる。

[0241] また、露光装置400においては、位相変調したパルス信号によらず、一定周波数の基準パルス信号を用いて加工ヘッド部403によるレーザ露光のパルス信号を制御し、移動機構部404による加工ヘッド部403の移動速度を周期的に増減させる構成としてもよい。この場合には、例えば、図26に示すように、加工ヘッド部403の移動速度を周期的に増減する。図26に図示した移動速度は、基準移動速度 $\pm \sigma$ の移動速度の例である。この移動速度は、ロール状部材401の回転と同期させることが好ましく、例えば、Z相信号における速度が図26に示す速度となるように制御する。

[0242] 以上は、パターン406が周期的な位相変調で制御された場合であるが、周期的でなくランダムな位相変調によってパターン406を形成することもできる。例えばD1方向においては、ピッチ P_y は、パルス周波数に反比例するので、パルス周波数に、最大位相ずれが $1/10$ になるようにランダム周波数変調を行うと、ピッチ P_y は、ピッチ P_y の $1/10$ の最大変動幅 $\delta 1$ を有し、ランダムにピッチ P_y が増減したパターンを得ることができる。

[0243] 回転と同期した基準信号の制御頻度については、ロール1周毎等複数回以上の頻度による基準信号により、変調パルス信号を制御してもよく、露光初

期に設定した初期の基準信号のみで制御してもよい。初期の基準信号のみで制御する場合、回転制御部402の回転数に変調が生じた場合、露光パルス信号に位相変調が生じることとなる。なんとなれば、ナノオーダーの回転制御であるため、回転制御部402のわずかな電位変動でも、ナノオーダーのピッチ変動が生じ、それが積算されるためである。仮に500nmピッチのパターンピッチの場合、ロール外周長が250mmであると、50万回のレーザ露光となり、1万回毎に1nmのずれでも、50nmのずれとなる。

[0244] 同じピッチ、同じ長周期でも、基準信号の制御頻度の調整により、図9および図11に示す配置の微細構造を作成することが可能となる。図9に示す配置の微細構造を形成する場合は、基準信号の制御頻度を下げており、図11に示す配置の微細構造を形成する場合は基準信号の制御頻度を上げている。そのため、図11に示す配置においては、該当するドットの第2方向の位相（位置）が揃っており、図9に示す配置においては、該当するドットの第2方向の位相（位置）にずれが生じる。図10および図12に示す配置の関係も同様である。

[0245] さらに、同様の理由により、第1方向のピッチ P_y 、第2方向のピッチ P_x が、各々等ピッチであっても、図18に示す第2の実施の形態に係る光学用基材60のように、D2方向において隣接する第1ドット列62-1及び第2ドット列62-2との間のD1方向におけるシフト量 α_1 と、第2ドット列62-2及びこの第2ドット列62-2に隣接する第3ドット列62-3との間のシフト量 α_2 とが、互いに異なるように設けられ、シフト量 α_1 とシフト量 α_2 の差分は一定でない。

[0246] この構成により、基材本体の主面内における斜め方向の複数のドット61間のピッチ P_1 〜ピッチ P_3 が不規則となり、繰り返しパターンの周期性が低減されるので、凹凸構造による光散乱性がより強まる。

[0247] 露光装置400により、表面に設けられたレジスト層が露光されたロール状部材401を現像し、現像したレジスト層をマスクとして、ドライエッチングによりエッチング層をエッチングする。エッチング後、残渣のレジスト

層を除去すると、ロールツーロールナノインプリントモールドを得ることができる。

[0248] 上記のように得られたパターン406を、所定の基材に転写し、本実施の形態に係る光学用基材を得る方法としては特に限定されるものではなく、例えば、ナノインプリントリソグラフィ法により所定の基材表面にパターンを転写し、転写パターン部分をマスクとして、ドライエッチングにより基材をエッチングすることでパターン406を基材に転写することができる。具体的には、パターン406を形成したロール状部材401を円筒型モールド（ロールツーロールナノインプリントモールド）として用いる。基材の表面側に有機材料からなるレジスト層を形成し、このレジスト層に円筒型モールドを押し付けて、パターン406をレジスト層に転写した後、レジスト層および基材を表面側からエッチングすることで基材の表面側に微細凹凸構造を形成し、本発明の光学用基材とすることができる。

[0249] また、円筒型モールド（ロール状部材401）からパターン406を直接基材に転写するのではなく、パターン406を一度フィルムに転写し、樹脂モールドを形成してから、この樹脂モールドによるナノインプリントリソグラフィ法により基材上にパターンを形成し、本実施の形態に係る光学用基材を得る方法も挙げられる。この方法によれば、モールドの利用効率を高めて、基材の平坦性を吸収できるため、パターンを基材に転写する方法としては、樹脂モールドによるナノインプリントリソグラフィ法がより好ましい。

[0250] 円筒型モールドから樹脂モールドにパターン406を転写する方法としては、特に限定されるものではなく、例えば、直接ナノインプリント法が適用できる。直接ナノインプリント法としては、所定温度で加熱しながら円筒型モールドのパターン406に熱硬化性樹脂を充填し、円筒型モールドを冷却してから硬化した熱硬化性樹脂を離型して転写する熱ナノインプリント法や、円筒型モールドのパターン406に充填した光硬化性樹脂に所定の波長の光を照射し、光硬化性樹脂を硬化させてから、円筒型モールドから硬化した光硬化性樹脂を離型して転写する光ナノインプリント法が挙げられる。

[0251] 円筒型モールド（ロール状部材 401）は、シームレスの円筒状モールドであるため、特に、ロールツーロールナノインプリントにより樹脂モールドを連続転写することに好適である。

[0252] また、パターン 406 を転写した樹脂モールドから電鋳により電鋳モールドを作成し、この電鋳モールドによりナノインプリントリソグラフィ法によりパターンを形成する方法も挙げられる。電鋳モールドを形成した場合は、元型となる円筒型モールドの寿命を延ばす点で好ましく、電鋳モールドを一度形成する方式においても、基材の平坦性を吸収できるため、さらに樹脂モールドを形成する方法が好ましい。

[0253] さらに、樹脂モールド法においては、繰り返し転写が容易であるため好ましい。ここでの「繰り返し転写」とは、（１）凸凹パターン形状を有する樹脂モールド（＋）から、転写反転した凹凸パターン転写物を複数製造すること、または、（２）特に硬化性樹脂組成物を転写剤として用いる場合において、樹脂モールド（＋）から反転した転写体（－）を得て、次に転写体（－）を樹脂モールド（－）として、反転転写した転写体（＋）を得て、凸凹/凹凸/凸凹/凹凸/・・・/を繰り返しパターン反転転写することのいずれか一方、あるいは両方を意味する。

[0254] 以上のように得られたパターン 406 を、基材に転写することで、本実施の形態に係る光学用基材 1（1a）を得ることができる。転写方法としては特に限定されるものではなく、例えば、ナノインプリントリソグラフィ法により基材表面に樹脂によりパターンを転写し、転写パターン部分をマスクとして、ドライエッチングにより基材をエッチングし、パターン 406 を具備した光学用基材 1（1a）を得る方法や、ナノインプリント法により基材表面にパターン 406 の反転構造を転写する方法等が挙げられる。

[0255] （平板状光学用基材 1（1a））

< 方法（１） >

円筒状モールドから上記したいずれかの方法で、平板状モールドを作製する。続いて、平板状モールドを金型とし、微細構造層 12（12a）の原料

へとパターン406を転写することで、平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0256] 例えば、光硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程(11)～(14)により、平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0257] (11) 平板状モールドのパターン406上に光硬化性樹脂をキャストやスピコート法、インクジェット法等の方法により配置する。あるいは、ガラス板やガラスフィルムといった無機基材や、透明耐熱性樹脂(透明ポリイミド等)上に光硬化性樹脂をキャストやスピコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(12) 基材と、平板状モールドとで、前記光硬化性樹脂を挟持する。

(13) 平板状モールド側あるいは、基材の少なくとも一方から光を照射し、光硬化性樹脂を硬化させる。

(14) 基材と平板状モールドを剥離する。

[0258] なお、工程(11)の前に、平板状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程(12)で使用する基材は、光硬化性樹脂との密着性を向上させるために、光硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング(シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。さらに工程(13)における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。得られた光学用基材1(1a)のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0259] PDMSに代表される熱硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程(21)～(24)により平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0260] (21) 平板状モールドのパターン406上に熱硬化性樹脂をキャストやスピコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(22) 熱硬化性樹脂を均質にレベリングする。

(23) 加熱環境にて溶剤を除去するとともに、熱硬化性樹脂を硬化させる。

(24) 熱硬化性樹脂と平板状モールドを剥離する。

[0261] なお、工程 (21) の前に、平板状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、得られた光学用基材1(1a)を、他の基材上に貼りあわせてもよい。得られた光学用基材1(1a)のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0262] 熱可塑性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (31) ~ (34) により平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0263] (31) 平板状モールドと押圧板との間に熱可塑性樹脂を挟持させる。

(32) 熱可塑性樹脂のT_g以上の温度にて圧力を加える。

(33) T_gより低い温度まで冷却する。

(34) 熱可塑性樹脂と平板状モールドとを剥離する。

[0264] なお、工程 (31) の前に、平板状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程 (31) の時点で平板状モールドあるいは押圧板の少なくともいずれか一方を加熱しておいてもよい。また工程 (32) の加熱は、平板状モールドあるいは押圧板の少なくとも一方から加熱すればよく、少なくとも平板状モールド側を加熱することが好ましい。また、得られた光学用基材1(1a)を、他の基材上に貼りあわせてもよい。得られた光学用基材1(1a)のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0265] 金属アルコキシドに代表される無機前駆体を使用する場合は、以下の工程 (41) ~ (45) により平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0266] (41) 平板状モールドのパターン406上に無機前駆体をキャストやスピコート法、インクジェット法等の方法により配置する。あるいは、PDMSや樹脂から成る基材上に無機前駆体をキャストやスピコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(42) 無機前駆体の縮合を促進する。

(43) 基材と、平板状モールドとで、前記無機前駆体を挟持する。

(44) 縮合をより促進させ無機前駆体を硬化させる。

(45) 基材と平板状モールドを剥離する。

[0267] なお、工程 (41) のPDMSや樹脂から成る基材への塗工を行わず、工程 (43) を省き、工程 (45) において無機前駆体の硬化物と平板状モールドを剥離することでも、平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0268] なお、工程 (41) の前に、平板状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程 (41) で使用する基材は、無機前駆体との密着性を向上させるために、無機前駆体との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0269] < 方法 (2) >

円筒状モールドから、平板状モールドを作製する。続いて、平板状モールドを金型とし、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、無機前駆体、あるいは熱可塑性樹脂へとパターン406を転写し、残膜処理を行い、得られたパターンをマスクとして、基材を加工することで、平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0270] 例えば、光硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (51) ~ (56) により平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0271] (51) 平板状モールドのパターン406上に光硬化性樹脂をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。あるいは、ガラス板やガラスフィルムといった無機基材や、透明耐熱性樹脂 (透明ポリイミド等) 上に光硬化性樹脂をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(52) 基材と平板状モールドとで、前記光硬化性樹脂を挟持し、押圧する。

(53) 平板状モールド側あるいは、基材の少なくとも一方から光を照射し

、光硬化性樹脂を硬化させる。

(54) 基材と平板状モールドを剥離する。

(55) 基材上に転写形成されたパターンの残膜を除去する。

(56) 得られたパターンをマスクとして、基材をエッチングする。

[0272] なお、工程 (51) の前に、平板状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程 (52) で使用する基材は、光硬化性樹脂との密着性を向上させるために、光硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。

[0273] さらに工程 (53) における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。また工程 (55) の残膜処理はドライエッチングで行ってもウエットエッチングで行ってもよいが、アンダーカットを抑制する観点からドライエッチングであると好ましい。さらに工程 (56) の後に、光硬化性樹脂残渣を除去するエッチング工程を加えてもよい。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0274] また、類似の方法にて、熱硬化性樹脂や無機前駆体を転写材に使用し、本実施の形態に係る回折後記基材を得ることもできる。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0275] < 方法 (3) >

円筒状モールドから、平板状モールドを作製する。続いて、平板状モールドを金型とし、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、無機前駆体、あるいは熱可塑性樹脂へとパターン406を転写し、パターン406と反転した構造を具備するモールド (G1) を得る。得られたモールド (G1) をテンプレートとし、微細構造層 12 (12a) の原料へと再度パターンを転写するか、Niに代表される電鍍により、平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0276] モールド (G1) は、方法 (1) で得られた光学用基材 1 (1a) を使用

することができる。

[0277] 例えば、光硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (6 1) ~ (6 4) により平板状の光学用基材 1 (1 a) を得ることができる。

[0278] (6 1) モールド (G 1) のパターン 4 0 6 上に光硬化性樹脂をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。あるいは、ガラス板やガラスフィルムといった無機基材や、透明耐熱性樹脂 (透明ポリイミド等) 上に光硬化性樹脂をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(6 2) 基材とモールド (G 1) とで、前記光硬化性樹脂を挟持する。

(6 3) モールド (G 1) 側あるいは、基材の少なくとも一方から光を照射し、光硬化性樹脂を硬化させる。

(6 4) 基材とモールド (G 1) を剥離する。

[0279] 工程 (6 1) の前に、モールド (G 1) のパターン 4 0 6 面を離型処理すると好ましい。あるいは、モールド (G 1) のパターンを構成する材料を、フッ素含有樹脂、メチル基を含む樹脂、PDMS に代表されるシリコーン、あるいはこれらを組み合わせた材料で構成することが好ましい。さらに、離型処理を行う前に、モールド (G 1) のパターン面上に金属、金属酸化物、あるいは金属と金属酸化物から成る層を形成してもよい。

[0280] また、工程 (6 2) で使用する基材は、光硬化性樹脂との密着性を向上させるために、光硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。さらに工程 (6 3) における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。

[0281] 工程 (6 1) で使用する基材として屈曲性の低い無機基材を使用する場合は、モールド (G 1) は屈曲性を有す構成のものが好ましく、工程 (6 1) で使用する基材として屈曲性の高いフィルム基材を使用する場合は、モールド (G 1) は屈曲性の低い構成のものも、屈曲性の高いものも使用すること

ができる。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0282] PDMS に代表される熱硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (71) ~ (74) により平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0283] (71) モールド (G1) のパターン 33 上に熱硬化性樹脂をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(72) 熱硬化性樹脂を均質にレベルリングする。

(73) 加熱環境にて溶剤を除去するとともに、熱硬化性樹脂を硬化させる。

(74) 熱硬化性樹脂とモールド (G1) を剥離する。

[0284] なお、工程 (71) の前に、モールド (G1) のパターン 406 面を離型処理すると好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) を、他の基材上に貼りあわせてもよい。モールド (G1) としては、熱硬化温度にて変質しない構成をとるモールドを選定することが好ましい。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0285] 熱可塑性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (81) ~ (84) により平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0286] (81) モールド (G1) と押圧板と、の間に熱可塑性樹脂を挟持させる。

(82) 熱可塑性樹脂の T_g 以上の温度にて圧力を加える。

(83) T_g より低い温度まで冷却する。

(84) 熱可塑性樹脂とモールド (G1) とを剥離する。

[0287] 工程 (81) の前に、モールド (G1) のパターン 406 面を離型処理すると好ましい。また、工程 (81) の時点でモールド (G1) あるいは押圧板の少なくともいずれか一方を加熱しておいてもよい。また工程 (82) の加熱は、モールド (G1) あるいは押圧板の少なくとも一方から加熱すればよく、少なくともモールド (G1) 側を加熱することが好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) を、他の基材上に貼りあわせてもよい。モールド (G1) としては、工程 (82) で使用する加熱温度において変質しない

構成をとるモールドを選定することが好ましい。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0288] 金属アルコキシドに代表される無機前駆体を使用する場合は、以下の工程 (91) ~ (95) により平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0289] (91) モールド (G1) のパターン406上に無機前駆体をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。あるいは、PDMSや樹脂から成る基材上に無機前駆体をキャストやスピンコート法、インクジェット法等の方法により配置する。

(92) 無機前駆体の縮合を促進する。

(93) 基材とモールド (G1) とで、前記無機前駆体を挟持する。

(94) 縮合をより促進させ無機前駆体を硬化させる。

(95) 基材とモールド (G1) を剥離する。

[0290] 工程 (91) のPDMSや樹脂から成る基材への塗工を行わず、工程 (93) を省き、工程 (95) において無機前駆体の硬化物とモールド (G1) を剥離することでも、平板状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0291] 工程 (91) の前に、モールド (G1) のパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程 (91) で使用する基材は、無機前駆体との密着性を向上させるために、無機前駆体との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。

[0292] また、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、あるいは無機前駆体を使用し得られた光学用基材 1 (1a) に対し、(2) と同様に残膜処理を行い、続いて基材をドライエッチングにて加工することでも、光学用基材 1 (1a) を得ることができる。得られた光学用基材 1 (1a) のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0293] < 方法 (4) >

円筒状モールドから、平板状モールドを作製する。続いて、平板状モールドを金型とし、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、無機前駆体、あるいは熱可塑性樹脂へとパターン406を転写し、パターン406と反転した構造を具備するモールド(G1)を得る。得られたモールド(G1)をテンプレートとし、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、無機前駆体、あるいは熱可塑性樹脂へと再度パターンを転写するか、Niに代表される電鍍によりパターン406と同様の構造を具備するモールド(G2)を得る。得られたモールド(G2)をテンプレートとし、微細構造層12(12a)の原料へと再度パターンを転写するか、Niに代表される電鍍により、平板状の光学用基材1(1a)を得ることができる。

[0294] モールド(G1)は、方法(3)で得ることができる。また、モールド(G2)は、方法(3)で得られた光学用基材1(1a)を使用することができる。平板状の光学用基材1(1a)は、方法(3)において、モールド(G1)をモールド(G2)と読み替えることで、作製することができる。

[0295] なお、モールド(G1)のパターンが光硬化性樹脂(G1)から構成されており、かつ、モールド(G2)のパターンも光硬化性樹脂(G2)から構成される場合は、光硬化性樹脂(G1, G2)共に、フッ素含有光硬化性樹脂であると好ましい。フッ素含有光硬化性樹脂であることにより、光硬化性樹脂(G1)のパターン部表面へとフッ素成分を偏析させることができる。これにより、モールド(G1)は、パターン部の離型性を具備し、かつ、基材との密着性も担保することができるため、良好にモールド(G2)を得ることができる。このようなモールド(G1)あるいはモールド(G2)は、表面部のフッ素元素濃度(Es)が、パターンを構成する樹脂中の平均フッ素元素濃度(Eb)よりも大きいと好ましい。

[0296] モールド(G1)あるいは／およびモールド(G2)を構成する樹脂層中の平均フッ素元素濃度(Eb)とモールド(G1)あるいは／およびモールド(G2)を構成する樹脂層の微細パターン表面部のフッ素元素濃度(Es)との比(E_s / E_b)が $1 < E_s / E_b \leq 30000$ を満たすことで、上

記効果をより発揮するためより好ましい。特に、 $3 \leq E_s / E_b \leq 1500$ 、 $10 \leq E_s / E_b \leq 100$ の範囲となるにしたがって、より離型性が向上するため好ましい。

[0297] なお、上記する最も広い範囲 ($1 < E_s / E_b \leq 30000$) の中にあって、 $20 \leq E_s / E_b \leq 200$ の範囲であれば、モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層表面部のフッ素元素濃度 (E_s) が、樹脂層中の平均フッ素濃度 (E_b) より十分高くなり、モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) 表面の自由エネルギーが効果的に減少するので、転写材樹脂や、光学用基材を構成する材料との離型性が向上する。また、モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層中の平均フッ素元素濃度 (E_b) をモールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層表面部のフッ素元素濃度 (E_s) に対して相対的に低くすることにより、樹脂自体の強度が向上するとともに、基材付近では、自由エネルギーを高く保つことができるので、基材との密着性が向上する。

[0298] これにより、基材との密着性に優れ、転写材料や光学用基材 1 (1 a) を構成する材料との離型性に優れ、しかも、ナノメートルサイズの凹凸形状を樹脂から樹脂へ繰り返し転写できるモールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を得ることができるので特に好ましい。また、 $26 \leq E_s / E_b \leq 189$ の範囲であれば、モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層表面の自由エネルギーをより低くすることができ、繰り返し転写性が良好になるため好ましい。さらに、 $30 \leq E_s / E_b \leq 160$ の範囲であれば、モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層表面の自由エネルギーを減少させるとともに、樹脂の強度を維持することができ、繰り返し転写性がより向上するため好ましく、 $31 \leq E_s / E_b \leq 155$ であればより好ましい。 $46 \leq E_s / E_b \leq 155$ であれば、上記効果をより一層発現できるため好ましい。

[0299] モールド (G 1) あるいは / およびモールド (G 2) を構成する樹脂層の

パターン面側領域とは、例えば、モールド (G 1) あるいは/ およびモールド (G 2) を構成する樹脂層のパターン面側表面から、基材側に向かって、略 1 ~ 10 % 厚み方向に侵入した部分、または厚み方向に 2 nm ~ 20 nm 侵入した部分を意味する。

[0300] なお、モールド (G 1) あるいは/ およびモールド (G 2) を構成する樹脂層のパターン面側領域のフッ素元素濃度 (E_s) は、XPS法により定量できる。XPS法のX線の浸入長は数 nm と浅いため、 E_s 値を定量する上で適している。他の解析方法として、透過型電子顕微鏡を使ったエネルギー分散型X線分光法 (TEM—EDX) を用い、 E_s / E_b を算出することもできる。

[0301] また、モールド (G 1) あるいは/ およびモールド (G 2) を構成する樹脂層を構成する樹脂中の平均フッ素濃度 (E_b) は、仕込み量から計算することができる。または、ガスクロマトグラフ質量分析計 (GC/MS) で測定することができる。例えば、モールド (G 1) あるいは/ およびモールド (G 2) を構成する樹脂層を物理的に剥離してガスクロマトグラフ質量分析にかけることで、平均フッ素元素濃度を同定することができる。一方、モールド (G 1) あるいは/ およびモールド (G 2) を構成する樹脂層を物理的に剥離した切片を、フラスコ燃焼法にて分解し、続いてイオンクロマトグラフ分析にかけることでも、樹脂中の平均フッ素元素濃度 (E_b) を同定することができる。

[0302] < 方法 (5) >

方法 (4) により得られたモールド (G 2) から、さらにモールド (G 3) を作製するとともに、方法 (3) において、モールド (G 1) をモールド (G 3) と読み替えることで、平板状の光学用基材 1 (1a) を作製することができる。同様に、モールド (G N) からモールド (G N + 1) を作製するとともに、方法 (3) において、モールド (G 1) をモールド (G N + 1) と読み替えることで、光学用基材 1 (1a) を作製することができる。

[0303] (フィルム状、リール状光学用基材 1 (1a))

< 方法 (6) >

上記方法により作製した円筒状モールドをテンプレートとして用い、微細構造層 12 (12a) の原料へとパターン 406 を転写することで、リール状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。円筒状モールドをテンプレートにすることで、ロールツーロールによる連続プロセスにより、光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0304] 例えば、光硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (101) ~ (104) によりリール状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0305] (101) PET フィルム、TAC フィルム、ガラスフィルム、透明ポリイミドといったフィルム基材上に光硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター、スリットコート、インクジェット等の方法により塗工する。

(102) 続いて、フィルム基材と、円筒状モールドとで、前記光硬化性樹脂を挟持する。

(103) その後、円筒状モールド側あるいは、基材の少なくとも一方から光を照射し、光硬化性樹脂を硬化させる。

(104) 最後に、基材と円筒状モールドを剥離する。

[0306] 工程 (101) の前に、円筒状モールドのパターン 406 面を離型処理すると好ましい。また、光硬化性樹脂の塗工は、グラビアコーター法やマイクログラビアコーター法の他にも、プレードコーター、ワイヤーバーコーター、エアナイフコーター、ディップコーター、コンマナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーター等を採用することができる。

[0307] 工程 (102) で使用するフィルム基材は、光硬化性樹脂との密着性を向上させるために、光硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。また、光硬化性樹脂を挟持する際は、フィルム基材の光硬化性樹脂が塗布されている側とは、反対側の面

からニップロールにて加圧すると好ましい。

[0308] 工程 (103) における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

[0309] PDMS に代表される熱硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (111) ~ (114) によりリール状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0310] (111) 熱硬化性樹脂の硬化温度より高い T_g を持つフィルム基材上に、熱硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター、インクジェット、スリットコート等の方法により塗工する。

(112) 続いて、加熱環境にて溶剤を除去する。

(113) その後、熱硬化性樹脂を、円筒状金型のパターン面に押圧し、加熱する。

(114) 最後に、熱硬化性樹脂と円筒状モールドから剥離する。

[0311] 工程 (111) の前に、円筒状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、熱硬化性樹脂の塗工は、グラビアコーター法マイクログラビアコーター法の他にも、ブレードコーター、ワイヤーバーコーター、エアナイフコーター、ディップコーター、コンマナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーター等を採用することができる。

[0312] 工程 (111) で使用するフィルム基材は、熱硬化性樹脂の硬化温度より高い T_g を有することが好ましい。また、熱硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。また、熱硬化性樹脂を挟持する際は、フィルム基材の熱硬化性樹脂が塗布されている側とは、反対側の面からニップロールにて加圧すると好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

- [031 3] 熱可塑性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (121) ~ (124) によりリール状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。
- [0314] (121) 円筒状モールドと押圧ロールと、の間に熱可塑性樹脂から成るフィルム基材を挟持させる。
- (122) 続いて、熱可塑性樹脂の T_g 以上の温度にて圧力を加える。
- (123) その後、 T_g より低い温度まで冷却する。
- (124) 最後に、熱可塑性樹脂フィルムと円筒状モールドとを剥離する。
- [031 5] 工程 (121) の前に、円筒状モールドのパターン406面を離型処理すると好ましい。また、工程 (121) の時点で円筒状モールドあるいは押圧ロールの少なくともいずれか一方を加熱しておいてもよい。
- [031 6] 工程 (122) の加熱は、円筒状モールドあるいは押圧ロールの少なくとも一方から加熱すればよく、少なくとも円筒状モールド側を加熱することが好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) を、他の基材上に貼りあわせてもよい。
- [031 7] 金属アルコキシドに代表される無機前駆体を使用する場合は、無機前駆体と、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、あるいは光硬化性樹脂と熱硬化性樹脂を混合した転写材を使用すると好ましい。光学用基材 1 (1a) は、上記光硬化性樹脂を用いた場合、あるいは熱硬化性樹脂を用いた場合の方法を適用することで、得ることができる。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。
- [031 8] なお、連続プロセスにて製造した光学用基材 1 (1a) を、(1) ~ (5) の平板状の光学用基材 1 (1a) を得るためのモールドとして使用することができる。連続プロセスにて得られた光学用基材 1 (1a) を切断することで、平板状の光学用基材 1 (1a) を製造する (1) ~ (5) のモールドとして使用可能となる。
- [031 9] < 方法 (7) >
- 円筒状モールドから方法 (6) を用い、パターン406と反転した構造を具備するリール状のモールド (G1) を得る。得られたモールド (G1) を

テンプレートとし、微細構造層 12 (12a) の原料へと再度パターンを転写することで、連続プロセスにてリール状の光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0320] モールド (G 1) として、方法 (6) で得られた光学用基材 1 (1a) を使用することができる。

[0321] 例えば、光硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (131) ~ (134) により、フィルムツーフイルムの連続プロセスにて光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0322] (131) モールド (G 1) のパターン 406 上に光硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター等の方法により配置する。あるいは、ガラスフィルムや PET フィルム、TAC フィルムといったフィルム状の基材上に光硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター等の方法により配置する。

(132) 続いて、基材と、モールド (G 1) とで、前記光硬化性樹脂を挟持する。

(133) その後、モールド (G 1) 側あるいは、基材の少なくとも一方から光を照射し、光硬化性樹脂を硬化させる。

(134) 最後に、基材とモールド (G 1) を剥離する。

[0323] 工程 (131) の前に、モールド (G 1) のパターン 406 面を離型処理すると好ましい。あるいは、モールド (G 1) のパターンを構成する材料を、フッ素含有樹脂、メチル基を含む樹脂、PDMS に代表されるシリコーン、あるいはこれらを組み合わせた材料で構成することが好ましい。さらに、離型処理を行う前に、モールド (G 1) のパターン面上に金属、金属酸化物、あるいは金属と金属酸化物から成る層を形成してもよい。また、光硬化性樹脂の塗工は、グラビアコーター法やマイクログラビアコーター法の他にも、プレードコーター、ワイヤーバーコーター、エアナイフコーター、ディップコーター、コンマナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーター等を採用することができる。

- [0324] 工程 (132) で使用する基材は、光硬化性樹脂との密着性を向上させるために、光硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/ オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。
- [0325] 工程 (133) における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。また、光硬化性樹脂を挟持する際は、フィルム基材の光硬化性樹脂が塗布されている側とは、反対側の面からニップロールにて加圧すると好ましい。また、工程 (133) における光照射は、低酸素環境下で行ってもよい。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。
- [0326] PDMS に代表される熱硬化性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (141) ~ (144) により、フィルムツーフイルムの連続プロセスにて光学用基材 1 (1a) を得ることができる。
- [0327] (141) モールド (G1) のパターン406上に熱硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター等の方法により塗工するか、あるいは、フィルム基材上に熱硬化性樹脂をグラビアコーター、マイクログラビアコーター等の方法により塗工する。
- (142) 続いて、加熱環境にて溶剤を除去する。
- (143) その後、熱硬化性樹脂を、モールド (G1) のパターン面に押圧し、加熱する。
- (144) 最後に、熱硬化性樹脂とモールド (G1) から剥離する。
- [0328] モールド (G1) およびフィルム基材は、熱硬化性樹脂の硬化温度より高いT_gを有すると好ましい。また、工程 (141) の前に、モールド (G1) のパターン406面を離型処理すると好ましい。あるいは、モールド (G1) のパターンを構成する材料を、フッ素含有樹脂、メチル基を含む樹脂、PDMS に代表されるシリコン、あるいはこれらを組み合わせた材料で構成することが好ましい。さらに、離型処理を行う前に、モールド (G1) の

パターン面上に金属、金属酸化物、あるいは金属と金属酸化物から成る層を形成してもよい。

[0329] 熱硬化性樹脂の塗工は、グラビアコーター法、マイクログラビアコーター法の他にも、プレードコーター、ワイヤーバーコーター、エアナイフコーター、ディップコーター、コンマナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーター等を採用することができる。

[0330] 工程 (141) で使用するフィルム基材は、熱硬化性樹脂の硬化温度より高い T_g を有することが好ましい。また、熱硬化性樹脂との化学結合や、浸透等の物理的結合のための易接着コーティング (シランカップリング処理等)、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、UV/オゾン処理、高エネルギー線照射処理、表面粗化処理、多孔質化処理等を施してもよい。また、熱硬化性樹脂を挟持する際は、フィルム基材の熱硬化性樹脂が塗布されている側とは、反対側の面からニップロールにて加圧すると好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

[0331] 熱可塑性樹脂を使用する場合は、以下の工程 (151) ~ (154) により、フィルムツーフイルムの連続プロセスにて光学用基材 1 (1a) を得ることができる。

[0332] (151) モールド (G1) と押圧ロールと、の間に熱可塑性樹脂から成るフィルム基材を挟持させる。

(152) 続いて、熱可塑性樹脂の T_g 以上の温度にて圧力を加える。

(153) その後、 T_g 以下の温度まで冷却する。

(154) 最後に、熱可塑性樹脂フィルムとモールド (G1) とを剥離する。

[0333] モールド (G1) は、熱可塑性樹脂の T_g より高い T_g を有することが好ましい。また、工程 (151) の前に、モールド (G1) のパターン面を離型処理すると好ましい。あるいは、モールド (G1) のパターンを構成する材料を、フッ素含有樹脂、メチル基を含む樹脂、PDMS に代表され

るシリコン、あるいはこれらを組み合わせた材料で構成することが好ましい。さらに、離型処理を行う前に、モールド (G 1) のパターン面上に金属、金属酸化物、あるいは金属と金属酸化物から成る層を形成してもよい。

[0334] 工程 (151) の時点でモールド (G 1) あるいは押圧ロールの少なくともいずれか一方を加熱しておいてもよい。また、工程 (152) の加熱は、モールド (G 1) あるいは押圧ロールの少なくとも一方から加熱すればよく、少なくともモールド (G 1) 側を加熱することが好ましい。また、得られた光学用基材 1 (1a) を、他の基材上に貼りあわせてもよい。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

[0335] 金属アルコキシドに代表される無機前駆体を使用する場合は、無機前駆体と、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂、あるいは光硬化性樹脂と熱硬化性樹脂を混合した転写材を使用すると好ましい。光学用基材 1 (1a) は、上記光硬化性樹脂を用いた場合、あるいは熱硬化性樹脂を用いた場合の方法を適用することで、得ることができる。また、得られた光学用基材 1 (1a) はカバーフィルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

[0336] なお、連続プロセスにて製造した光学用基材 1 (1a) を、(1) ~ (5) の平板状の光学用基材 1 (1a) を得るためのモールドとして使用することができる。連続プロセスにて得られた光学用基材 1 (1a) を切断することで、平板状の光学用基材 1 (1a) を製造する (1) ~ (5) のモールドとして使用可能となる。

[0337] また、得られたリール状の光学用基材 1 (1a) をモールド (G 2) として見立て、上記説明したモールド (G 1) をモールド (G 2) に置き換えることで、さらにロールツーロールによる連続プロセスにて光学用基材 1 (1a) を得ることができる。ここで得られた光学用基材 1 (1a) (G 3) を上記説明したモールド (G 1) と見立てることで、光学用基材 1 (1a) を得ることができる。同様にモールド (G N) からモールド (G N + 1) を作製し、モールド (G N + 1) を上記説明したモールド (G 1) に見立てる

ことで、光学用基材 1 (1 a) を得ることができる。

[0338] なお、モールド (G N) のパターンが光硬化性樹脂 (G N) から構成されており、かつ、モールド (G N + 1) のパターンも光硬化性樹脂 (G N + 1) から構成される場合は、光硬化性樹脂 (G N , G N + 1) 共に、フッ素含有光硬化性樹脂であると好ましい。フッ素含有光硬化性樹脂であることにより、光硬化性樹脂 (G N) のパターン部表面へとフッ素成分を偏析させることができる。これにより、モールド (G N) は、パターン部の離型性を具備し、かつ、基材との密着性も担保することができるため、良好にモールド (G N + 1) を得ることができる。このようなモールド (G N) あるいはモールド (G N + 1) は、表面部のフッ素元素濃度 (E_s) が、パターンを構成する樹脂中の平均フッ素元素濃度 (E_b) よりも大きいと好ましい。

[0339] モールド (G N) あるいは/ およびモールド (G N + 1) を構成する樹脂層中の平均フッ素元素濃度 (E_b) とモールド (G N) あるいは/ およびモールド (N + 1) を構成する樹脂層の微細パターン表面部のフッ素元素濃度 (E_s) との比 (E_s / E_b) が $1 < E_s / E_b \leq 30000$ を満たすことで、上記効果をより発揮するためより好ましい。特に、 $3 \leq E_s / E_b \leq 1500$ 、 $10 \leq E_s / E_b \leq 100$ の範囲となるにしたがって、より離型性が向上するため好ましい。

[0340] なお、上記する最も広い範囲 ($1 < E_s / E_b \leq 30000$) の中にあって、 $20 \leq E_s / E_b \leq 200$ の範囲であれば、モールド (G N) あるいは/ およびモールド (G N + 1) を構成する樹脂層表面部のフッ素元素濃度 (E_s) が、樹脂層中の平均フッ素濃度 (E_b) より十分高くなり、モールド (G N) あるいは/ およびモールド (G N + 1) 表面の自由エネルギーが効果的に減少するので、転写材樹脂や、光学用基材 1 (1 a) を構成する材料との離型性が向上する。また、モールド (G N) あるいは/ およびモールド (G N + 1) を構成する樹脂層中の平均フッ素元素濃度 (E_b) をモールド (G N) あるいは/ およびモールド (G N + 1) を構成する樹脂層表面部のフッ素元素濃度 (E_s) に対して相対的に低くすることにより、樹脂自体の

強度が向上するとともに、基材付近では、自由エネルギーを高く保つことができるので、基材との密着性が向上する。これにより、基材との密着性に優れ、転写材料や光学用基材 1 (1a) を構成する材料との離型性に優れ、しかも、ナノメートルサイズの凹凸形状を樹脂から樹脂へ繰り返し転写できるモールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を得ることができるので特に好ましい。また、 $26 \leq E_s / E_b \leq 189$ の範囲であれば、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層表面の自由エネルギーをより低くすることができ、繰り返し転写性が良好になるため好ましい。さらに、 $30 \leq E_s / E_b \leq 160$ の範囲であれば、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層表面の自由エネルギーを減少させるとともに、樹脂の強度を維持することができ、繰り返し転写性がより向上するため好ましく、 $31 \leq E_s / E_b \leq 155$ であればより好ましい。 $46 \leq E_s / E_b \leq 155$ であれば、上記効果をより一層発現できるため好ましい。

[0341] モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層のパターン面側領域とは、例えば、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層のパターン面側表面から、基材側に向かって、略 1 ~ 10 % 厚み方向に侵入した部分、または厚み方向に 2 nm ~ 20 nm 侵入した部分を意味する。なお、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層のパターン面側領域のフッ素元素濃度 (E_s) は、XPS 法により定量できる。XPS 法の X 線の浸入長は数 nm と浅いため、 E_s 値を定量する上で適している。他の解析方法として、透過型電子顕微鏡を使ったエネルギー分散型 X 線分光法 (TEM-EDX) を用い、 E_s / E_b を算出することもできる。また、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂層を構成する樹脂中の平均フッ素濃度 (E_b) は、仕込み量から計算することができる。または、ガスクロマトグラフ質量分析計 (GC/MS) で測定することができる。例えば、モールド (GN) あるいは/ およびモールド (GN+1) を構成する樹脂

層を物理的に剥離してガスクロマトグラフ質量分析にかけることで、平均フッ素元素濃度を同定することができる。一方、モールド (GN) あるいは/およびモールド (GN + 1) を構成する樹脂層を物理的に剥離した切片を、フラスコ燃焼法にて分解し、続いてイオンクロマトグラフ分析にかけることでも、樹脂中の平均フッ素元素濃度 (Eb) を同定することができる。

[0342] < 方法 (8) >

円筒状モールドから方法 (6) または (7) により製造した光学用基材 1 (1a) のパターン406を、Niに代表される電鍍により転写成形する。得られたNi電鍍を円筒状に加工し、方法 (6) の円筒状モールドとして見立てることで、ロールツーロールプロセスにより光学用基材 1 (1a) を得ることができる。なお、Ni電鍍型を円筒状に加工せず、平板状で使用することで、方法 (1) ~ (5) の平板状の光学用基材 1 (1a) を得るためのモールドとして使用することができる。

[0343] (光学用基材 7 1)

つぎに図21に示す光学用基材 7 1 の製造方法について説明する。

< 方法 (9) >

方法 (1) ~ 方法 (8) にて得られた光学用基材 1 (1a) の微細凹凸構造面上に、透明誘電体層 7 2 を製膜することで光学用基材 7 1 を得ることができる。

[0344] 光学用基材 1 (1a) としてリール状の光学用基材 1 (1a) を使用する場合は、グラビアコーター、マイクログラビアコーター、プレードコーター、ワイヤーバーコーター、エアナイフコーター、ディップコーター、コンマナイフコーター、スプレーコーター、カーテンコーター等で、光学用基材 1 (1a) の微細凹凸構造面上に透明誘電体層 7 2 の材料を塗工する。続いて、溶剤を除去するとともに、透明誘電体層 7 2 材料をレベルリングする (透明誘電体層 7 2 の微細構造層とは反対側の面 7 3 を平坦化する)。その後、透明誘電体層 7 2 材料を硬化 (反応) させることで、連続プロセスにて光学用基材 7 1 を得ることができる。また、得られた光学用基材 7 1 はカバーフ

イルムをパターン面に貼合し、巻き取り回収してもよい。

[0345] 光学用基材 1 (1a) として平板状の光学用基材 1 (1a) を使用する場合は、キャスト法、スリットコート法、インクジェット法、スピンコート法等の方法やこれらの組み合わせ (例えば、キャスト法、スリットコート法を行った後にスピンコート法を行う) により、光学用基材 1 (1a) の微細凹凸構造面上に透明誘電体層 72 の材料を塗工する。続いて、溶剤を除去するとともに、透明誘電体層 72 材料をレベルリングする (透明誘電体層 72 の微細構造層とは反対側の面 73 を平坦化する)。その後、透明誘電体層 72 材料を硬化 (反応) させることで、バッチ式にて光学用基材 71 を得ることができる。

[0346] < 方法 (10) >

以下の工程 (161) ~ (167) により、連続プロセスにて光学用基材 71 を得ることができる。

[0347] (161) シリコンウェハに代表される面精度のある基材上にキャスト法、インクジェット法、スピンコート法、スリットコート法等の方法や、これらの組み合わせ (例えば、キャスト法、スリットコート法を行った後にスピンコート法を行う) により、透明誘電体層 72 材料を塗工する。

(162) 続いて、上記方法 (1) ~ (9) で得られた光学用基材 1 (1a) の微細凹凸構造面側を、透明誘電体層 72 材料に押圧する。

(163) 透明誘電体層 72 材料を硬化させた後に、光学用基材 1 (1a) を剥離することで基材上に、光学用基材 1 (1a) のパターンとは反転した形状を具備する透明誘電体層 72 を形成する。

(164) 基材上に微細構造層材料をキャスト法、インクジェット法、スピンコート法等の方法により成膜する。

(165) 工程 (164) で得られた透明誘電体層 72 から成るパターンを押圧する。

(166) 微細構造層材料を硬化させる。

(167) 最後に、基材を剥離する。

[0348] < 方法 (1 1) >

工程 (1 6 1) および (1 6 2) においては、光学用基材 1 (1 a) 上に透明誘電体層 7 2 材料を塗工し、その後、シリコンウェハ等の面精度のある基材を押圧してもよい。面精度のある基材としては、シリコンウェハや、シリコンウェハの鏡面を転写した樹脂等が挙げられる。

[0349] なお、基材上には、離型層を設けると好ましい。離型層の厚みは、転写精度の観点から 30 nm 以下であることが好ましく、単分子層以上の厚みであることが好ましい。離型性の観点から、2 nm 以上であることがより好ましく、転写精度の観点から 20 nm 以下であることがより好ましい。

[0350] 離型層を構成する材料は、限定されないが、公知市販のものとしては、例えば、ゾニール TC コート (デュポン社製)、サイトップ CTL-107M (旭硝子社製)、サイトップ CTL-107A (旭硝子社製)、ノベック EGC-1720 (3M社製)、オプツール DSX (ダイキン工業社製)、オプツール DACHP (ダイキン工業社製)、デュラサーフ HD-2101Z (ダイキン工業社製)、デュラサーフ HD2100 (ダイキン工業社製)、デュラサーフ HD-1101Z (ダイキン工業社製)、ネオス社製「フタージェント」(例えば、M シリーズ : フタージェント 251, フタージェント 215M, フタージェント 250, FTX-245M, FTX-290M; S シリーズ : FTX-207S, FTX-211S, FTX-220S, FTX-230S; F シリーズ : FTX-209F, FTX-213F, フタージェント 222F, FTX-233F, フタージェント 245F; G シリーズ : フタージェント 208G, FTX-218G, FTX-230G, FTS-240G; オリゴマーシリーズ : フタージェント 730FM, フタージェント 730LM; フタージェント P シリーズ; フタージェント 71OFL; FTX-710HL, 等), DIC 社製「メガファック」(例えば, F-114, F-410, F-493, F-494, F-443, F-444, F-445, F-470, F-471, F-474, F-475, F-477, F-479, F-480SF, F-482, F-483, F-489

, F - 1 7 2 D, F - 1 7 8 K, F - 1 7 8 R M, M C F — 3 5 0 S F, 等
) , ダイキン社製「オプツール T M」(例えば, D S X, D A C, A E S)
, 「エフトーン T M」(例えば, A T _ 1 0 0) , 「ゼッフル T M」(例
えば, G H _ 7 0 1) , 「ユニダイン T M」, 「ダイフリー T M」, 「オプト
エース T M」, 住友スリーエム社製「ノベック E G C — 1 7 2 0」, フロロ
テクノロジー社製「フロロサーフ」, 等, シリコン系樹脂(ジメチルシリ
コン系オイル K F 9 6 (信越シリコン社製), 変性シリコンの市販品
としては, 具体的には T S F 4 4 2 1 (G E 東芝シリコン社製), X F 4
2 - 3 3 4 (G E 東芝シリコン社製), X F 4 2 — B 3 6 2 9 (G E 東芝
シリコン社製), X F 4 2 — A 3 1 6 1 (G E 東芝シリコン社製), F
Z - 3 7 2 0 (東レ・ダウコーニング社製), B Y _ 1 6 — 8 3 9 (東レ・
ダウコーニング社製), S F 8 4 1 1 (東レ・ダウコーニング社製), F Z
- 3 7 3 6 (東レ・ダウコーニング社製), B Y 1 6 _ 8 7 6 (東レ・ダウ
コーニング社製), S F 8 4 2 1 (東レ・ダウコーニング社製), S F 8 4
1 6 (東レ・ダウコーニング社製), S H 2 0 3 (東レ・ダウコーニング社
製), S H 2 3 0 (東レ・ダウコーニング社製), S H 5 1 0 (東レ・ダウ
コーニング社製), S H 5 5 0 (東レ・ダウコーニング社製), S H 7 1 0
(東レ・ダウコーニング社製), S F 8 4 1 9 (東レ・ダウコーニング社製
) , S F 8 4 2 2 (東レ・ダウコーニング社製), B Y 1 6 シリーズ(東レ
・ダウコーニング社製), F Z 3 7 8 5 (東レ・ダウコーニング社製), K
F - 4 1 0 (信越化学工業社製), K F _ 4 1 2 (信越化学工業社製), K
F - 4 1 3 (信越化学工業社製), K F _ 4 1 4 (信越化学工業社製), K
F - 4 1 5 (信越化学工業社製), K F _ 3 5 1 A (信越化学工業社製),
K F - 4 0 0 3 (信越化学工業社製), K F _ 4 7 0 1 (信越化学工業社製
) , K F - 4 9 1 7 (信越化学工業社製), K F — 7 2 3 5 B (信越化学工
業社製), K R 2 1 3 (信越化学工業社製), K R 5 0 0 (信越化学工業社
製), K F _ 9 7 0 1 (信越化学工業社製), X 2 1 _ 5 8 4 1 (信越化学
工業社製), X — 2 2 — 2 0 0 0 (信越化学工業社製), X _ 2 2 _ 3 7 1

0 (信越化学工業社製), X—2 2—7 3 2 2 (信越化学工業社製), X—2 2—1 8 7 7 (信越化学工業社製), X—2 2—2 5 1 6 (信越化学工業社製), P A M—E (信越化学工業社製), アルカン系樹脂 (アルキル系単分子膜を形成する S A M L A Y 等) が挙げられる。

[0351] 特に、離型層を構成する材料は、メチル基を含む材料、シリコーンを含む材料、フッ素を含む材料であることが離型性の観点から好ましい。特に、離型層を構成する材料は、シランカップリング剤あるいは P D M S に代表されるシリコーン系樹脂であると、離型層の膜厚を容易に薄くでき、かつ転写精度を保持できるため好ましい。離型層に使用される材料は、1種類を単独で用いても、複数を同時に使用してもよい。また離型層を構成する材料は水に対する接触角が90度以上であることが好ましい。ここで接触角は、離型層を構成する材料を用いベタ膜 (微細パタンの無い膜) を作製した際の、接触角を意味する。

[0352] 工程 (1 6 3) における透明誘電体層 7 2 の硬化は、熱や光により硬化を促進させてもよい。また得られた光学用基材 7 1 のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0353] < 方法 (1 2) >

以下の工程 (1 7 1) ~ (1 7 3) により、連続プロセスにて光学用基材 7 1 を得ることができる。

[0354] (1 7 1) シリコンウェハに代表される面精度のある基材上に透明誘電体層 7 2 材料を塗工する。

(1 7 2) 続いて、上記方法 (1) ~ (9) で得られた光学用基材 1 (1 a) の微細凹凸構造面側を、透明誘電体層 7 2 材料に押圧する。

(1 7 3) 透明誘電体層 7 2 材料を硬化させた後に、光学用基材 1 (1 a) を剥離する。

[0355] なお、工程 (1 7 1) および (1 7 2) においては、光学用基材 1 (1 a) 上に透明誘電体層 7 2 材料を塗工し、その後、シリコンウェハ等の面精度のある基材を押圧してもよい。面精度のある基材としては、シリコンウェハ

や、シリコンウェハの鏡面を転写した樹脂等が挙げられる。

[0356] 基材上には、離型層を設けると好ましい。離型層厚みは、転写精度の観点から30 nm以下であることが好ましく、単分子層以上の厚みであることが好ましい。離型性の観点から、2 nm以上であることがより好ましく、転写精度の観点から20 nm以下であることがより好ましい。

[0357] 離型層を構成する材料は、限定されないが、公知市販のものとしては、例えば、ゾニールTCコート（デュポン社製）、サイトップCTL—107M（旭硝子社製）、サイトップCTL—107A（旭硝子社製）、ノベックEGC—1720（3M社製）、オプツールDSX（ダイキン工業社製）、オプツールDACHP（ダイキン工業社製）、デュラサーフHD—2101Z（ダイキン工業社製）、デュラサーフHD2100（ダイキン工業社製）、デュラサーフHD—1101Z（ダイキン工業社製）、ネオス社製「フタージェント」（例えば、Mシリーズ：フタージェント251、フタージェント215M、フタージェント250、FTX—245M、FTX—290M；Sシリーズ：FTX—207S、FTX—211S、FTX—220S、FTX—230S；Fシリーズ：FTX—209F、FTX—213F、フタージェント222F、FTX—233F、フタージェント245F；Gシリーズ：フタージェント208G、FTX—218G、FTX—230G、FTS—240G；オリゴマーシリーズ：フタージェント730FM、フタージェント730LM；フタージェントPシリーズ；フタージェント710FL；FTX—710HL、等）、DIC社製「メガファック」（例えば、F—114、F—410、F—493、F—494、F—443、F—444、F—445、F—470、F—471、F—474、F—475、F—477、F—479、F—480SF、F—482、F—483、F—489、F—172D、F—178K、F—178RM、MCF—350SF、等）、ダイキン社製「オプツールTM」（例えば、DSX、DAC、AES）、「エフトーンTM」（例えば、AT—100）、「ゼッフルTM」（例えば、GH—701）、「ユニダインTM」、ダイフリーTM、オプト

エースTM」，住友スリーエム社製「ノベックEGC-1720」，フロロテクノロジー社製「フロロサーフ」，等，シリコン系樹脂（ジメチルシリコン系オイルKF96（信越シリコン社製），変性シリコンの市販品としては，具体的にはTSF4421（GE東芝シリコン社製），XF42-334（GE東芝シリコン社製），XF42-B3629（GE東芝シリコン社製），XF42-A3161（GE東芝シリコン社製），FZ-3720（東レ・ダウコーニング社製），BY16-839（東レ・ダウコーニング社製），SF8411（東レ・ダウコーニング社製），FZ-3736（東レ・ダウコーニング社製），BY16-876（東レ・ダウコーニング社製），SF8421（東レ・ダウコーニング社製），SF8416（東レ・ダウコーニング社製），SH203（東レ・ダウコーニング社製），SH230（東レ・ダウコーニング社製），SH510（東レ・ダウコーニング社製），SH550（東レ・ダウコーニング社製），SH710（東レ・ダウコーニング社製），SF8419（東レ・ダウコーニング社製），SF8422（東レ・ダウコーニング社製），BY16シリーズ（東レ・ダウコーニング社製），FZ3785（東レ・ダウコーニング社製），KF-410（信越化学工業社製），KF-412（信越化学工業社製），KF-413（信越化学工業社製），KF-414（信越化学工業社製），KF-415（信越化学工業社製），KF-351A（信越化学工業社製），KF-4003（信越化学工業社製），KF-4701（信越化学工業社製），KF-4917（信越化学工業社製），KF-7235B（信越化学工業社製），KR213（信越化学工業社製），KR500（信越化学工業社製），KF-9701（信越化学工業社製），X21-5841（信越化学工業社製），X-22-2000（信越化学工業社製），X-22-3710（信越化学工業社製），X-22-7322（信越化学工業社製），X-22-1877（信越化学工業社製），X-22-2516（信越化学工業社製），PAM-E（信越化学工業社製），アルカン系樹脂（アルキル系単分子膜を形成するSAMPLAY等）が挙げられる。

[0358] 特に、離型層を構成する材料は、メチル基含む材料、シリコーンを含む材料、フッ素を含む材料であることが離型性の観点から好ましい。特に、離型層を構成する材料は、シランカップリング剤あるいはPDMSに代表されるシリコーン系樹脂であると、離型層の膜厚を容易に薄くでき、かつ転写精度を保持できるため好ましい。離型層に使用される材料は、1種類を単独で用いても、複数を同時に使用してもよい。また離型層を構成する材料は水に対する接触角が90度以上であることが好ましい。ここで接触角は、離型層を構成する材料を用いベタ膜（微細パタンの無い膜）を作製した際の、接触角を意味する。

[0359] 工程（173）における透明誘電体層72の硬化は、熱や光により硬化を促進させてもよい。また、得られた光学用基材71のパターン面上にカバーフィルムを配置してもよい。

[0360] （実施例）

以下、本発明の効果を明確にするために行った実施例をもとに本発明をより詳細に説明する。なお、下記実施の形態における材料、使用組成、処理工程等は例示的なものであり、適宜変更して実施することが可能である。その他、本発明の範囲を逸脱しない限りにおいて、適宜変更して実施することが可能である。そのため、本発明は以下の実施例によって何ら限定されるものではない。

[0361] [実施例1]

（円筒状金型作製（樹脂モールド作製用鋳型の作製））

円筒状金型の基材としては、直径80mm、長さ50mmの円筒型石英ガラスロールを用いた。この円筒型石英ガラスロール表面に、次の方法により半導体パルスレーザを用いた直接描画リソグラフィ法により微細構造（微細凹凸構造）を形成した。

[0362] まず、この石英ガラス表面の微細構造上にスパッタリング法によりレジスト層を成膜した。スパッタリング法は、ターゲット（レジスト層）として、CuO（8atm%Si含有）を用いて、RF100Wの電力で実施した。

成膜後のレジスト層の膜厚は20 nmであった。以上のように作製した円筒状金型を線速度 $s = 1.0 \text{ m/sec}$ で回転させながら、以下の条件で露光した。

露光用半導体レーザ波長 : 405 nm

露光レーザパワー : 3.5 mW

D2方向ピッチ P_x : 398 nm

D2方向ピッチ P_x に対する変動幅 $\delta 2$: 80 nm

変動幅 $\delta 2$ のD2方向の長周期 $P_x L$: 5 μm

D1方向ピッチ P_y : 460 nm

D1方向ピッチ P_y に対する変動幅 $\delta 1$: 100 nm

変動幅 $\delta 1$ のD1方向の長周期 $P_y L$: 5 μm

[0363] D1方向ピッチ P_y は次のように決定される。

スピンドルモーターのZ相信号を基準に、1周に要する時間 T が測定され、線速度 s から周長 L が計算され、次の式 (12) が得られる。

$$L = T \times s \quad (12)$$

[0364] 目標ピッチを P_y として、 L / P_y が整数になるように目標ピッチ P_y の0.1%以下の値を足して調整し、実効ピッチ P_y' を次の式 (13) によって得る。

$$L / P_y' = m \quad (m \text{ は整数}) \quad (13)$$

[0365] 目標ピッチ P_y と実効ピッチ P_y' とは、厳密には $P_y \neq P_y'$ であるが、 $L / P_y \approx 10^7$ であるので、 $P_y / P_y' \approx 10^{-?}$ となり、実質的に等しいものとして扱うことができる。同様に、長周期 $P_y L$ も、 $L / P_y L$ が整数になるように実効長周期 $P_y L'$ を次の式 (14) によって得る。

$$L / P_y L' = n \quad (n \text{ は整数}) \quad (14)$$

[0366] この場合も、厳密には $P_y L \neq P_y L'$ であるが、 $L / P_y L \approx 10^5$ であるので、 $P_y L / P_y L' \approx 10^{-5}$ となり、実質的に等しいものとして扱うことができる。

[0367] 次に実効ピッチ P_y' から、式 (15)、式 (16) により、基準パルス

周波数 f_{y0} 、変調周波数 f_{yL} が算出される。

$$f_{y0} = s / P_y, \quad (15)$$

$$f_{yL} = s / P_{yL}, \quad (16)$$

[0368] 最後に、式 (15)、式 (16) から、スピンドルモーターの Z 相信号からの経過時間 t におけるパルス周波数 f_y が、式 (17) のように決定される。

$$f_y = f_{y0} + \delta_1 \times \sin(t \times (f_{yL} / f_{y0}) \times 2\pi) \quad (17)$$

[0369] D2 方向の軸送り速度は次のように決定される。

スピンドルモーターの Z 相信号を基準に、1 周に要する時間 T が測定され、D2 方向ピッチ P_x から、軸方向の基準送り速度 V_{x0} が次の式 (18) のように決定される。

$$V_{x0} = P_x / T \quad (18)$$

[0370] D2 方向の長周期 P_{xL} 時から、時刻 t における軸送り速度 V_x を次の式 (19) で決定し、スキャンする。

$$V_x = V_{x0} + V_{\delta 2} \cdot \sin(P_x / P_{xL} \times t \times 2\pi) \quad (19)$$

[0371] ここで、 $V_{\delta 2}$ は、D2 方向の長周期 P_{xL} における速度変動幅であり、長周期 P_{xL} のピッチ変動幅 $\delta 2$ 、 P_x 、 V_{x0} により、次の式 (20) で示される。

$$V_{\delta 2} = \delta 2 \times V_{x0} / P_x \quad (20)$$

[0372] 次に、レジスト層を現像する。レジスト層の現像は、0.03wt% のグリシン水溶液を用いて、処理時間 240 秒の条件で実施した。次に、現像したレジスト層をマスクとし、ドライエッチングによるエッチング層のエッチングを行った。ドライエッチングは、エッチングガスとして SF_6 を使い、処理ガス圧 1 Pa、処理電力 300 W、処理時間 5 分の条件で実施した。次に、表面に微細構造が付与された円筒状金型から、残渣のレジスト層のみを pH 1 の塩酸で 6 分間の条件で剥離して円筒モールド (転写用モールド) を作

製した。

[0373] (樹脂モールドの作製)

得られた円筒状の石英ガラスロール表面 (転写用モールド) に対し、デユラサーフHD-1101Z (ダイキン化学工業社製) を塗布し、60℃で1時間加熱後、室温で24時間静置、固定化した。その後、デユラサーフHD-ZV (ダイキン化学工業社製) で3回洗浄し、離型処理を施した。

[0374] 次に、得られた円筒モールドからリール状樹脂モールドを作製した。OPTOOL DAC HP (ダイキン工業社製)、トリメチロールプロパントリアクリレート (東亜合成社製 M350) およびIrgacure 184 (Ciba社製) を重量部で10:100:5の割合で混合して光硬化性樹脂を調製した。次に、この光硬化性樹脂をPETフィルム (A4100、東洋紡社製 : 幅300mm、厚さ100μm) の易接着面にマイクログラビアコーティング (藤井精機社製) により、塗布膜厚6μmになるように塗布した。

[0375] 次に、円筒モールド (円筒状金型) に対し、光硬化性樹脂を塗布したPETフィルムをニップロール (0.1MPa) で押し付け、大気下、温度25℃、湿度60%で、ランプ中心下での積算露光量が600mJ/cm²となるように、UV露光装置 (フュージョンUVシステムズ・ジャパン社製、Hバルブ) を用いて紫外線を照射して連続的に光硬化を実施して、表面に微細構造が反転転写されたリール状透明樹脂モールド (長さ200m、幅300mm) を得た。

[0376] 樹脂モールドを走査型電子顕微鏡で観察したところ、断面形状が $\phi 400\text{ nm} \pm 40\text{ nm}$ 、 $h 800\text{ nm} \pm 80\text{ nm}$ の凸部が次の長周期構造を有する周期構造で形成されていた。

D2方向ピッチ P_x : 398 nm

D2方向ピッチ P_x に対する変動幅 $\delta 2$: 80 nm

変動幅 $\delta 2$ のD2方向の長周期 $P_x L$: 5 μm

D1方向ピッチ P_y : 460 nm

D 1 方向ピッチ P_y に対する変動幅 $\delta 1 : 100 \text{ nm}$

変動幅 $\delta 1$ の D 1 方向の長周期 $P_y L : 5 \mu\text{m}$

[0377] ドット径とドット高さの最大値は、最も周囲とのドット間距離が狭いドットにおいて観察され、ドット径とドット高さの最小値は、最も周囲とのドット間距離が広いドットにおいて観察され、その間のドット径は、ドット間距離の変動幅の変調と同様な変調曲線を示した。

[0378] (電子顕微鏡)

装置 ; H I T A C H I s - 5 5 0 0

加速電圧 ; 10 kV

M O D E ; N o r m a l

[0379] (反転樹脂モールドの作製)

次に、OPTOOL DAC HP (ダイキン工業社製)、トリメチロールプロパントリアクリレート (東亜合成社製 M350)、および I r g a c u r e 184 (C i b a 社製) を重量部で 10 : 100 : 5 の割合で混合して光硬化性樹脂を調製した。この光硬化性樹脂を PET フィルム (A4 100、東洋紡社製 : 幅 300 mm、厚さ 100 μm) の易接着面にマイクログラビアコーティング (藤井精機社製) により、塗布膜厚 2 μm になるように塗布した。

[0380] 次に、上記リール状樹脂モールドに、光硬化性樹脂を塗布した PET フィルムをニップロール (0.1 MPa) で押し付け、大気下、温度 25℃、湿度 60% で、ランプ中心下での積算露光量が 600 mJ/cm^2 となるように、UV 露光装置 (フュージョン UV システムズ' ジャパン社製、H バルブ) を用いて紫外線を照射して連続的に光硬化を実施して、表面に微細構造が反転転写された透明樹脂モールドシート (長さ 200 mm、幅 300 mm) を得た。

[0381] (有機 EL 素子の作製)

上記透明樹脂モールドシートを光学用基材として、有機 EL 素子を作製した。微細凹凸が形成されている面に、バッファ層、陰極、電子輸送層、ホ

ール輸送層、陰極の順に積層した。各層の材料および膜厚、成膜方法は以下の通りである。

- (1) バッファ層 : SiO_2 100 nm 真空蒸着
- (2) 陰極 : Ag 40 nm 真空蒸着
- (3) 電子輸送層 : Tris - (8-hydroxyquinoline) aluminum (Alq3) 40 nm 真空蒸着
- (4) ホール輸送層 : N, N'-diphenyl-N, N'-bis(1-naphthyl)-(1,1'-biphenyl)-(4,4'-diamine) (NPB) 60 nm 真空蒸着
- (5) 陽極 : ITO 150 nm スパッタリング

[0382] [実施例 2]

実施例 1 と同様に作製した円筒状金型を線速度 $s = 1.0 \text{ m/sec}$ で回転させながら、以下の条件で露光した。

露光用半導体レーザ波長 : 405 nm

露光レーザパワー : 3.5 mW

D2 方向ピッチ P_x : 606 nm

D2 方向ピッチ P_x に対する変動幅 $\delta 2$: 61 nm

変動幅 $\delta 2$ の D2 方向の長周期 $P_x L$: $6 \mu\text{m}$

D1 方向ピッチ P_y : 700 nm

D1 方向ピッチ P_y に対する変動幅 $\delta 1$: 70 nm

変動幅 $\delta 1$ の D1 方向の長周期 $P_y L$: $7 \mu\text{m}$

[0383] 次に実施例 1 と同様に、表面構造が反転転写されたリール状透明樹脂モールド (長さ 200 m、幅 300 m) が得られた。このリール状透明樹脂モールドを用いて、実施例 1 と同様にして有機 EL 素子 (実施例 2) を作製した。

[0384] [実施例 3]

実施例 1 と同様に作製した円筒状金型を線速度 $s = 1.0 \text{ m/sec}$ で回転させながら、以下の条件で露光した。

露光用半導体レーザ波長 : 405 nm

露光レーザパワー : 3.5 mW

D2方向ピッチ P_x : 700 nm

D1方向ピッチ P_y : 700 nm

ピッチ P_y の基準信号の制御を初期のみとした。

[0385] 次に実施例1と同様に、表面構造が反転転写されたリール状透明樹脂モールド(長さ200m、幅300m)が得られた。

[0386] 作製したリール状透明樹脂モールドの表面を走査型電子顕微鏡により観察した。D1方向において設定したピッチ P_y で凸部が列状に配列され、また、この列状の凸部が、D2方向において所定のピッチ P_x で繰り返し設けられていた。また、D2方向において隣接して配列された列状の凸部間において、シフト量 α が不規則であった。

このリール状透明樹脂モールドを用いて、実施例1と同様にして有機EL素子(実施例3)を作製した。

[0387] [比較例1]

周期構造を持たない平滑なNi板を用いて、実施例1と全く同じ操作でフラットなUV硬化樹脂が積層されたPET基材上に有機EL素子(比較例1)を作製した。

[0388] [比較例2]

実施例1と同様の製法により、直径80mm、長さ50mmの円筒型石英ガラスロール表面に微細構造を形成した。ただし、露光を以下の条件で行った。

露光用半導体レーザ波長 : 405 nm

露光レーザパワー : 3.5 mW

D2方向ピッチ P_x : 398 nm

D1方向ピッチ P_y : 460 nm

[0389] 次に、実施例1と同様の方法で、円筒モールド(円筒状金型)から、表面に微細構造が反転転写されたリール状樹脂モールド(長さ200m、幅3

0 0 m m) を得た。樹脂モールドを走査型電子顕微鏡で観察したところ、断面形状が $\phi 400 \text{ nm}$ 、 $h 800 \text{ nm}$ の凸部がつぎの長周期構造を有する周期構造で形成されていた。

D 2 方向ピッチ P_x : 398 nm

D 1 方向ピッチ P_y : 460 nm

[0390] 上記リール状樹脂モールドから、実施例 1 と同様の方法で、PET フィルム上に微細構造を反転転写された透明樹脂モールドシート (長さ 200 m 、幅 300 mm) を得た。

[0391] さらに、上記透明樹脂モールドシートを用いて、実施例 1 と同様の層構成で、微細凹凸が形成されている面に、バッファ層、陰極、電子輸送層、ホール輸送層、陰極の順に積層し、有機 EL 素子 (比較例 2) を形成した。

[0392] (発光特性)

実施例 1 ～実施例 3、比較例 1、比較例 2 の有機 EL 素子の発光効率特性をコニカミノルタ製分光放射輝度計 CS - 2000 にて測定した。比較例 1 の発光強度を 1.0 とした強度比の結果を下記表 1 に示す。

[0393] (カラーシフトの評価)

実施例 1 ～実施例 3、比較例 1、比較例 2 の有機 EL 素子それぞれを発光させた状態で、サンプル周囲に白色の円筒形の紙をかぶせ、紙に投影された像を目視にて観察した。

[0394] [表 1]

	発光強度	カラーシフト
実施例 1	1.9	なし
実施例 2	2	なし
実施例 3	1.7	なし
比較例 1	1	なし
比較例 2	1.7	あり

[0395] 表 1 から分かるように、実施例 1 ～実施例 3 および比較例 1 の有機 EL 素子では全面の色味が同等であったのに対し、比較例 2 の有機 EL 素子においては、特定角度方向に虹のような分光が観察され、カラーシフトが起きている。

た。これは、比較例 2 の有機 EL 素子において、周期構造に起因する回折により発光された光が波長ごとに分離されたためである。一方、実施例 1 の有機 EL 素子では、微細構造に特定周期構造がなく、長周期構造による散乱効果が強いために、分光としては観察されず、カラーシフトは起きなかった。

[0396] [実施例 4]

(光学用基材 1)

上記のように作製した反転樹脂モールドを、50 cm の長さで切り出した。

[0397] 続いて、幅 300 mm、長さ 600 mm のガラスフィルム (屈折率 1.52) 上に材料 1 をバーコーティング法により塗工した。塗工膜厚は溶剤揮発後の固形分膜厚が 1000 nm になるように設定した。塗工後、室温下にて 2 分間静置し、その後 80 度の雰囲気中で 30 秒間静置した。

[0398] 続いて、切り出した反転樹脂モールドの微細構造面側を、材料 1 面に 0.01 MPa の圧力下で貼合し、25℃、湿度 50% の環境下にて 24 時間静置した。

[0399] 最後に、反転樹脂モールドを剥離し、ガラスフィルム上に微細構造を具備した光学用基材 1 を得た。得られた構造を電子顕微鏡にて観察したところ、断面形状が $\phi 400$ nm、 $h 800$ nm の凸部がつぎの長周期構造を有する周期構造で形成されていた。

D2 方向ピッチ P_x : 433 nm

D2 方向ピッチ P_x に対する変動幅 $\delta 2$: 108 nm

変動幅 $\delta 2$ の D2 方向の長周期 $P_x L$: 5000 nm

D1 方向ピッチ P_y : 500 nm

D1 方向ピッチ P_y に対する変動幅 $\delta 1$: 125 nm

変動幅 $\delta 1$ の D1 方向の長周期 $P_y L$: 5000 nm

[0400] (材料 1)

材料 1 は、TTB : 3APTMS : SH710 : に 184 = 39.5 g : 39.5 g : 19.7 g : 1.34 g を 25℃、湿度 50% の環境下にて

攪拌混合することにより作製した。この材料 1 の屈折率は、波長 460 nm で 1.513、波長 550 nm で 1.507 であった。

[0401] (光学用基材 2)

4 インチφのシリコンウェハ基材表面を、 H_2SO_4 にて 15 分間処理した。続いて、Durasurf 1101Z をスピンコート製膜し、25 度、湿度 50% の雰囲気中で 12 時間静置した。そのあと、Durasurf HD-ZV 溶液を用い、スピンコート洗浄を 3 回行った。

[0402] 光学用基材 1 を、300℃の環境下で 1 時間加熱処理をした。自然冷却後、光学用基材 1 の微細構造面上に、下記材料 2 をバーコート法により 1000 nm の固形膜厚が得られるように塗工した。塗工後、25℃、湿度 50% の環境下にて 5 分間静置し、さらに 80℃で 30 秒加熱した。

[0403] 続いて、材料 1 が塗工された面を、表面処理されたシリコンウェハ上に 0.01 MPa の圧力下で貼合した。貼合後、25℃、湿度 50% の環境下にて、24 時間静置した。

[0404] 最後に、シリコンウェハを剥離することで、光学用基材 2 を得た。光学用基材 2 の材料 1 面側の表面精度は、Ra で 1 nm 以下であった。得られた光学用基材 2 は、300℃の環境下で 1 時間加熱処理をした。

[0405] (材料 2)

材料 2 は、TTB : DEDFS : TEOS : SH710 = 93.3 g : 2.38 g : 2.38 g を 25℃、湿度 50% の環境下で攪拌混合し、続いて、80℃の雰囲気中で攪拌しながら、1706 ul の 3.25% にエタノールで希釈した水を滴下し、滴下後、6 時間攪拌することにより作製した。この材料 2 の屈折率は、波長 460 nm で 1.893、波長 550 nm で 1.861 であった。

[0406] (有機 EL 素子の作製)

上記光学用基材 1 より作製された光学用基材 2 を用い有機 EL 素子 (実施例 4) を作製した。光学用基材 2 の材料 1 の硬化物より構成される平坦化面上に、陽極、ホール輸送層、電子輸送層、陰極、バッファ層、陰極、電子

輸送層、ホール輸送層、陰極の順に積層した。

[0407] 各層の材料および膜厚、成膜方法は以下の通りである。

- ・陽極 : ITO 130 nm スパッタリング
- ・ホール輸送層 : N, N'-diphenyl-N, N'-bis(1-naphthyl)-(1,1'-biphenyl)-(4,4'-diamine) (NPB) 60 nm 真空蒸着
- ・電子輸送層 : Tris-(8-hydroxyquinoline) aluminum (Alq3) 40 nm 真空蒸着
- ・陰極 : Al 100 nm 真空蒸着

[0408] (比較例3〜比較例5)

本実施の形態に係る光学用基材1, 2とは異なる基材を使用し、上記同様の方法にて、有機EL素子(比較例3〜比較例5)を作製した。なお、比較例3の有機EL素子は、光学用基材1の作製で使用したガラス基材(フラット基材)を用い、比較例4の有機EL素子は、ピッチ500 nmの微細構造が形成された光学用基材1(但し、微細構造の長周期変動はなし)を用い、比較例5の有機EL素子は、ピッチ5000 nmの微細構造が形成された光学用基材1(但し、微細構造の長周期変動はなし)を用いた。

[0409] 比較例3の有機EL素子については、光学用基材2をフラット基材に変えて実施例4と同様にして作製した。比較例4および比較例5の有機EL素子は、円筒状金型表面にそれぞれのピッチを有する微細構造を形成し、実施例4と同様にして作製した。

[0410] 実施例4、比較例3〜比較例5の有機EL素子について上記のようにして発光効率をおよびギラツキを調べた。その結果を下記表2に示す。なお、発光効率については、比較例3の有機EL素子におけるフラット基材の場合を1とした。ギラツキについては、ギラツキが緩和された状態を○とし、ギラツキが観察された状態をXとした。

[0411]

[表 2]

			光学用基材 1			光学用基材 2	有機 E L 素子	
	種類	屈折率	微細構造形状	長周期	微細構造の屈折率	透明誘電体層の屈折率	発光効率	ギラツキ
比較例 3	ガラス	1.52	なし (フラット)		—	なし	1	—
比較例 4			ドット形状	なし	1.507	1.861	1.28	×
比較例 5							1.14	×
実施例 4				Px=433nm Py=500nm PxL=PyL=5000nm			1.39	○

[041 2] 表 2 から分かるように、微細構造を具備しない有機 E L 素子の場合（比較例 3）に比べ、微細構造を具備した光学用基材を使用した有機 E L 素子（比較例 4、比較例 5、実施例 4）は、発光効率が向上していることがわかる。特に、微細構造サイズは、マイクロオーダー（比較例 5）の場合よりも、ナノオーダー（比較例 4、実施例 4）の場合が、より効率が良かった。さらに、長周期変動を併せ持つ光学用基材を使用した有機 E L 素子（実施例 4）は、効率向上が最大であった。また、比較例 4 および比較例 5 の有機 E L 素子は、発光を視認した際に回折に基づくギラツキが観察されたが、実施例 4 の有機 E L 素子は、長周期変動を併せ持つ光学用基材を使用したもので、ギラツキは緩和され、視認性が向上されることが観察された。

[041 3] このように、本発明の光学用基材によれば、光取り出し向上用光学基材やプラズモニック多結晶等に適用でき、光の回折に起因するカラーシフトを低減可能である。また、輝度を向上させ、光の回折に起因するカラーシフトを低減可能な発光デバイスを提供できる。したがって、本発明の光学用基材および発光デバイスは、カラーシフトを抑制しながら高い発光効率を有するため、電力の有効活用ができ、省エネルギーに大きく貢献できる。

[0414] 本発明は上記実施の形態に限定されず、さまざまに変更して実施可能である。上記実施の形態において、添付図面に図示されている大きさや形状等については、これに限定されず、本発明の効果を発揮する範囲内で適宜変更が

可能である。その他、本発明の目的の範囲を逸脱しない限りにおいて適宜変更して実施可能である。

[0415] 本出願は、2011年12月27日出願の特願2011_284820、および、2012年2月7日出願の特願2012-024035に基づく。これらの内容は全てここに含めておく。

請求の範囲

[請求項 1] 少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機 EL 発光デバイスに適用される光学用基材であって、

 基材主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部から構成されるドットを含む微細構造層を備え、前記微細構造層は、前記基材主面内の第 1 方向において、前記複数のドットがピッチ P_y で配列された複数のドット列を構成し、一方、前記基材主面内の前記第 1 方向に直交する第 2 方向において、前記複数のドット列がピッチ P_x で配列された複数のドット列を構成しており、

 前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x はいずれか一方がナノオーダーの一定間隔であり他方がナノオーダーの不定間隔であるか、またはいずれもナノオーダーの不定間隔であることを特徴とする光学用基材。

[請求項 2] 前記ナノオーダーの不定間隔が変動幅 δ であることを特徴とする請求項 1 に記載の光学用基材。

[請求項 3] 不定間隔の前記ピッチ P_y は、各ドットの中心間の距離に等しく、不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記複数のドットが前記ピッチ P_y で配列された複数のドット列間距離に等しく、かつ、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x は各ドットの直径より大きく、

 前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (1) の関係を満たすとともに、前記第 1 方向において、前記ピッチ $P_{y\ 1} \sim P_{y\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも 1 個以上配列され、

 前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ $P_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ ま

たは $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (2) の関係を満たすとともに、

前記第 2 方向において、前記ピッチ $P_{x1} \sim P_{xn}$ で構成されるドット列群が少なくとも 1 個以上配列されることを特徴とする請求項 1 に記載の光学用基材。

$$P_{y1} < P_{y2} < P_{y3} < \dots < P_{ya} > \dots > P_{yn} \quad (1)$$

$$P_{x1} < P_{x2} < P_{x3} < \dots < P_{xa} > \dots > P_{xn} \quad (2)$$

[請求項 4]

不定間隔の前記ピッチ P_y は、各ドットの中心間の距離に等しく、不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記複数のドットが前記ピッチ P_y で配列された複数のドット列間距離に等しく、かつ、前記ピッチ P_y および前記ピッチ P_x は各ドットの直径より大きく、

前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ P_{yn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (1) の関係を満たすとともに、前記第 1 方向において、前記ピッチ $P_{y1} \sim P_{yn}$ で構成されるドット群が、長周期単位 L_{yz} を繰り返し配列した構成であり、かつ、

前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ドット間の前記ピッチ P_{xn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2a + 1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m - 1$ である) は、下記式 (2) の関係を満たすとともに、

前記第 2 方向において、前記ピッチ $P_{x1} \sim P_{xn}$ で構成されるドット列群が、長周期単位 L_{xz} を繰り返し配列した構成であることを特徴とする請求項 1 に記載の光学用基材。

$$P_{y1} < P_{y2} < P_{y3} < \dots < P_{ya} > \dots > P_{yn} \quad (1)$$

$$P_{x1} < P_{x2} < P_{x3} < \dots < P_{xa} > \dots > P_{xn} \quad (2)$$

[請求項 5]

前記したドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減し、

前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (3) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット径 $D_{y\ 1} \sim D_{y\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列され、

前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (4) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット径 $D_{x\ 1} \sim D_{x\ n}$ で構成されるドット群が少なくとも1個以上配列されることを特徴とする請求項3に記載の光学用基材。

$$D_{y\ 1} < D_{y\ 2} < D_{y\ 3} < \dots < D_{y\ a} > \dots > D_{y\ n} \quad (3)$$

$$D_{x\ 1} < D_{x\ 2} < D_{x\ 3} < \dots < D_{x\ a} > \dots > D_{x\ n} \quad (4)$$

[請求項6]

前記したドットの各々の直径が、ピッチ P_y および/またはピッチ P_x に対応して増減し、

前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{y\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (3) の関係を満たすとともに、前記第1方向において、前記ドット径 $D_{y\ 1} \sim D_{y\ n}$ で構成されるドット群が長周期単位 $L_{y\ z}$ で繰り返し配列され、かつ、

前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット径 $D_{x\ n}$ ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (4) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット径 $D_{x\ 1} \sim D_{x\ n}$ で構成されるドット群が

長周期単位 $L \times z$ で繰り返し配列されることを特徴とする請求項 4 に記載の光学用基材。

$$D_{y1} < D_{y2} < D_{y3} < \dots < D_{ya} > \dots > D_{yn} \quad (3)$$

$$D_{x1} < D_{x2} < D_{x3} < \dots < D_{xa} > \dots > D_{xn} \quad (4)$$

[請求項 7] 前記したドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対応して増減し、

前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ H_{yn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (5) の関係を満たすとともに、前記第 1 方向において、前記ドット高さ $H_{y1} \sim H_{yn}$ で構成されるドット群が少なくとも 1 個以上配列され、

前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ H_{xn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (6) の関係を満たすとともに、前記第 2 方向において、前記ドット径 $H_{x1} \sim H_{xn}$ で構成されるドット群が少なくとも 1 個以上配列されることを特徴とする請求項 5 に記載の光学用基材。

$$H_{y1} < H_{y2} < H_{y3} < \dots < H_{ya} > \dots > H_{yn} \quad (5)$$

$$H_{x1} < H_{x2} < H_{x3} < \dots < H_{xa} > \dots > H_{xn} \quad (6)$$

[請求項 8] 前記したドットの各々の高さが、ピッチ P_y および/ またはピッチ P_x に対応して増減し、

前記ピッチ P_y が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する 4 個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ H_{yn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (5) の関係を満たすとともに、前記第 1 方向において、前記ドット高さ $H_{y1} \sim H_{yn}$ で構成されるドット

群が長周期単位 L_{yz} で繰り返し配列され、かつ、

前記ピッチ P_x が不定間隔である場合には、少なくとも隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチを構成するドット高さ H_{xn} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (6) の関係を満たすとともに、前記第2方向において、前記ドット高さ $H_{x1} \sim H_{xn}$ で構成されるドット群が長周期単位 L_{xz} で繰り返し配列されることを特徴とする請求項6に記載の光学用基材。

$$H_{y1} < H_{y2} < H_{y3} < \dots < H_{ya} > \dots > H_{yn} \quad (5)$$

$$H_{x1} < H_{x2} < H_{x3} < \dots < H_{xa} > \dots > H_{xn} \quad (6)$$

[請求項9]

少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機EL発光デバイスに適用される光学用基材であって、

基材の主面から面外方向に延在する複数の凸部または凹部で構成される複数のドットを含む微細構造層を備え、前記微細構造層は、前記基材の主面内の第1方向において前記複数のドットが一定間隔のナノオーダーのピッチ P_y で配列されたドット列を構成し、且つ、これらのドット列を前記第1方向に直交する第2方向に一定間隔のナノオーダーのピッチ P_x で並設し、

隣接する第1ドット列及び第2ドット列間の前記第1方向におけるシフト量 α_1 と、前記第2ドット列及び前記第2ドット列に隣接する第3ドット列間の前記第1方向におけるシフト量 α_2 とが互いに異なることを特徴とする光学用基材。

[請求項10]

前記シフト量 α_1 と前記シフト量 α_2 の差分が一定でないことを特徴とする請求項9に記載の光学用基材。

[請求項11]

少なくとも、陽極と陰極と発光層とで構成され、前記発光層が一層以上の有機層を有する有機EL発光デバイスに適用される光学用基材であって、

前記基材の基材主面から面外方向に延在する複数の凸部から構成されるラインを含む微細構造層を形成し、前記基材主面内の前記第1方向に沿ってライン構造を形成し、前記基材主面内の前記第1方向に直交する第2方向において、前記複数のラインがピッチ P_x で配列された複数のライン列を有しており、

前記ピッチ P_x はナノオーダーの不定間隔であることを特徴とする光学用基材。

[請求項12] 不定間隔の前記ピッチ P_x は、前記ライン構造の凸部幅より大きく、

少なくとも、隣接する4個以上 m 個以下の前記ピッチ P_{x_n} ($3 \leq n \leq 2a$ または $3 \leq n \leq 2n+1$ 、ただし、 m 、 a は正の整数であり、 $n = m-1$ である) は、下記式 (7) の関係を満たし、

前記第2方向において、前記ピッチ $P_{x_1} \sim P_{x_n}$ で構成される長周期 L_z が繰り返し配列されることを特徴とする請求項11に記載の光学用基材。

$$P_{x_1} < P_{x_2} < P_{x_3} < \dots < P_{x_a} > \dots > P_{x_n} \quad (7)$$

[請求項13] 前記基材は、樹脂からなることを特徴とする請求項1から請求項12のいずれかに記載の光学用基材。

[請求項14] 前記基材は、少なくとも、基材と前記微細構造層を構成する材料とで構成され、前記微細構造層を構成する材料の屈折率と、前記基材の屈折率との差が、0.15以下であることを特徴とする請求項1から請求項12のいずれかに記載の光学用基材。

[請求項15] 前記基材の表面に、金属膜が被覆されることを特徴とする請求項1から請求項12のいずれかに記載の光学用基材。

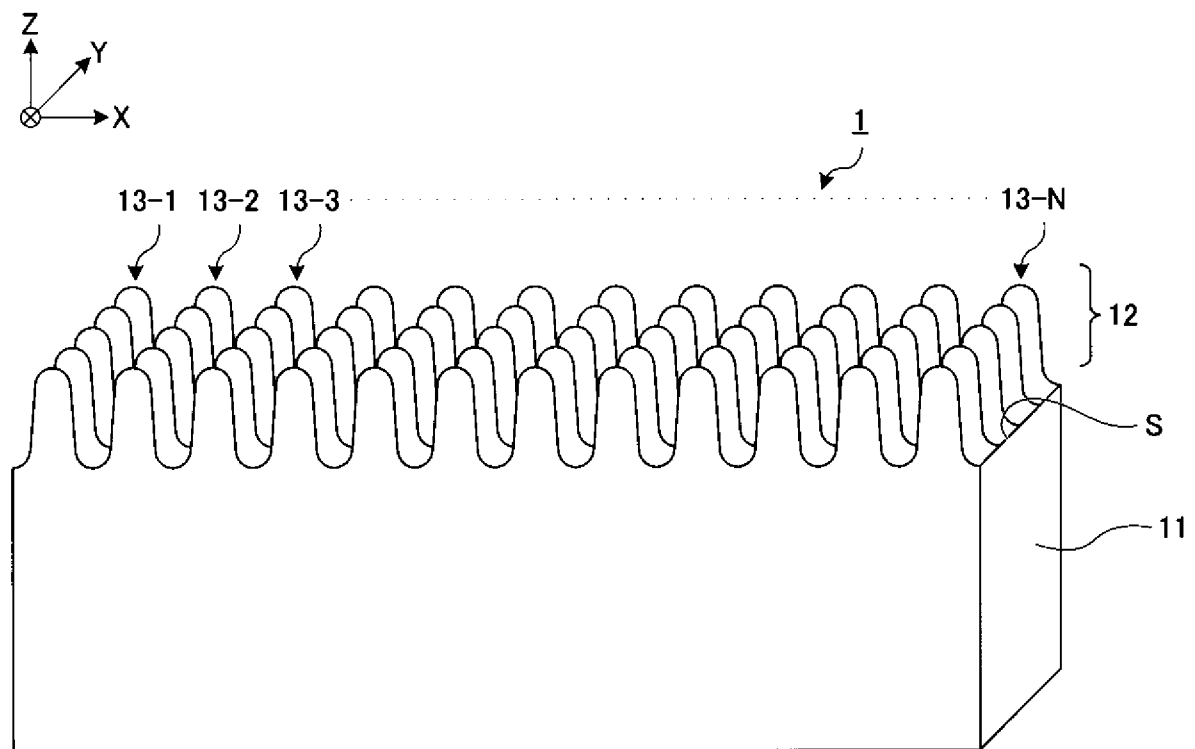
[請求項16] 前記基材は、金属からなることを特徴とする請求項1から請求項12のいずれかに記載の光学用基材。

[請求項17] 前記基材の微細構造層の前記ドット上又は前記ライン上に設けられ、前記微細構造層の前記複数の凸部または凹部から構成されるドット

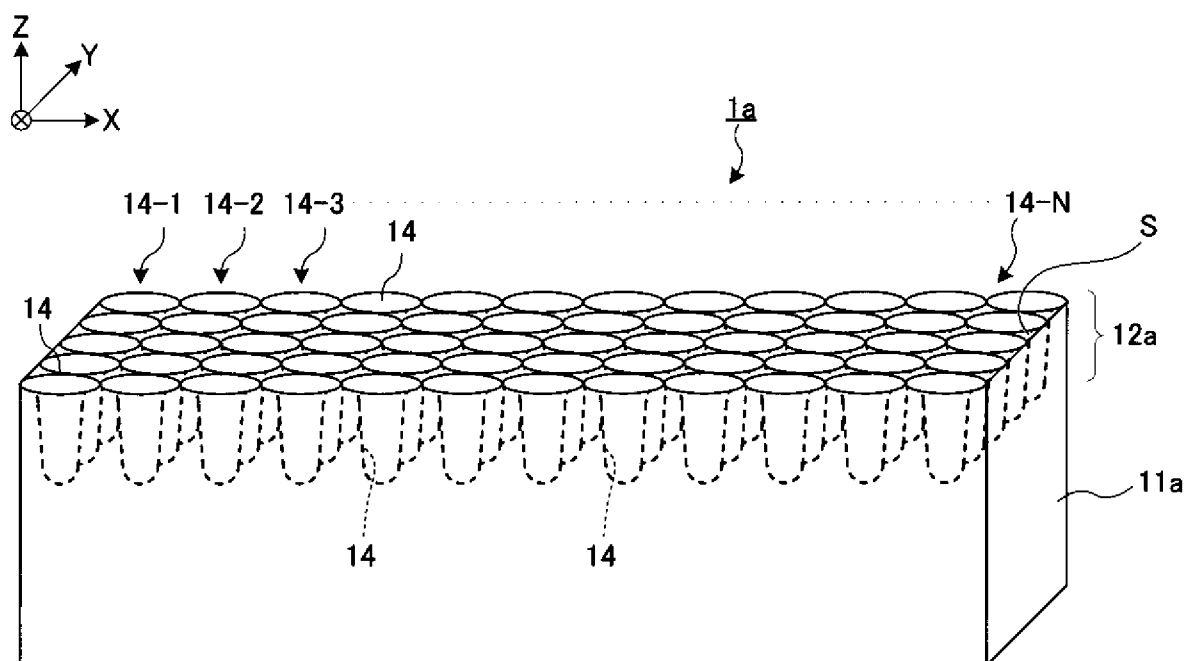
または前記複数の凸部から構成されるラインに対応する形状の微細凹凸構造を有する透明誘電体層を具備し、前記透明誘電体層の前記微細凹凸構造を有する面とは反対側の面が平坦化されることを特徴とする請求項 1 から請求項 12 のいずれかに記載の光学用基材。

[請求項 18] 請求項 1 から請求項 12 のいずれかに記載の光学用基材を少なくとも 1 つ有する有機 EL デバイスであって、前記発光層は、前記光学用基材の微細構造層側の主面に対向して配置されていることを特徴とする発光デバイス。

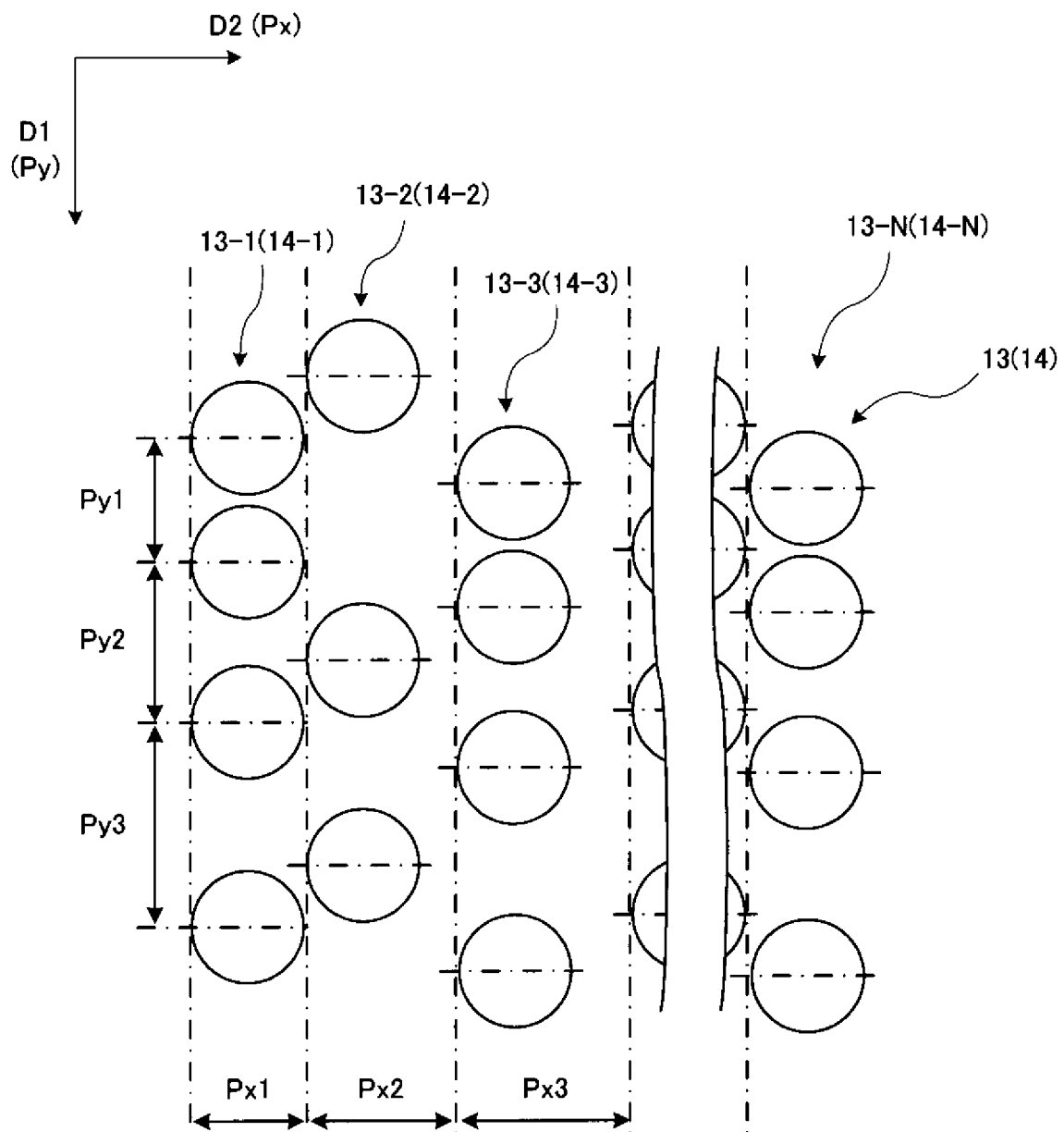
[図1]



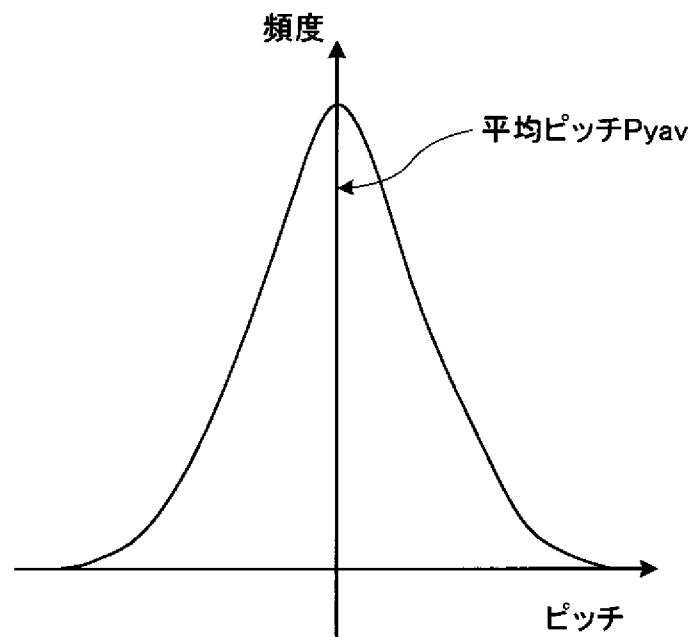
[図2]



[図3]

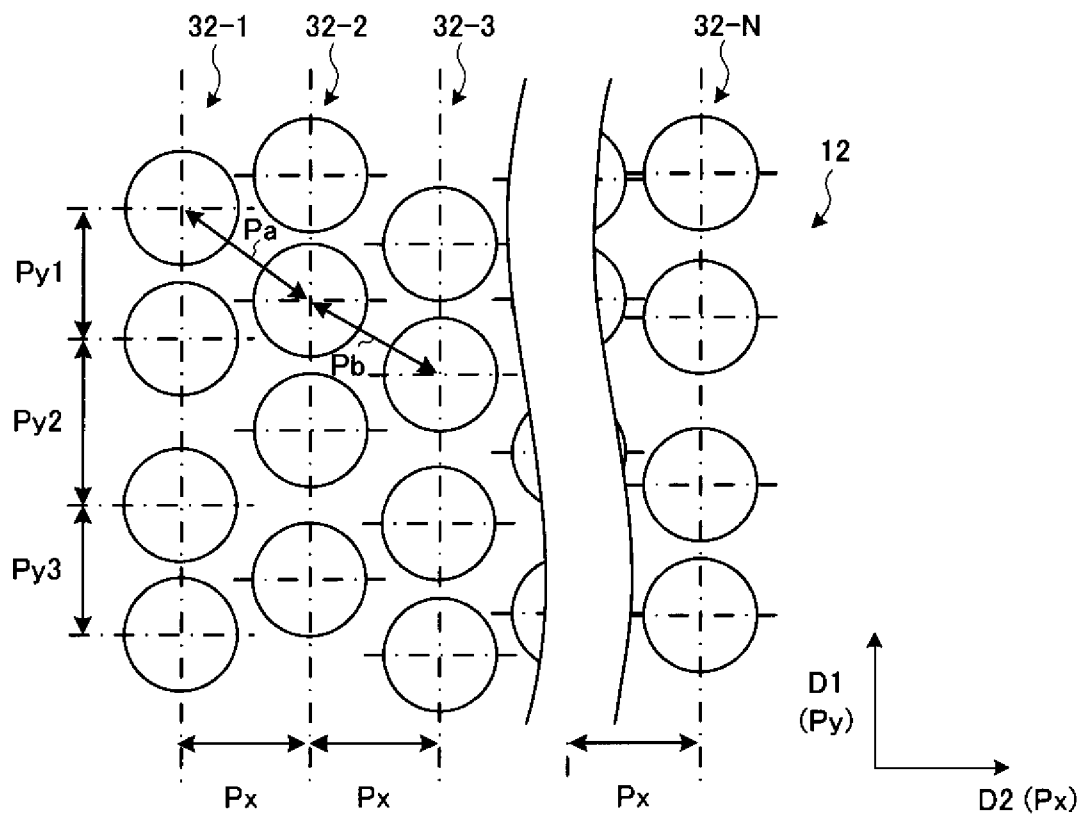


[図4]

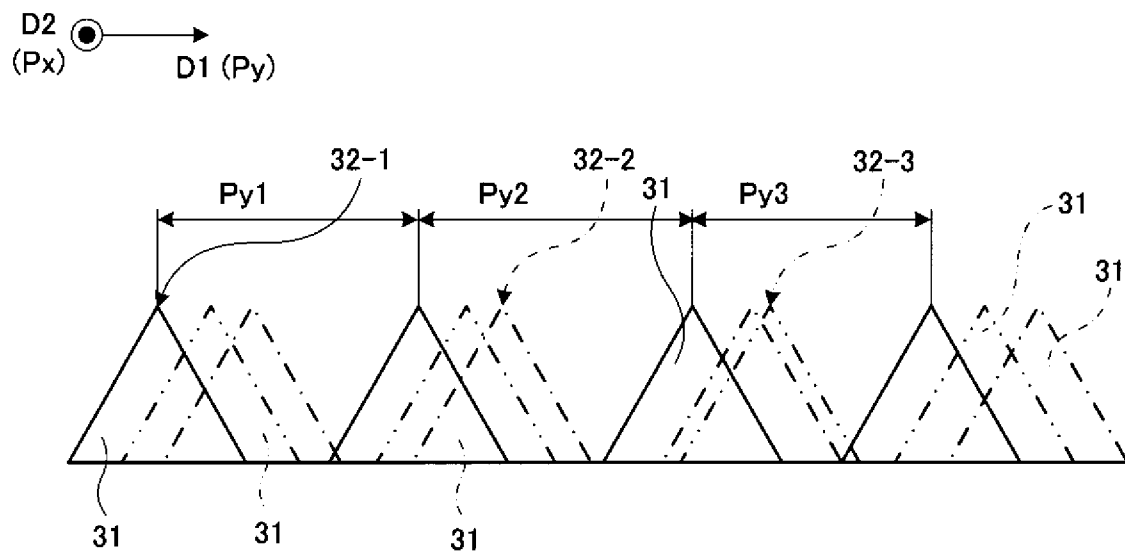


[図5]

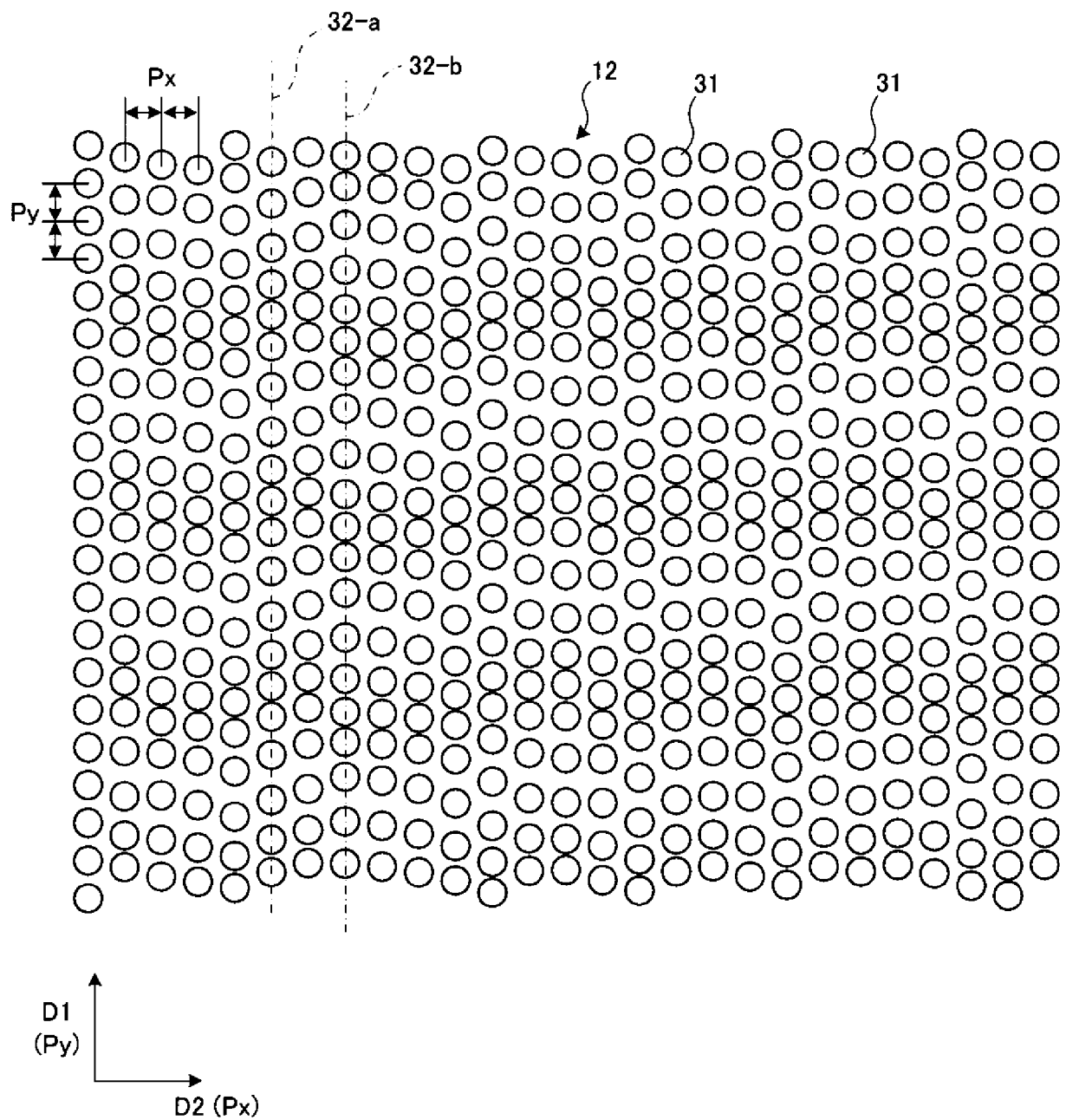
1



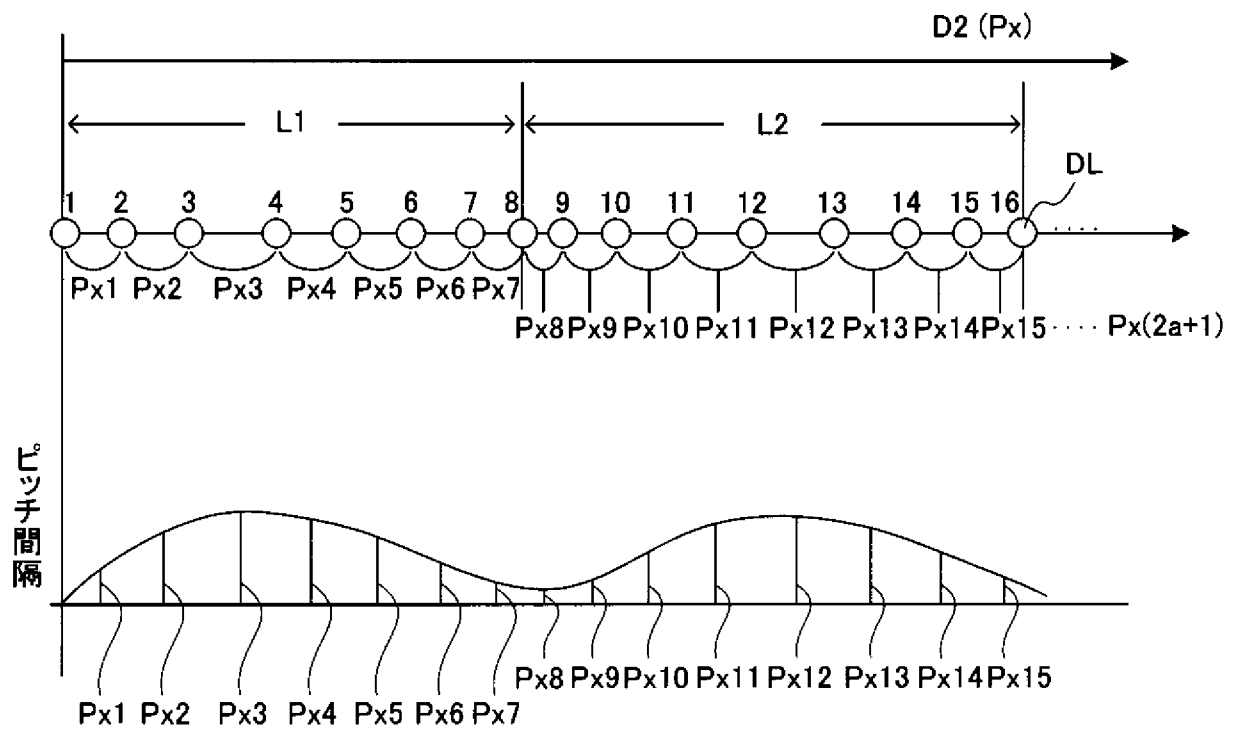
[図6]



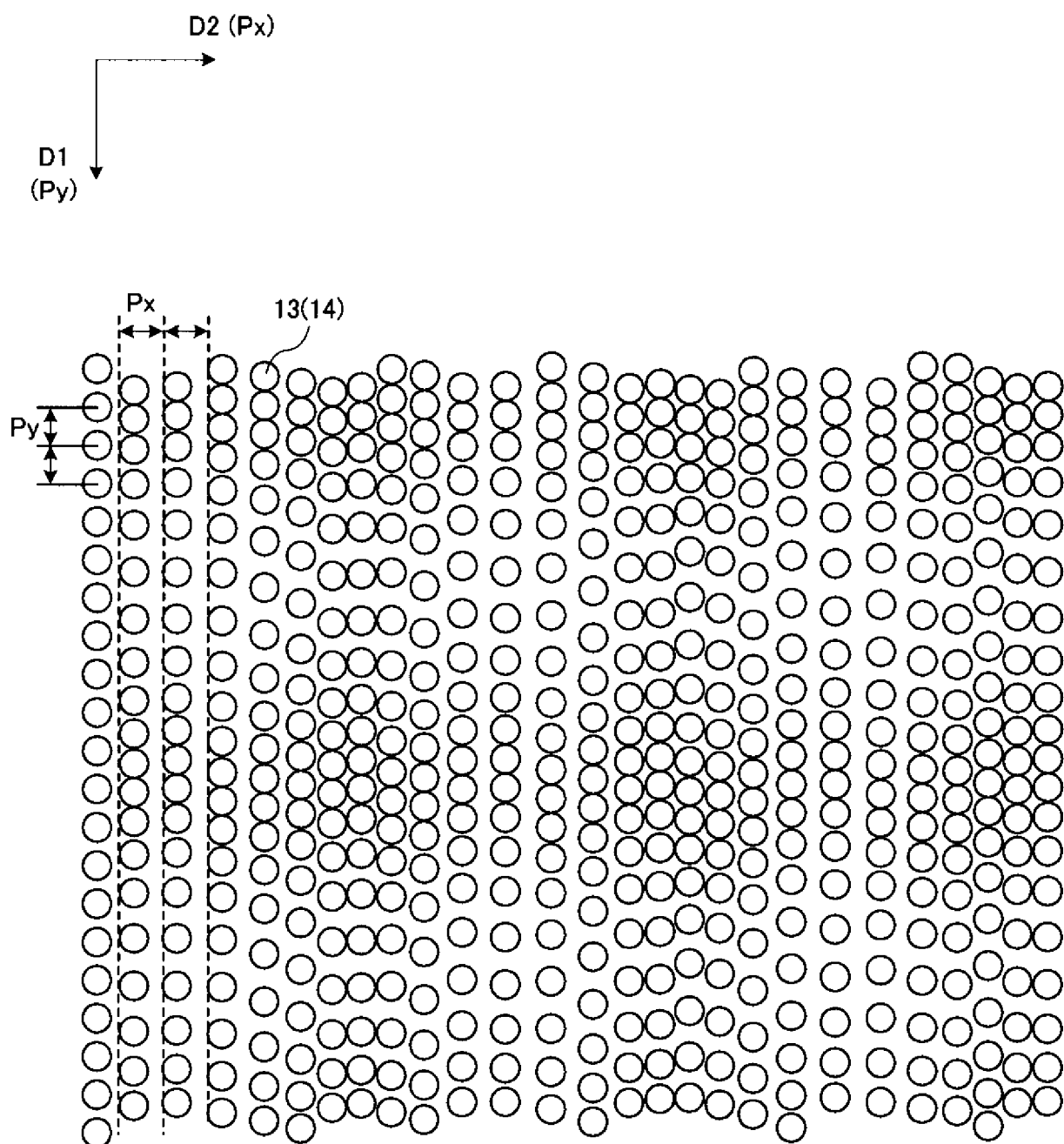
[図7]



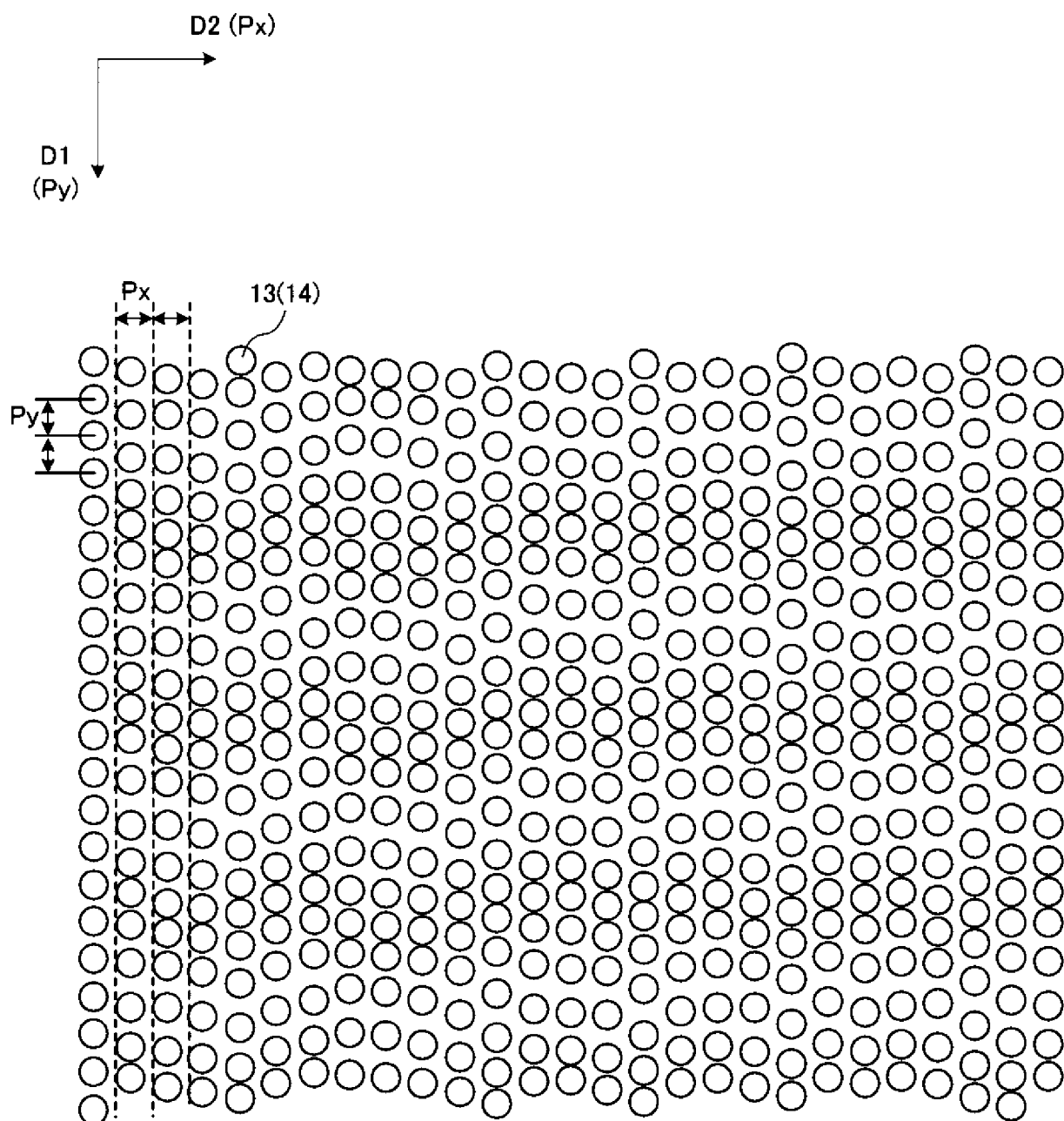
[図8]



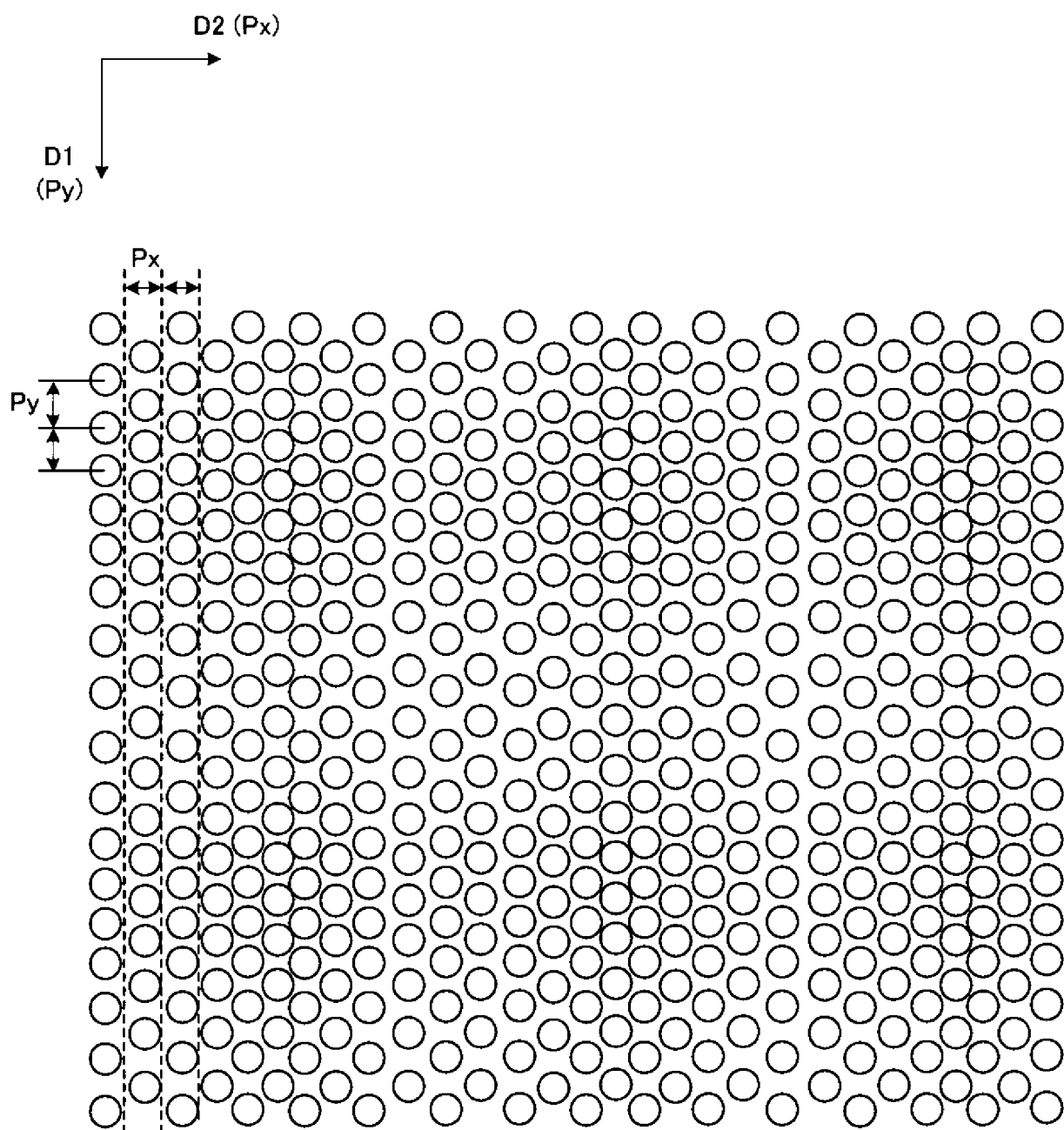
[図9]



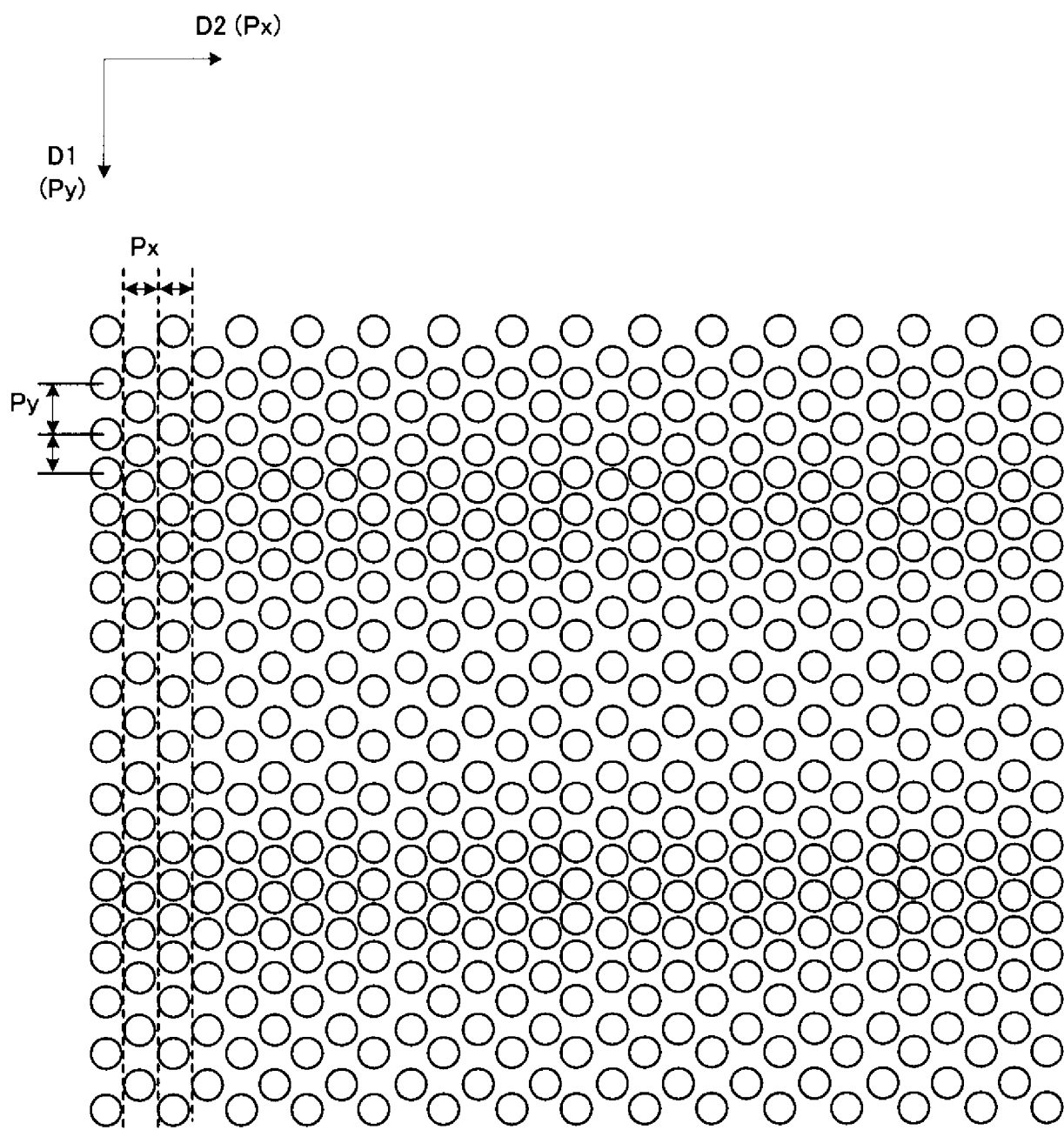
[図10]



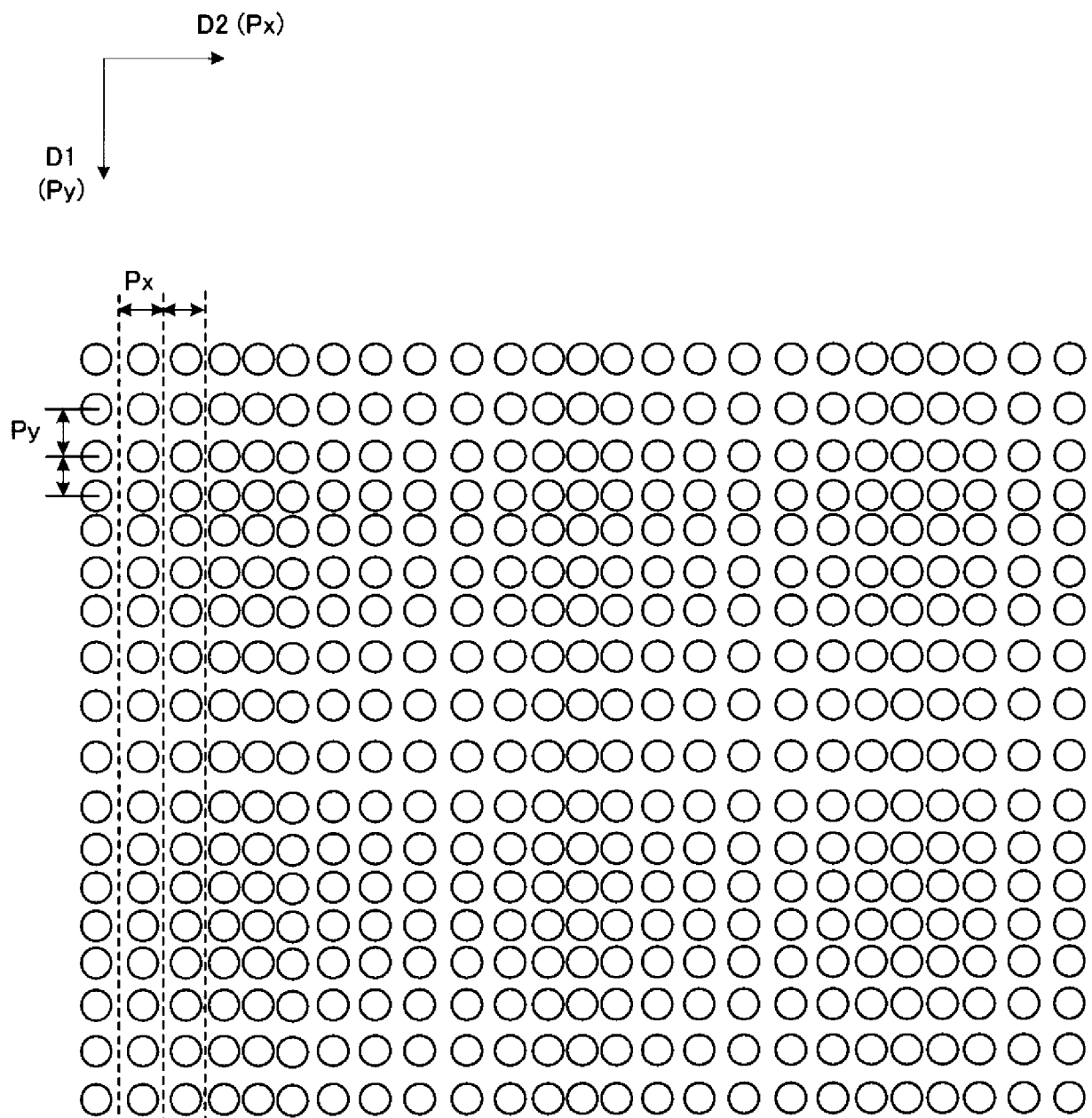
[図11]



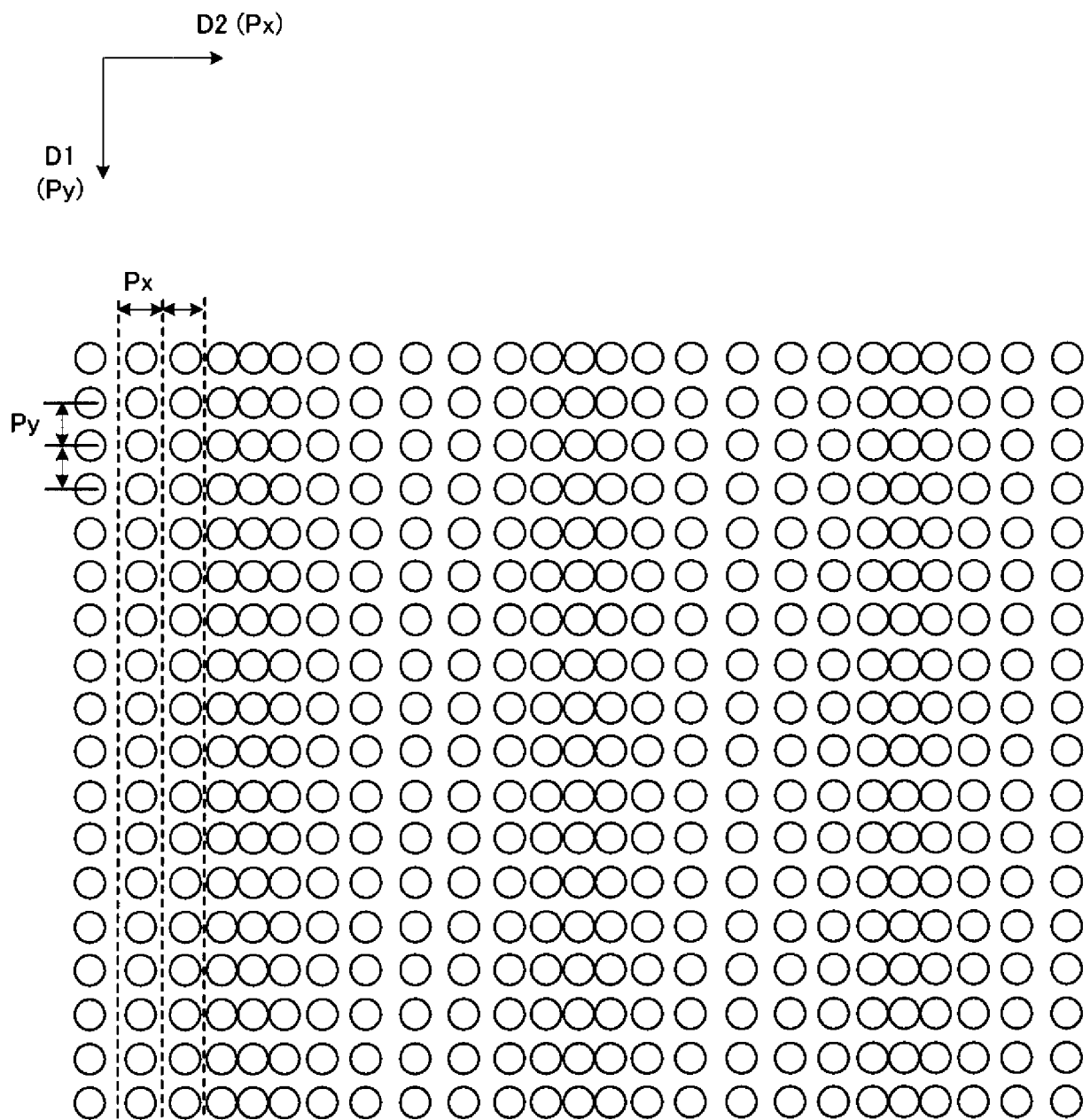
[図12]



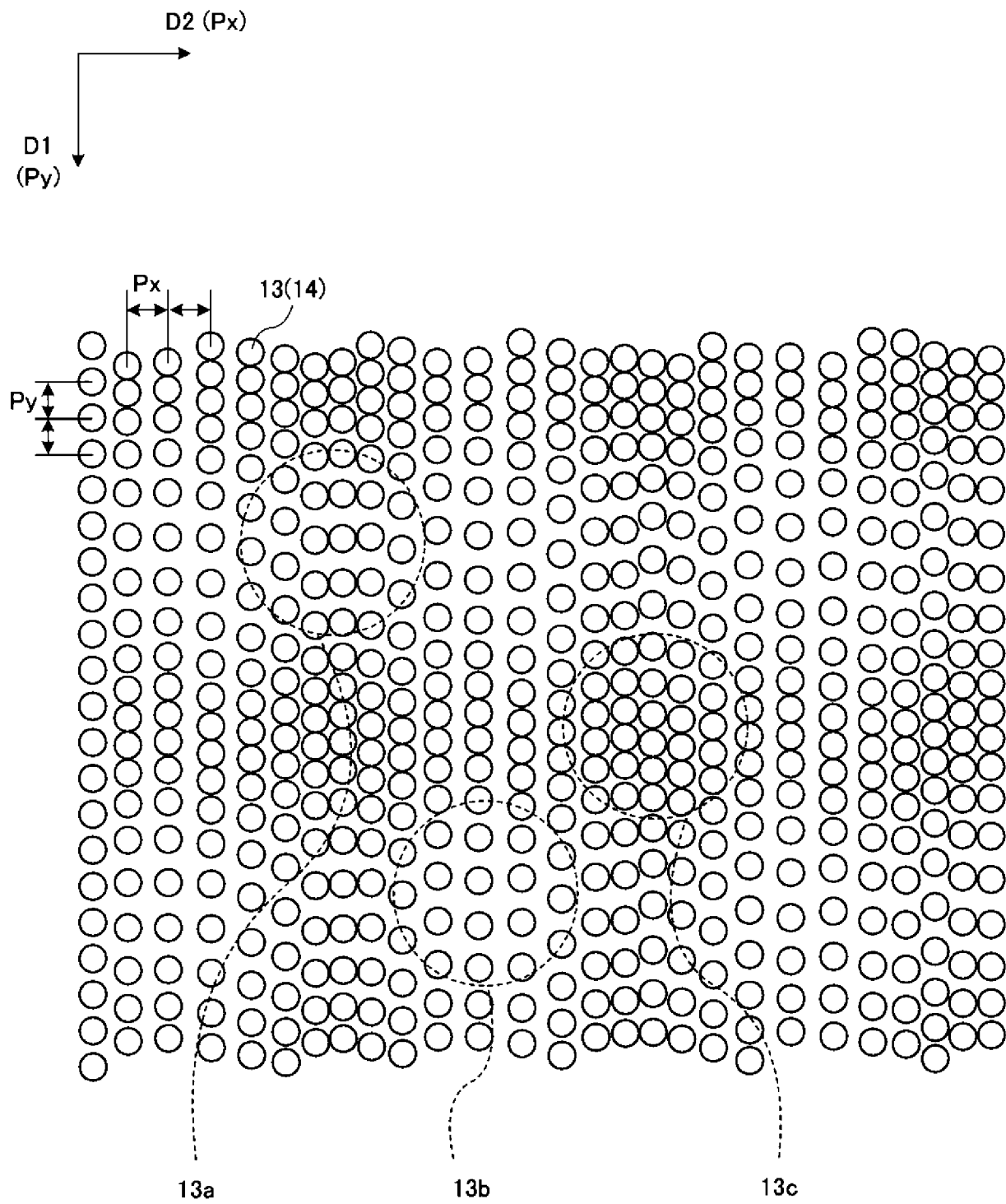
[図13]



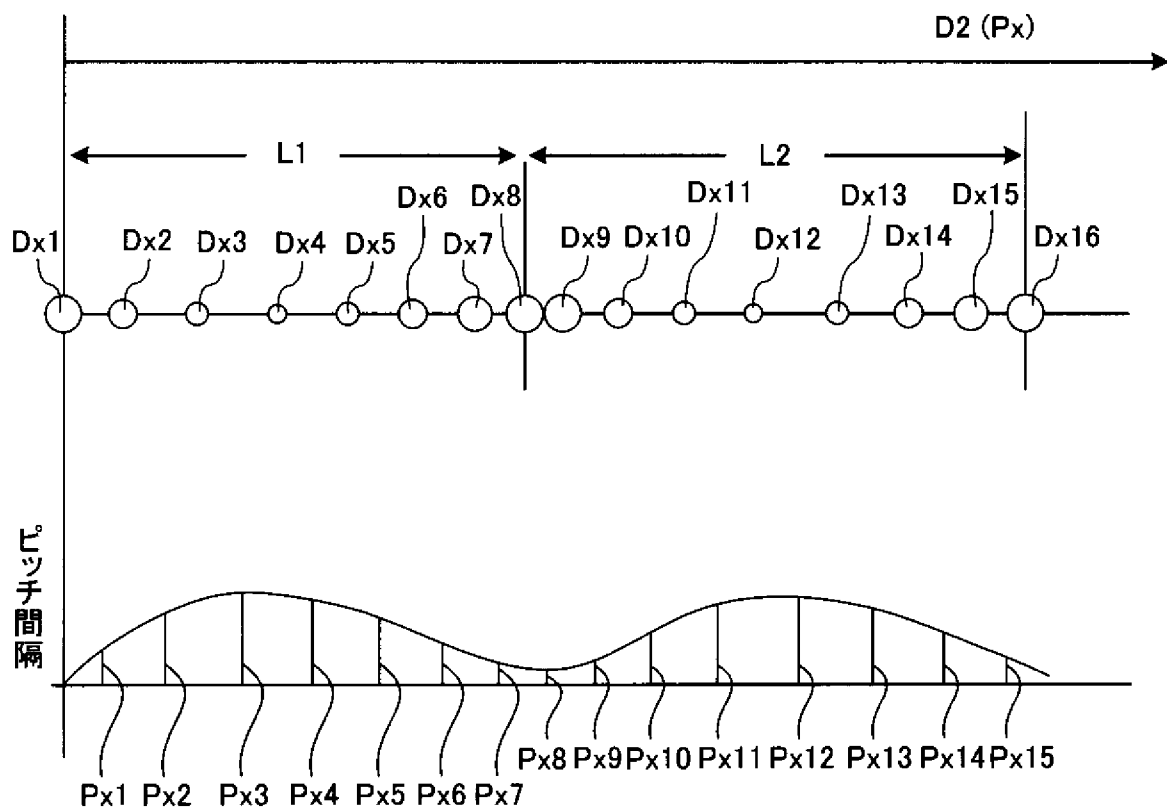
[図14]



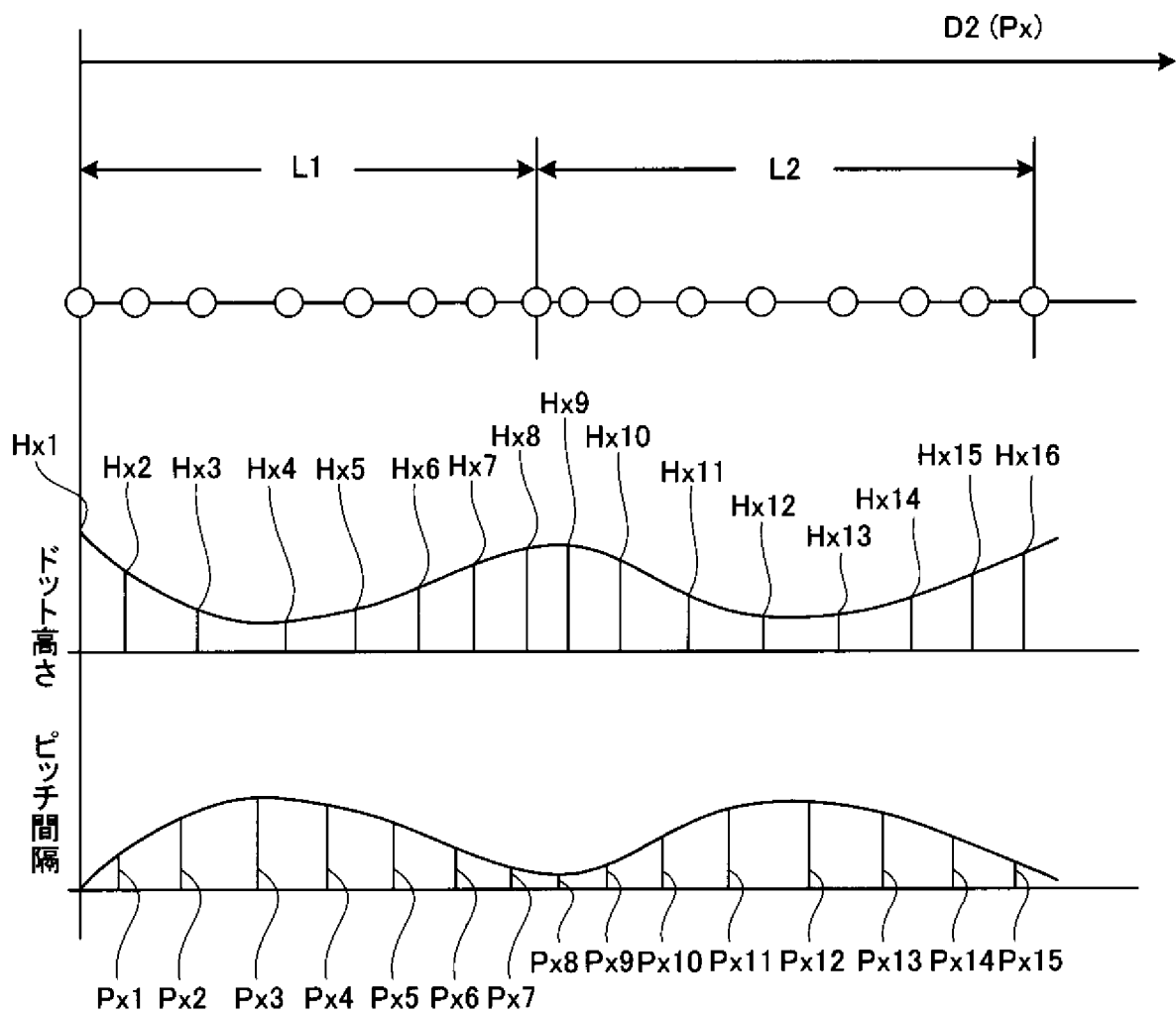
[図15]



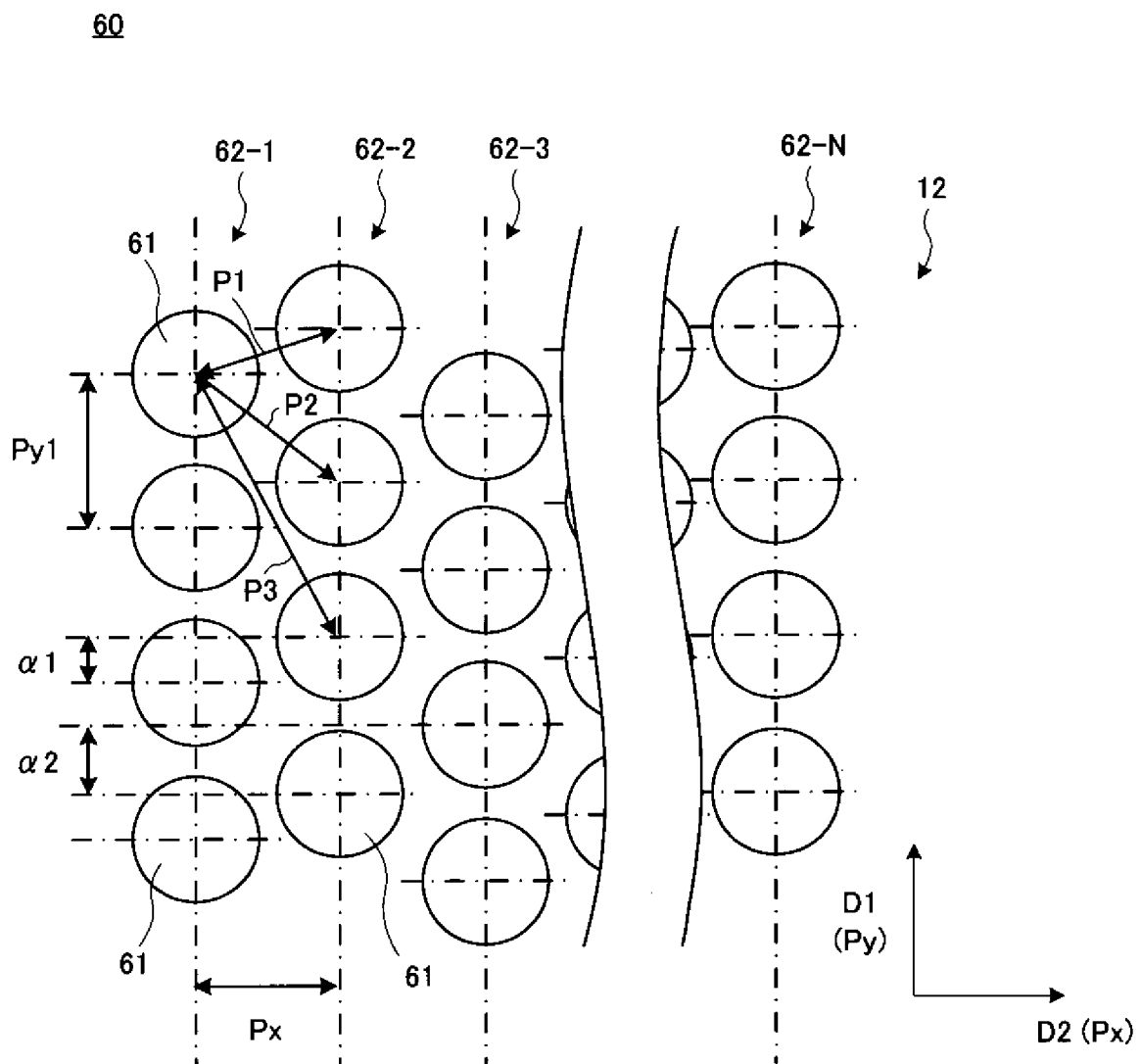
[図16]



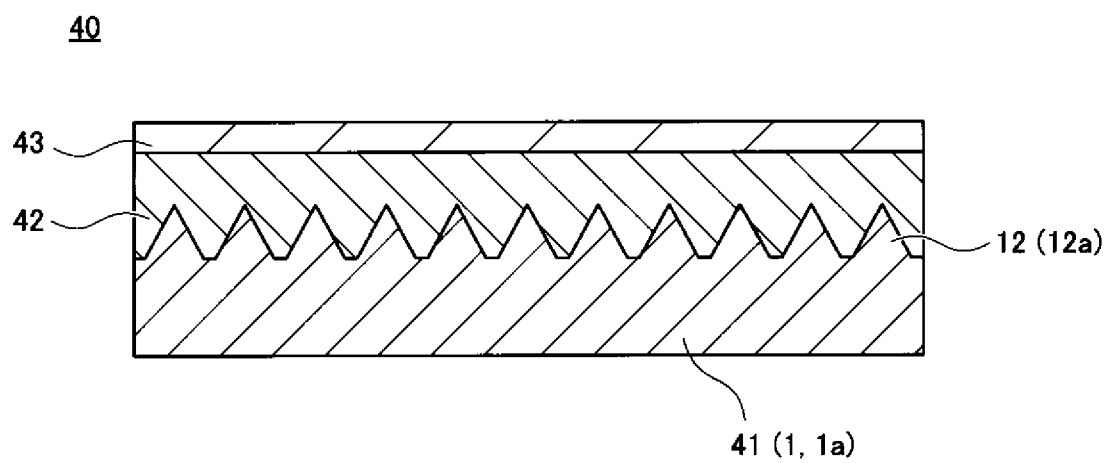
[図17]



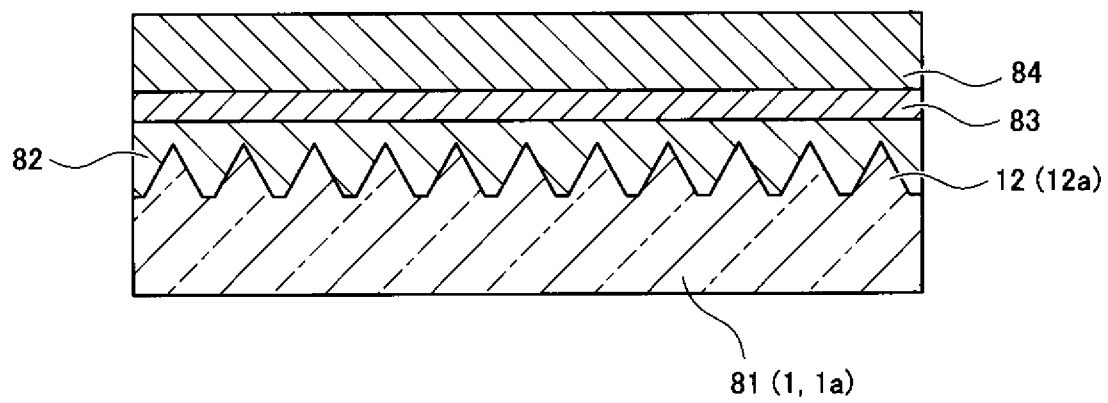
[図18]



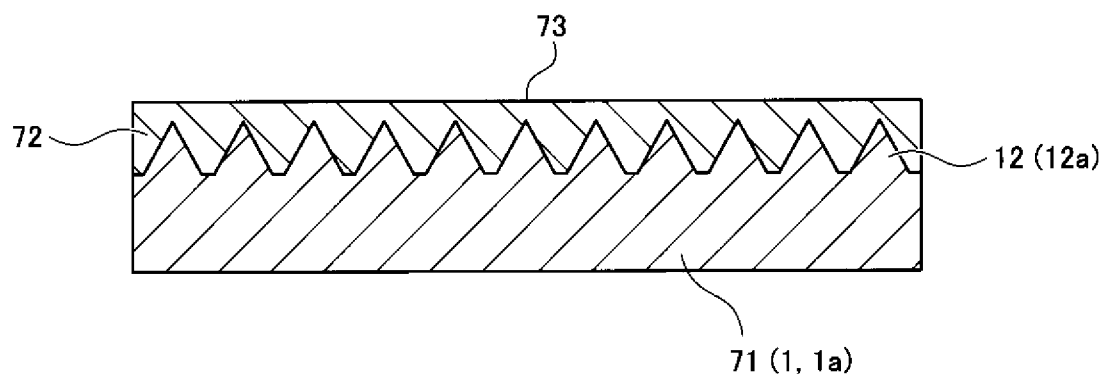
[図19]



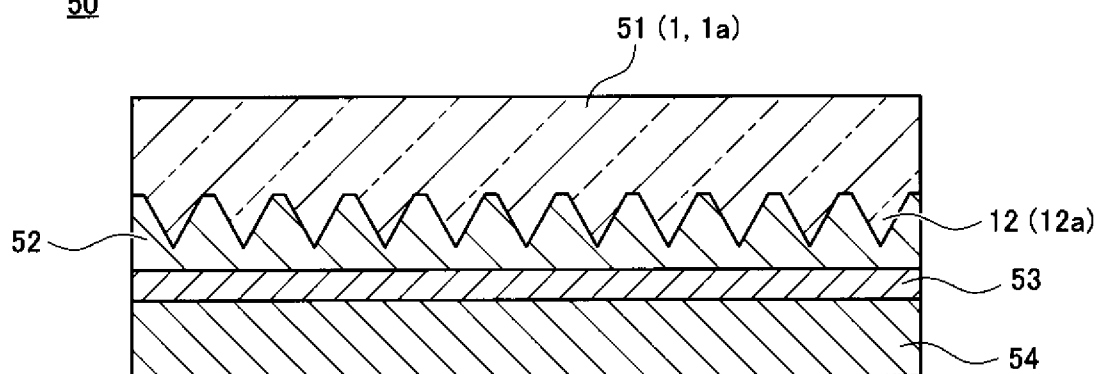
[図20]

80

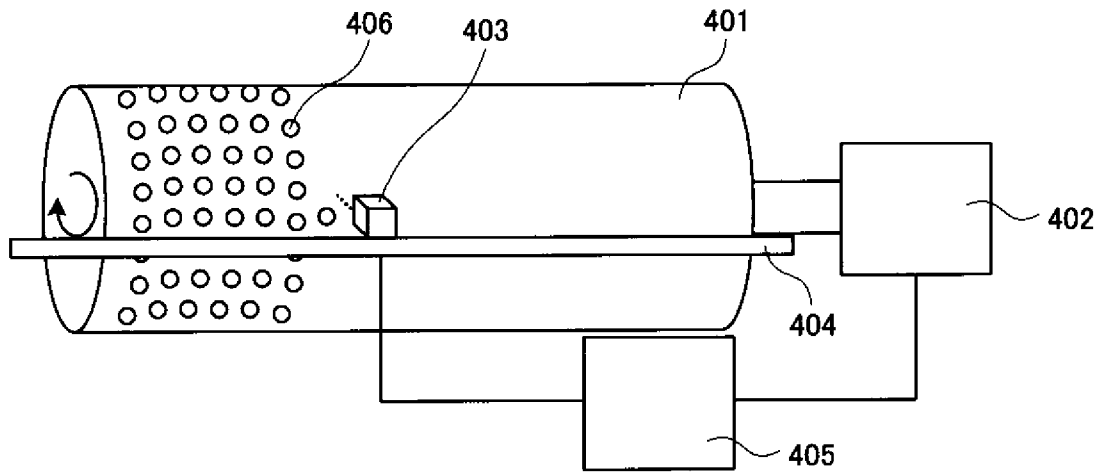
[図21]

70

[図22]

50

[図23]

400

[図24]

図24A



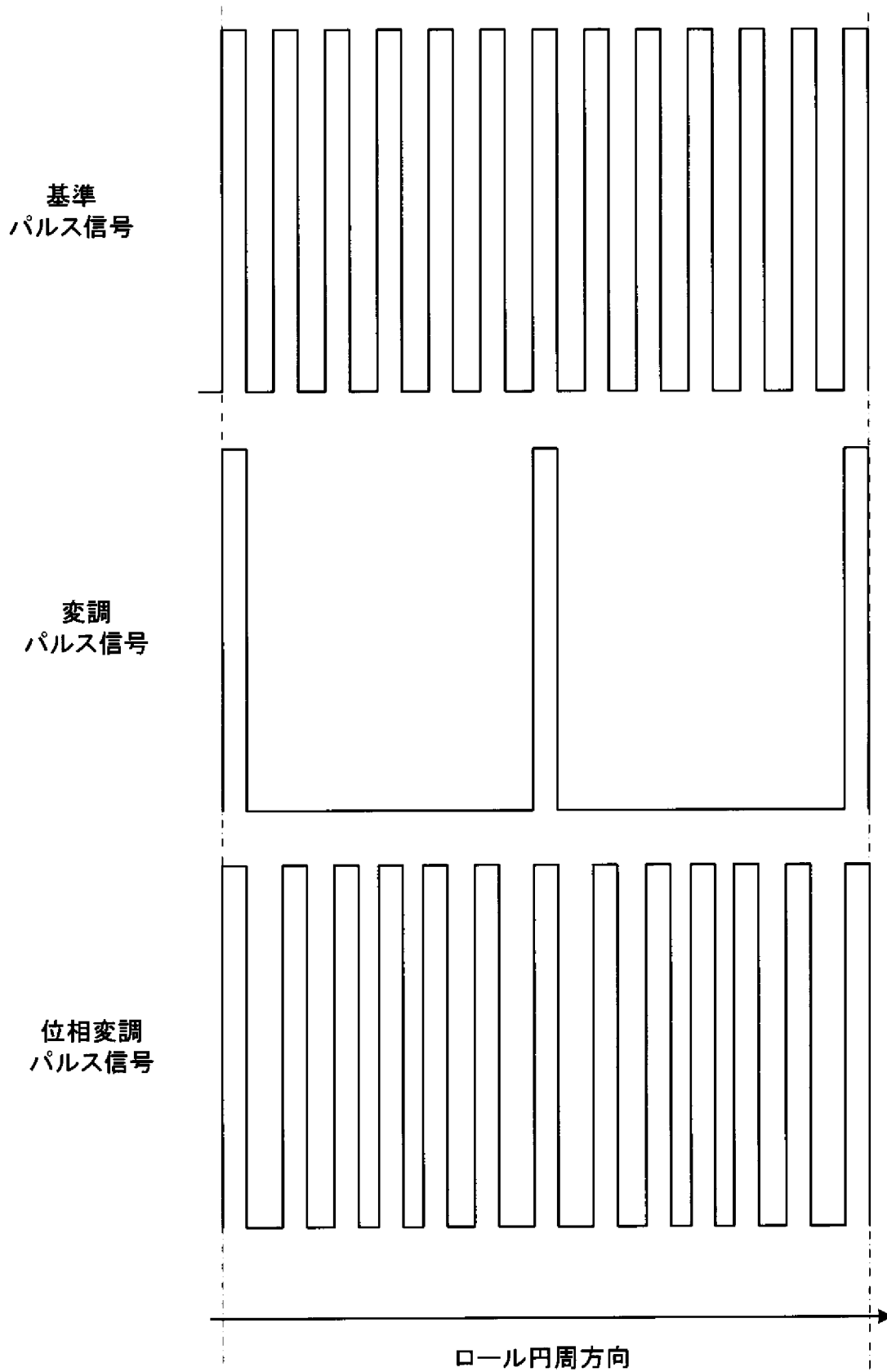
図24B



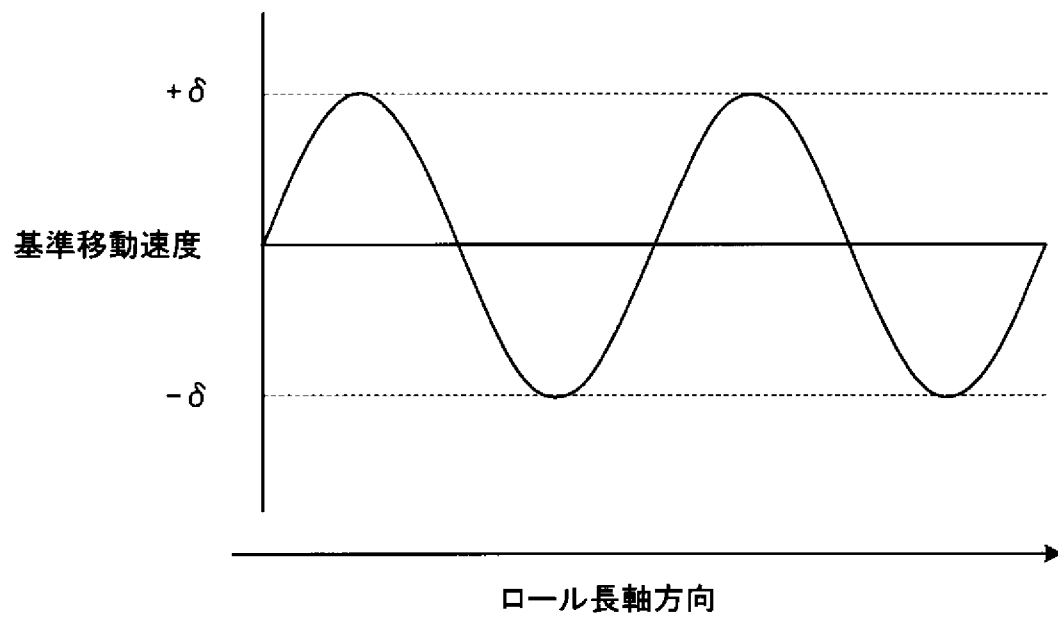
図24C



[図25]



[図26]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT / JP2 012 / 083497

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B5/18 (2006.01)i, G02B5/00 (2006.01)i, H01L51/50 (2006.01)i, H05B33/02 (2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02B5/18, G02B5/00, H01L51/50, H05B33/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo	Shinan	Koho	1922-1	996	Jitsuyo	Shinan	Toroku	Koho	1996-2013
Kokai	Jitsuyo	Shinan	Koho	1971-2013	Toroku	Jitsuyo	Shinan	Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2010-533932 A (3M Innovative Properties Co.), 28 October 2010 (28.10.2010), claims; paragraph s [0002], [0044], [0050], [0055] & US 2009/0015142 A1 & EP 2174169 A & WO 2009/011961 A2 & KR 10-2010-0047855 A & TW 200913767 A	1-3, 5, 7, 9-11, 13-18 4, 6, 8, 12
X	JP 2011-222421 A (Asahi Kasei E-materials Corp.), 04 November 2011 (04.11.2011), claims; paragraph s [0030], [0034], [0042], [0047], [0052]; fig. 1, 2 (Family: none)	1-3, 5, 7, 9-11, 13-18



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 March, 2013 (18.03.13)

Date of mailing of the international search report

02 April, 2013 (02.04.13)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT / JP2 012 / 083497

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2006-269163 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 05 October 2006 (05.10.2006), claims ; paragraphs [0045], [0059], [0154] ; fig. 6 (Family : none)	1-3, 5, 7, 9-11, 13, 14, 17, 18
X	JP 2011-255603 A (Toray Industries, Inc.), 22 December 2011 (22.12.2011), claims ; paragraphs [0002], [0003], [0024] ; fig. 2 (Family : none)	1-3, 5, 7, 9-11, 14, 15, 17, 18

A . 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. G02B5/18 (2006. 01) i, G02B5/00 (2006. 01) i, H01L51/50 (2006. 01) i, H05B33/02 (2006. 01) i

B . 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. G02B5/18, G02B5/00, H01L51/50, H05B33/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 — 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 — 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 — 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 — 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2010-533932 A (スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー) 2010. 10. 28, 特許請求の範囲、段落 [0002] [0044] [0050] [0055] & US 2009/0015142 A1 & EP 2174169 A & WO 2009/011961 A2 & KR 10-2010-0047855 A & TW 200913767 A	1-3, 5, 7, 9-11, 13-18
A		4, 6, 8, 12
X	JP 2011-222421 A (旭化成イーマテリアルズ株式会社) 2011. 11. 04, 特許請求の範囲、段落 [0030] [0034] [0042] [0047] [0052]、図1、2 (ファミリーなし)	1-3, 5, 7, 9-11, 13-18

☒ c 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

IA 「特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの」

IE 「国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの」

IF 「優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)」

IG 「口頭による開示、使用、展示等に言及する文献」

IP 「国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

IT 「国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの」

IX 「特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの」

IY 「特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの」

r& 「同一パテントファミリー文献」

国際調査を完了した日

1 8 . 0 3 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 2 . 0 4 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 — 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

藤岡 善行

電話番号 0 3 — 3 5 8 1 — 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

2 0

9 2 2 5

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2006-269163 A (コニカ ミノルタ ホールディングス 株式会社) 2006. 10. 05, 特許請求の範囲、段落 [0 0 4 5] [0 0 5 9] [0 1 5 4]、図 6 (ファミリーなし)	1-3, 5 ,7 ,9-11 ,13 ,14 ,17 ,18
X	JP 2011-255603 A (東レ株式会社) 2011. 12. 22, 特許請求の範囲、 段落 [0 0 0 2] [0 0 0 3] [0 0 2 4]、図 2 (ファミリーなし)	1-3, 5 ,7 ,9-11 ,14 ,15 ,17 ,18