

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014 年 7 月 17 日(17.07.2014)

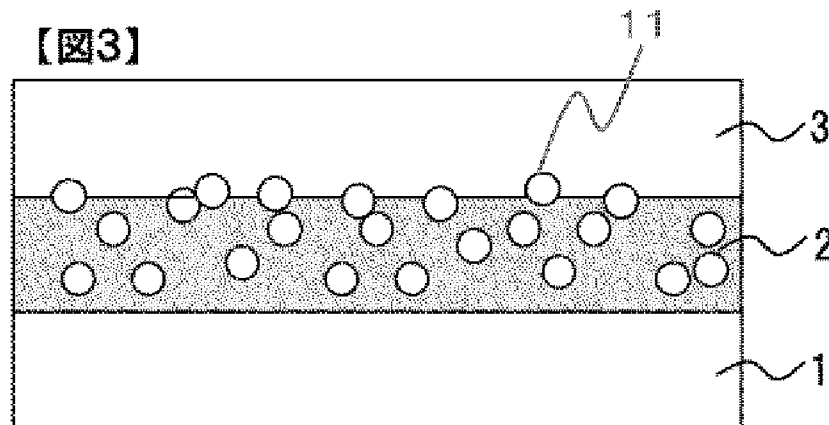


(10) 国際公開番号
WO 2014/109042 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/02 (2006.01) *H05B 33/22* (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/050352
- (22) 国際出願日: 2013 年 1 月 11 日(11.01.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人: 株式会社 日立製作所(HITACHI, LTD.)
[JP/JP]; 〒1008280 東京都千代田区丸の内一丁目
6 番 6 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 原田 素子(HARADA Motoko); 〒3191292
茨城県日立市大みか町七丁目 1 番 1 号 株式会
社 日立製作所 日立研究所内 Ibaraki (JP). 石原
慎吾(ISHIHARA Shingo); 〒3191292 茨城県日立市
大みか町七丁目 1 番 1 号 株式会社 日立製作
所 日立研究所内 Ibaraki (JP). 若菜 裕紀
(WAKANA Hironori); 〒1858601 東京都国分寺市東
恋ヶ窪一丁目 2 8 0 番地 株式会社 日立製作
所 中央研究所内 Tokyo (JP). 信木 俊一郎
(NOBUKI Shunichiro); 〒3191292 茨城県日立市大
みか町七丁目 1 番 1 号 株式会社 日立製作所
日立研究所内 Ibaraki (JP). 佐々木 洋(SASAKI
Hiroshi); 〒3191292 茨城県日立市大みか町七丁目
1 番 1 号 株式会社 日立製作所 日立研究所
内 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 井上 学, 外(INOUE Manabu et al.); 〒
1008220 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 1 号
株式会社 日立製作所内 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, MZ, 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
(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))
— 補正された請求の範囲及び説明書 (条約第 19 条
(1))

(54) Title: ORGANIC LIGHT-EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機発光素子



(57) Abstract: In the present invention, in order to improve the light extraction efficiency and obtain a flat ITO surface, a dispersant is imparted to scattering particles contained in the light extraction layer, and a planarizing layer is provided on the light extraction layer. In addition, the combination of resins in the light extraction layer and the planarizing layer is selected so that elution of the light extraction layer is prevented from taking place during planarization.

(57) 要約: 本発明は、光取り出し効率の向上を図るとともにITO表面の平坦性を得るため、光取り出し層中に含まれる散乱微粒子には分散剤を付与し、光取り出し層上には平坦化層を設けている。また、平坦化時に光取り出し層を溶出させないような光取り出し層と平坦化層の樹脂の組み合わせを選ぶものとする。

WO 2014/109042 A1

明 細 書

発明の名称：有機発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、照明器具、表示装置、液晶バックライト、表示装置などに用いられる有機発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネセンス素子（以下「有機発光素子」という。）は、薄型表示装置、液晶表示装置の照明装置として期待されている。有機発光表示装置は基板上に画素を構成する複数の有機発光素子と、その有機発光素子を駆動する駆動層からなる。この有機発光素子は反射電極と透明電極の間に複数の有機層が挟まれた構造を有している。複数の有機層としては、少なくとも正孔を輸送する輸送層と、電子を有する輸送層と、正孔と電子が再結合する発光層とを有している。そして、有機発光素子は両電極間に電圧を印加することにより、電極から注入された正孔と電子が発光層で再結合して発光するようになっている。

[0003] この有機発光素子は、屈折率が2弱の発光層で発光した光を屈折率が1の空気層に取り出す必要がある。屈折率の高い層から屈折率の低い層の界面では、界面法線方向に対して深い角度で入射した光が100%反射する臨界角を有する。すなわち、臨界角より深い角度で入射した光は、空気層へ出射されず、有機発光素子の内部に反射されてしまう。一般に、有機発光素子の空気層へ取り出せる光の割合は2割程度であり、8割の光は有機発光素子の内部に留まってしまう。

[0004] この課題に対して、近年、透明性の基板と透明電極の間に光取り出し層を備え、有機発光層で発行した光を光取り出し層および透明電極から透明性の基板を通して取り出す有機発光素子が開示されている（例えば特許文献1と2参照）。

[0005] 特許文献1では光取り出し層は光散乱層と平坦化層を備えている。光散乱

層は光散乱粒子とバインダー樹脂からなる光散乱領域と光散乱領域より光散乱粒子の含有比率が低い光透過領域が面方向で混在して形成されている。このような構成を設けることにより、正面取り出し光の低減を抑制しつつ、斜め方向への光取り出しの効率を増大して、高効率で光を取り出すことができることを報告している。しかし、光散乱粒子の含有密度が面方向で異なると、面方向での膜厚の均一性は劣ると考えられる。また、光散乱層表面の凹凸を平滑にするために平坦化層を設置している。しかし、平坦化層を構成する樹脂の屈折率がITOに比べると小さいために平坦化層へ取り出される光が大きく減少することが懸念される。

[0006] 特許文献2でも光取り出し層、透明樹脂と光透過性粒子を含有する平坦化層を具備した有機発光素子について報告しているが、透明樹脂の屈折率が小さいために平坦化層へ取り出される光が減少することや、光透過性粒子への表面処理もされていないことから粒子の凝集が予想される。

[0007] 特許文献3では光取り出し層に含まれる微粒子にシランカップリング処理を施しているが、平坦化層は設けていないために平坦性は十分に得られないと考えられる。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開2009-76452号公報

特許文献2：特開2006-100042号公報

特許文献3：特開2012-155868号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 有機層内で発光した光をITO電極（陽極）側から取り出すボトムエミッション型有機発光素子ではITO表面の平坦性が重要であり、基板と光取り出し層、光取り出し層と平坦化層の界面において密着性が十分得られることが望ましい。

[0010] そこで、本発明においては、光取り出し効率が高効率であるとともに、ITOの平坦性や上記界面における密着性に優れた有機発光素子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

[0011] 本発明は、光取り出し効率の向上を図るとともにITO表面の平坦性を得るため、光取り出し層中に含まれる散乱微粒子には分散剤を付与し、光取り出し層上には平坦化層を設けている。また、平坦化時に光取り出し層を溶出させないような光取り出し層と平坦化層の樹脂の組み合わせを選ぶものとする。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、有機発光素子の光取り出し効率の向上とともに、ITO表面の平坦性、基板と光取り出し層、光取り出し層と平坦化層の界面における密着性を改善することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]平坦化層の屈折率に対する発光層で発光した光の取り出し効率の関係性を示したグラフである。

[図2]有機発光素子の断面図である。

[図3]ガラス基板、光取り出し層、平坦化層の断面図である。

[図4]ガラス基板、光取り出し層、平坦化層の断面図である。

[図5]光取り出し層と平坦化層のAFMによる表面形状測定結果である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、図面を参照して本発明の実施例を詳細に説明する。なお、本発明は、以下の例に限定されるものではない。

[0015] 下部電極と上部電極には、2通りの組合せがある。

[0016] まず、下部電極が陽極、上部電極が陰極の構成である。この場合、第1注入層、第1輸送層は、それぞれ、正孔注入層、正孔輸送層となり、第2輸送層、第2注入層は、それぞれ、電子輸送層、電子注入層となる。他の組合せ

は、下部電極が陰極、上部電極が陽極の構成である。この場合、第1注入層、第1輸送層は、それぞれ、電子注入層、電子輸送層となり、第2輸送層、第2注入層は、それぞれ、正孔輸送層、正孔注入層となる。

[0017] また、前記構成において、第1注入層、或いは第2注入層を有さない構造も考えられる。さらに、第1輸送層、あるいは第2輸送層が発光層に兼ねる構造も考えられる。

[0018] 上部電極と下部電極には、一方の電極が発光光の透過性を有し、他方の電極が発光光の反射性を有する組合せが望ましい。その場合、透過性を有する電極から光を取出すため、同電極を光取出し電極と称する。

[0019] 一方、反射性を有する電極を反射電極と称する。上部電極が光取出し電極となる場合を、トップエミッション構造と称している。一方、下部電極が光取出し電極となる場合を、ボトムエミッション構造と称している。本発明における有機発光素子はボトムエミッション構造を指す。

[0020] 基板は、絶縁性の材料であれば広い範囲から選択することが可能である。

[0021] 具体的には、ガラス、アルミナ焼結体等の無機材料、ポリイミド膜、ポリエステル膜、ポリエチレン膜、ポリフェニルレンスルフィド膜、ポリパラキシレン膜等の各種絶縁性プラスチック等が使用可能である。

[0022] また、上記絶縁性の材料を表面上に形成すれば、金属材料（例えば、ステンレス、アルミ、銅、上記金属が含まれた合金等）でも問題ない。

[0023] 陽極は、正孔の注入効率を高める仕事関数の大きな導電膜が望ましい。

[0024] 具体的には、金、白金、が挙げられるが、これらの材料に限定されるわけではない。また、陽極として、酸化インジウムスズ（ITO）、酸化インジウム亜鉛（IZO）、酸化インジウムゲルマニウム等の2元系、或いは酸化インジウムスズ亜鉛等の3元系であってもよい。また、酸化インジウム以外にも酸化スズ、酸化亜鉛等を主成分とした組成であってもよい。また、ITOであれば、酸化インジウムに対して5－10wt%の酸化スズを含む組成が良く用いられる。

[0025] 酸化物半導体の製造法は、スパッタ法、EB蒸着法、イオンプレーティン

グ法等が挙げられる。ITO膜、IZO膜の仕事関数は、それぞれ、4.6 eV、4.6 eVであるが、UVオゾン照射、酸素プラズマ処理、等により、5.2 eV程度まで増大させることが可能である。

[0026] ITO膜は、スパッタ法を用い、基板温度を200℃程度まで高めた条件で作製すると多結晶状態になる。この多結晶状態では、結晶粒により、表面平坦性が悪いため、表面を研磨したものが望ましい。

[0027] また、他の方法として、アモルファス状態で形成したものを加熱して多結晶状態にしたものが望ましい。

[0028] また、陽極は、正孔注入層を設けることにより、仕事関数を大きい材料を用いる必要がなくなり、通常の導電膜でよくなる。具体的には、アルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル、等の金属や、これら金属を用いた合金や、ポリシリコン、アモルファスシリコン、錫酸化物、酸化インジウム、インジウム・錫酸化物（ITO）等の無機材料が望ましい。

[0029] また、陽極を反射電極として用いる場合、金属膜の反射電極に透明導電膜を積層した積層膜も考えられる。各層は上記材料が望ましい。また、形成プロセスが簡便な塗布法を用いたポリアニリン、ポリチオフェン等の有機材料、導電性インクを用いてもよい。陽極はこれらの材料に限られるわけではなく、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

[0030] 正孔注入層は、陽極と正孔輸送層の注入障壁を下げる役割を果たしている。したがって、正孔注入層には、適当なイオン化ポテンシャルを有する材料が望ましい。また、正孔注入層は、下地層の表面凹凸を埋める役割を果たすことが望ましい。

[0031] 具体的には、銅フタロシアニン、スターバーストアミン化合物、ポリアニリン、ポリチオフェン、酸化バナジウム、酸化モリブテン、酸化ルテニウム、酸化アルミニウム、等が挙げられるが、これらに限定されない。

[0032] また、正孔輸送層は、正孔を輸送し、発光層へ注入する役割を有する。そのため、正孔輸送層は、正孔移動度が高い正孔輸送性材料からなることが望ましい。また、正孔輸送層は、化学的に安定であり、イオン化ポテンシャル

が小さい、電子親和力が小さい、ガラス転移温度が高いなどの性質を備えることが望ましい。

[0033] 具体的には、N, N' -ビス (3-メチルフェニル) -N, N' -ジフェニル - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン (TPD)、4, 4' -ビス [N- (1-ナフチル) -N-フェニルアミノ] ビフェニル (α -NPD)、4, 4', 4' ' -トリ (N-カルバゾリル) トリフェニルアミン (TCTA)、1, 3, 5-トリス [N- (4-ジフェニルアミノフェニル) フェニルアミノ] ベンゼン (p-DPA-TDAB)、4, 4', 4' ' -トリス (N-カルバゾール) トリフェニルアミン (TCTA)、1, 3, 5-トリス [N, N-ビス (2-メチルフェニル) -アミノ] -ベンゼン (o-MTDAB)、1, 3, 5-トリス [N, N-ビス (3-メチルフェニル) -アミノ] -ベンゼン (m-MTDAB)、1, 3, 5-トリス [N, N-ビス (4-メチルフェニル) -アミノ] -ベンゼン (p-MTDAB)、4, 4', 4' ' -トリス [1-ナフチル (フェニル) アミノ] トリフェニルアミン (1-TNATA)、4, 4', 4' ' -トリス [2-ナフチル (フェニル) アミノ] トリフェニルアミン (2-TNATA)、4, 4', 4' ' -トリス [ビフェニル-4-イル- (3-メチルフェニル) アミノ] トリフェニルアミン (p-PMTDATA)、4, 4', 4' ' -トリス [9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル (フェニル) アミノ] トリフェニルアミン (TFATA)、4, 4', 4' ' -トリス (N-カルバゾイル) トリフェニルアミン (TCTA)、1, 3, 5-トリス- [N- (4-ジフェニルアミノフェニル) フェニルアミノ] ベンゼン (p-DPA-TDAB)、1, 3, 5-トリス {4- [メチルフェニル (フェニル) アミノ] フェニル} ベンゼン (MTDAPB)、N, N' -ジ (ビフェニル-4-イル) -N, N' -ジフェニル [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン (p-BPD)、N, N' -ビス (9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル) -N, N' -ジフェニルフルオレン-2, 7-ジアミン (PFFA)、N, N, N', N' -テトラキス (9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル) - [

1, 1-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン (FFD)、(NDA)PP、4-4'-ビス [N, N'-(3-トリル)アミノ]-3-3'-ジメチルビフェニル (HMTPD) が例示される。もちろんこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

[0034] また、正孔輸送層は、陽極との障壁を低下させる、或いは電気伝導度を向上させるなどの目的で、前記のような正孔輸送性材料に酸化剤を添加して用いることができる。

[0035] 酸化剤の具体例としては、塩化第2鉄、塩化アンモニウム、塩化ガリウム、塩化インジウム、五塩化アンチモン等のルイス酸化合物であり、トリニトロフルオレン等の電子受容性化合物である。もちろんこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

[0036] 発光層は、注入された正孔、電子が再結合し、材料固有の波長で発光する層をさす。発光層には、発光層を形成するホスト材料自体が発光する場合とホストに微量添加したドーパント材料が発光する場合がある。

[0037] 具体的なホスト材料としては、ジスチリルアリーレン誘導体 (DPVB i)、骨格にベンゼン環を有するシロール誘導体 (2PSP)、トリフェニルアミン構造を両端に有するオキソジアゾール誘導体 (EM2)、フェナンスレン基を有するペリノン誘導体 (P1)、トリフェニルアミン構造を両端に有するオリゴチオフエン誘導体 (BMA-3T)、ペリレン誘導体 (tBu-PTC)、トリス (8-キノリノール) アルミニウム、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体が挙げられる。

[0038] また、発光層に用いる具体的なドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン6、ナイルレッド、ルブレン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(パラジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン (DCM)、ジカルバゾール誘導体、ポルフィリン白金錯体 (PtOEP)、イリジウム錯体 (Ir(ppy)₃) が挙げられる。発光層はこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

- [0039] 電子輸送層は、電子を輸送し、発光層へ注入する役割を有する。そのため、電子輸送層は、電子移動度が高い電子輸送性材料からなることが望ましい。
- [0040] 具体的には、トリス（８－キノリノール）アルミニウム、オキサジアゾール誘導体、シロール誘導体、亜鉛ベンゾチアゾール錯体、バソキュプロイン（BCP）が望ましい。
- [0041] 電子輸送層では、前記電子輸送性材料に還元剤を含有して陰極との障壁を低くしたり、電気伝導度を向上させることが望ましい。
- [0042] 還元剤の具体例としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物、アルカリ金属と芳香族化合物で形成される錯体が挙げられる。特に、好ましいアルカリ金属はCs、Li、Na、Kである。
- [0043] 電子注入層は、陰極から電子輸送層への電子注入効率を向上させるために用いるものである。
- [0044] 具体的には、電子注入層の材料としては、弗化リチウム、弗化マグネシウム、弗化カルシウム、弗化ストロンチウム、弗化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウムが望ましい。
- [0045] 陰極には、電子の注入効率を高める仕事関数の小さな導電膜を使用することが望ましい。
- [0046] 具体的には、陰極の材料としては、マグネシウム・銀合金、アルミニウム・リチウム合金、アルミニウム・カルシウム合金、アルミニウム・マグネシウム合金、金属カルシウムが挙げられる。
- [0047] 一方、陰極に前述の電子注入層を設ければ、陰極の条件として、低仕事関数の材料を用いる必要がなくなり、一般的な金属材料を用いることが可能となる。
- [0048] この場合の陰極の材料としては、具体的には、アルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル、等の金属や、これら金属を用いた合金や、ポリシ

リコン、アモルファスシリコンを使用することができる。

[0049] 保護層は、上部電極上に形成され、大気内 H_2O 、 O_2 が上部電極、或いはその下の有機層に入りこむことを防ぐ役割を有する。

[0050] 具体的には、保護層の材料としては、 SiO_2 、 SiN_x 、 Al_2O_3 等の無機材料やポリクロロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリビニルクロライド、ポリフッ化ビニリデン、シアノエチルプルラン、ポリメチルメタクリレート、ポリサルフォン、ポリカーボネート、ポリイミド等の有機材料を使用することができる。

[0051] 前記の有機発光素子を各画素に用いることにより、有機発光表示装置とすることができる。ここで有機発光表示装置とは、有機発光素子を画素に用いた表示装置を指している。この有機発光表示装置には、単純マトリクス有機発光表示装置とアクティブマトリクス有機発光表示装置がある。

[0052] 単純マトリクス有機発光表示装置は、複数の陽極ラインと陰極ラインが交差した位置に正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の有機発光素子を構成する有機層が形成されており、各画素は1フレーム期間中、選択時間のみ点灯する。この選択時間は、1フレーム期間を陽極ライン数で除した時間幅となる。

[0053] アクティブマトリクス有機発光表示装置では、各画素を構成する有機発光素子に、2～4個の薄膜トランジスタのスイッチング素子及び容量から構成される駆動素子が接続されており、1フレーム期間中の全点灯が可能となる。そのため、輝度を高くする必要がなく、有機発光素子の寿命を長くすることが可能となる。有機発光表示装置には、色変換層を用いることが望ましい。

[0054] 画素は、表示装置の画面の縦横に多数配置されて、表示領域において文字やグラフィックを表示する最小単位のものである。

[0055] また、サブ画素というのは、カラー表示を行う表示装置において、画素をさらに分割する最小単位のものである。カラー画像においては、緑、赤、青の3色のサブ画素で構成される構造が一般的である。

[0056] また、表示領域というのは、表示装置において、画像が表示される領域をいっている。

[0057] 電流供給線は、有機発光素子と電源を接続する配線である。アクティブマトリクス有機発光表示装置において、第1の電流供給線は、電源とスイッチング素子のソース、ドレイン電極を介して、有機EL素子の下部電極を接続する配線のことである。また、アクティブマトリクス有機発光表示装置において、第2の電流供給線は、電源と各画素の共通電極となる上部電極を接続する配線のことである。

[0058] 有機発光素子では発光層で発光した光を高効率で取り出すことを目的として、光取り出し層（光散乱層）を設けることが多い。通常光取り出し層は散乱体として粒径数十～数 μm の BaTiO_3 、 ZrO_2 、ルチル型 TiO_2 などの高屈折率微粒子（屈折率は2以上）を入れるが、光取り出し層の表面の凹凸をならすために平坦化層を設ける場合もある。本発明では平坦性をさらに向上させるため、散乱微粒子に分散剤を付与している。分散剤は微粒子同士の凝集の抑制を目的として使われるシランカップリング剤等の表面処理剤を指す。微粒子表面にシランカップリング剤などを用いて分子を修飾することで分散性の向上が期待される。本発明では散乱微粒子の分散性付与と平坦化層の設置により、これまでに比べると大幅に平坦性を改善している。散乱微粒子の添加量は5～15vol%であることが望ましい。5vol%を下回ると散乱回数が減少して十分な光取り出し効率が得られず、15vol%を超えると光取り出し層を構成する樹脂との間に空隙ができやすく、十分な密着性を得ることができない。散乱微粒子の粒径の範囲は100～800nmであることが望ましい。この粒径範囲では光取り出し効率が高効率で得られることが、シミュレーションより明らかになっている。粒径が100nmを下回ると非常に凝集しやすく、800nmを超えると表面の凹凸が大きくなり、平坦化層を設置しても十分な平坦化効果を得られない可能性が高い。平坦化層は2～10 μm の膜厚であれば十分な平坦化が得られると考えられる。2 μm を下回ると十分な平坦化効果が得られず、10 μm を超えると平坦化

層の硬化に時間がかかり、作業性が低下するためである。

[0059] 図1は平坦化層の屈折率に対する発光層で発光した光の取り出し効率の関係性を示したグラフである。ここでは、発光層で発光した光が平坦化層に取りだされるモデルを用いてシミュレーションを行い、平坦化層は空気層に接していると仮定した。外部モードが空気層に取りだされる光、基板モードが平坦化層に取りだされる光、薄膜モードはITOに取りだされる光である。これによると平坦化層の屈折率が上昇するにつれて平坦化層に取り出せる光は増加している。特許文献の光取り出し層（光散乱層と平坦化層を合わせたもの）を構成する樹脂の屈折率は1.45～1.6であり、平坦化層における取り出し効率は最大で64%である。本発明では樹脂の屈折率を1.7以上に定めているが、その理由は下記の通りである。白色の有機発光素子では発光効率は最大で400lm/Wである。有機層で発光した光は表面プラズモンや熱によって10%程度失われるため、残りの90%を効率良く取り出せるかどうか課題である。

[0060] 白色LEDの発光効率は将来的に200～250lm/Wと予測されていることから、有機発光素子でも250lm/W程度の光を取り出す必要がある。この数値を達成するにはシミュレーションの計算結果から平坦化層に76%以上の光を取り出せれば良く、図1に示すように平坦化層の屈折率が1.7以上であれば取り出し効率が76%以上になることが分かる。

光取り出し層と平坦化層は屈折率が1.7以上であればよいので、これらを構成する樹脂を1.7以上のものを選べば良く、あるいは樹脂の屈折率が1.7以下であるならば屈折率が2～2.6の高屈折率ナノ粒子を加えて屈折率を1.7以上に調整しても構わない。

[0061] ナノ粒子の含有量は25～60vol%であることが望ましい。25vol%を下回ると十分な高屈折率化の効果が得られず、60vol%を超えると膜中に空隙ができて膜質が著しく低下するためである。

[0062] ここではナノ粒子は粒径が数nm～数十nm（好ましくは1nm～40nm）の粒子を指す。材質としては、 ZrO_2 、ルチル型 TiO_2 、 $BaTiO_3$ の

屈折率が2以上の無機粒子を選ぶことが好ましい。

[0063] 光取り出し層と平坦化層を構成する樹脂の選択方法を以下に示す。光取り出し層と平坦化層の密着性を確保するには、平坦化時に光取り出し層の溶出を起こさないことが必要である。樹脂と樹脂の積層を行う際には、界面の密着性を向上させるために樹脂の硬化を完全に行わず、未硬化成分（反応性官能基）を残すこともある。しかし、BaTiO₃などの無機物を入れた樹脂層の積層は、有機物と無機物が混ざった界面であるために接着性を得るのは難しい。つまり、このような複合材料の界面である場合、上層の樹脂を塗布する溶媒が下層の樹脂の未硬化成分を溶解させ、界面の接着性を低下させることがある。本発明では上層（平坦化層）と下層（光取り出し層）が互いの樹脂を溶解させない組み合わせにすることによって、有機物と無機物が混ざった界面においても良好な密着性を得ることができる。光取り出し層の樹脂と平坦化層の樹脂とが互いに溶解させない関係にあることの指標の一つとして、2つの樹脂の溶解パラメータ（SP値）の差が1以上であることが挙げられる。

[0064] 光取り出し層は（1）構造式の繰り返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、（2）窒素、硫黄などの複素環を含有する樹脂、（3）フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂、のいずれかで構成することが好ましい。一般的に（1）や（2）の樹脂は屈折率が1.6以上で高屈折率の場合が多く、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂も屈折率が1.7である。

[0065] 平坦化層も高屈折率であることが必要であることから、基本的に光取り出し層と同様の樹脂を選べばよい。ただし、光取り出し層の未硬化成分を溶出させる溶媒を平坦化層の溶媒に用いることはできない。光取り出し層の耐薬品性は分子間架橋をすることで高めることができるため、分子間架橋する樹脂ならばさらに好ましい。なお、平坦化層は光取り出し層を溶出させなければ良く、メタクリル酸メチル樹脂のように分子間架橋しない樹脂でも構わない。

(実施例 1)

本発明に係る有機発光素子の実施形態を図面に基づいて説明する。図 2 に本発明の実

施例 1 である有機発光素子の断面構造を示す。

[0066] 本実施例 1 の有機発光素子は、図 1 に示すようにガラス基板 1 の上に、光取り出し層 2、平坦化層 3、陽極として機能する ITO 電極 4、正孔注入層 5、正孔輸送層 6、発光層 7、電子輸送層 8、電子注入層 9、Ag 電極 10 をこの順番で備えて構成されている。

[0067] 光取り出し層 2 の形成前にガラス基板 1 はアセトン、イソプロピルアルコールでそれぞれ 10 分間ずつ超音波洗浄した後、プラズマ洗浄を行った。本実施例において、平坦化層 3 は光取り出し層 2 の表面凹凸を緩和するために ITO 電極 4 に接して設けられている。

[0068] 図 3 と図 4 にガラス基板 1、光取り出し層 2、平坦化層 3 の断面図を示す。本実施例では光取り出し層 2 は高屈折率樹脂、ナノ粒子 (ZrO_2 ナノ粒子) 12、散乱微粒子 ($BaTiO_3$ 散乱微粒子) 11 からなっており、図 4 の組成が相当する。図 3 のように光取り出し層 2 がナノ粒子 12 を含まず、高屈折率樹脂と散乱微粒子 11 からなる場合でも構わない。または、光取り出し層 2 が高屈折率樹脂と散乱微粒子 11、平坦化層 3 が高屈折率樹脂とナノ粒子 12 からなる構造でも構わない。平坦化層 3 は屈折率が 1.76 のトリアジン環含有樹脂を用いた。

[0069] 光取り出し層 2 はフルオレン系エポキシ樹脂に ZrO_2 ナノ粒子を高分散させ、さらに散乱微粒子を加えた構成となっている。形成方法は以下の通りである。メチルエチルケトンを経済性とする ZrO_2 ナノ粒子スラリー (堺化学工業株式会社製 SZR-K) 10.23 g に対し、フルオレン系エポキシ樹脂 0.3 g (大阪ガスケミカル株式会社製 CG-500)、フェノールノボラック系硬化剤 (大阪ガスケミカル株式会社製 NV-203-R) 40.179 g、トリフェニルホスフィン (関東化学株式会社製) 0.0048 g を加えてスターラーで 10 分間攪拌した。光取り出し層 2 の $BaTiO_3$ は分

散性を上げるため、下記の方法で表面修飾をした。

[0070] メチルエチルケトン 8 g に 3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン 0.02 g (信越化学株式会社製 KBE-9007) を溶解させた溶媒に、平均粒径 400 nm の BaTiO₃ (共立マテリアル株式会社製、BT-HP9DX) 2 g を加えてホモジナイザーで 30 分間攪拌した。その後乳鉢に移して 10 分間攪拌した後、溶媒を除去して 120℃ 30 分間加熱した。再び乳鉢で 10 分間攪拌して表面修飾した BaTiO₃ 粒子を作製した。続いて前記シランカップリング剤を修飾した BaTiO₃ を 0.581 g 加え、ホモジナイザーで 10 分間攪拌した。前記ガラス基板 1 にスピncóターによって 350 rpm で 5 秒、1000 rpm で 40 秒の条件によって塗布し、150℃ 1 時間加熱することによって厚み約 2 μm の光取り出し層 2 を形成した。

[0071] このように形成した光取り出し層 2 の表面に、シクロヘキサノン を溶媒とする トリアジン環含有樹脂塗布液 (日産化学工業株式会社製 UR-501) をスピncóターによって 200 rpm で 5 秒、1500 rpm で 30 秒の条件によって塗布し、100℃ 1 分間、200℃ 5 分間で過熱することによって厚み約 2 μm の平坦化層 3 を形成した。

[0072] 平坦化層 3 を形成後の密着性をセロテープ剥離試験によって評価したところ、剥離は見られなかった。ガラス基板 1 と光取り出し層 2、光取り出し層 2 と平坦化層 3 の密着性は良好であった。図 5 (a) に本実施例 (実施例 1) において、光取り出し層 2 と平坦化層 3 の AFM による表面形状測定結果を示す。光取り出し層 2 と平坦化層 3 の平坦性について AFM による表面形状測定結果からライン分析して表面粗さ Ra (N=3) を算出したところ、光取り出し層 2 の Ra は 37.0 nm、平坦化層 3 の Ra は 4.58 nm であり、平坦性は大きく向上した。

[0073] 次に、スパッタリング法により、膜厚 50 nm の ITO 膜を形成する。この膜は下部電極 4 として機能し、非晶酸化物膜である。

[0074] 続いて、下部電極 4 上に、真空蒸着法により 4, 4'-ビス [N-(1-

ナフチル) -N-フェニルアミノ] ビフェニル (以下、 α -NPDと称する。) と五酸化バナジウム (V_2O_5) とを共蒸着して膜厚が50 nm程度の第1の共蒸着膜を形成する。 α -NPDと V_2O_5 の混合比は、モル比で1 : 1となるよう、それぞれの蒸着速度を決定した。この第1の共蒸着膜は正孔注入層5として機能する。次に、正孔注入層5上に、真空蒸着法により膜厚50 nmの α -NPD膜を形成する。 α -NPDの蒸着速度は0.5 nm/secとした。この α -NPD膜は正孔輸送層6として機能する。次に、正孔輸送層6上に、真空蒸着法により4, 4'-N, N'-ジカルバゾール-ビフェニル (以下「CBP」という。) 及びビス [2- (2'-ベンゾ [4, 5-a] チエニル) ピリジネイト-N, C3'] イリジウム (アセチラセトネイト) (以下「Brp2Ir(acac)」という。) を共蒸着して膜厚が40 nm程度の第2の共蒸着膜を形成する。このCBP、Brp2Ir(acac)の蒸着速度は、それぞれ0.20 nm/sec、0.02 nm/secとした。この第2の共蒸着膜は、発光層7として機能する。また、発光層7の中で、Brp2Ir(acac)が発光色を決定するドーパントとして機能する。次に、発光層7の上に、真空蒸着法により、膜厚60 nmのトリス (8-キノリノール) アルミニウム (以下「Alq3」という。) 膜を形成する。Alq3の蒸着速度を0.2 nm/secとした。このAlq3膜は電子輸送層8として機能する。次に、電子輸送層8の上に、バッファ層7としてMgとAgの共蒸着膜を形成する。この場合、2元同時真空蒸着法を用いて蒸着速度を、それぞれ0.14 nm/sec、0.01 nm/secに設定し、膜厚10 nmの膜を蒸着した。MgとAgの共蒸着膜は、その上の上部電極形成時の下地有機膜保護と電子注入層9の両方の機能を有する。Agからなる上部電極10を形成する。膜厚は、150 nmである。このようにしてボトムエミッション型有機発光素子11は完成する。

[0075]

[表1]

表1 光取り出し層と平坦化層の組成、密着性と平坦性の評価結果

	光取り出し層			平坦化層		評価結果	
	樹脂	ZrO ₂	散乱微粒子	樹脂	ZrO ₂	密着性	表面粗さRa(nm)
実施例1	フルオレン系エポキシ	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:400nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:B	トリアジン環含有	なし	○	光取り出し層:37.0 平坦化層:4.58
実施例2	フルオレン系エポキシ	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:400nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:C	トリアジン環含有	なし	○	光取り出し層:34.0 平坦化層:8.36
実施例3	フルオレン系エポキシ	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:400nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:D	トリアジン環含有	なし	○	光取り出し層:30.0 平坦化層:4.57
実施例4	フルオレン系エポキシ	なし	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:200nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:D	チオウレタン	あり	○	光取り出し層:35.6 平坦化層:10.2
実施例5	エビスルフィド	なし	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:200nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:B	トリアジン環含有	あり	○	光取り出し層:39.8 平坦化層:9.65
実施例6	ポリメタクリル酸メチル	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:200nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:D	チオウレタン	なし	○	光取り出し層:47.2 平坦化層:11.0
実施例7	S含有塩化ビニル	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:200nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:C	エビスルフィド	なし	○	光取り出し層:46.9 平坦化層:8.38
比較例1	フルオレン系エポキシ	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:400nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:B	フルオレン系エポキシ	なし	×	光取り出し層:40.2 平坦化層:23.9
比較例2	フルオレン系エポキシ	あり	・種類:BaTiO ₃ ・粒径:400nm ・濃度:10vol% ・表面修飾:A	トリアジン環含有	なし	○	光取り出し層:98.0 平坦化層:26.5

■散乱微粒子の表面処理剤

A:被覆なし

B:3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン

C:3-グリシドプロピルトリエトキシシラン

D:3-アミノプロピルトリメトキシシラン

■密着性の指標

○:光取り出し層、平坦化層ともに剥離なし

×:光取り出し層、平坦化層ともに剥離

[0076] 表1は実施例1～7の光取り出し層2と平坦化層3の組成、密着性と平坦性の評価結果について示したものである。

[0077] 実施例2～7は、光取り出し層2に含まれるBaTiO₃を修飾するシランカップリング剤の組成、あるいは光取り出し層2と平坦化層3の樹脂組成を変えた場合の密着性と平坦性について評価した結果を示したものである。

[0078] 実施例1～7において、ZrO₂ナノ粒子が光取り出し層2と平坦化層3のいずれか一方に含まれているが、ZrO₂ナノ粒子が含まれていることは必須要件ではない。

- [0079] 実施例 1 において、フルオレン系エポキシ樹脂はフルオレン骨格を有するエポキシ樹脂であり、トリアジン環含有樹脂は窒素の複素環を有する樹脂である。散乱微粒子は B : 3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランにより表面処理されている。実施例 1 においては、密着性が良く、表面粗さ R_a は光取り出し層 2、平坦化層 3 とともに低いという結果が得られた。
- [0080] 実施例 2 において、フルオレン系エポキシ樹脂はフルオレン骨格を有するエポキシ樹脂であり、トリアジン環含有樹脂は窒素の複素環を有する樹脂である。散乱微粒子は C : 3-グリシドプロピルトリエトキシシランにより表面処理されている。実施例 2 においては、密着性が良く、表面粗さ R_a は光取り出し層 2、平坦化層 3 とともに低いという結果が得られた。
- [0081] 実施例 3 において、フルオレン系エポキシ樹脂はフルオレン骨格を有するエポキシ樹脂であり、トリアジン環含有樹脂は窒素の複素環を有する樹脂である。散乱微粒子は D : 3-アミノプロピルトリメトキシシランにより表面処理されている。実施例 3 においては、密着性が良く、表面粗さ R_a が光取り出し層 2、平坦化層 3 とともに低いという結果が得られた。
- [0082] 実施例 4 において、フルオレン系エポキシ樹脂はフルオレン骨格を有するエポキシ樹脂であり、チオウレタンは構造式の繰返し単位の一部が硫黄で置換されている樹脂である。散乱微粒子は D : 3-アミノプロピルトリメトキシシランにより表面処理されている。実施例 4 においては、密着性が良く、表面粗さ R_a が光取り出し層 2、平坦化層 3 とともに低いという結果が得られた。
- [0083] 実施例 5 において、エピスルフィドは硫黄の複素環を有する樹脂であり、トリアジン環含有樹脂は窒素の複素環を有する樹脂である。散乱微粒子は B : 3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランにより表面処理されている。実施例 5 においては、密着性が良く、表面粗さ R_a は光取り出し層 2、平坦化層 3 とともに低いという結果が得られた。
- [0084] 実施例 6 において、ポリメタルクル酸メチルはメタクリル酸メチルであり、チオウレタンは構造式の繰返し単位の一部が硫黄で置換されている樹脂

である。散乱微粒子はD：3-アミノプロピルトリメトキシシランにより表面処理されている。実施例6においては、密着性が良く、表面粗さR_aは光取り出し層2、平坦化層3ともに低いという結果が得られた。

[0085] 実施例7において、S含有塩化ビニルは構造式の繰り返し単位の一部が硫黄で置換されている樹脂であり、エピスルフィドは硫黄の複素環を有する樹脂である。散乱微粒子はC：3-グリシドプロピルトリエトキシシランにより表面処理されている。実施例7においては、密着性が良く、表面粗さR_aは光取り出し層2、平坦化層3ともに低いという結果が得られた。

[0086] 以上、実施例1～7において、光取り出し層2と平坦化層3とを異なる樹脂で構成している。これらの樹脂はいずれも互いに一方の樹脂を溶解させない関係にある。ここでは全てを例示しないが、いずれも互いに一方の樹脂を溶解させない関係にあれば、光取り出し層2の樹脂は、構造式の繰り返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂から選択して用いることができる。平坦化層3の樹脂は、構造式の繰り返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂、メタクリル酸メチル樹脂から選択して用いることができる。

(比較例1)

実施例1と同様に光取り出し層2を形成後に、平坦化層3を形成した。光取り出し層2の組成は実施例1と同様であるが、平坦化層3は光取り出し層2と同じフルオレン系エポキシ樹脂からなる。平坦化層3を形成後に、セロテープ剥離試験を実施したところ、平坦化層3は全面剥離し、光取り出し層2も一部剥離し、密着性は非常に悪かった。一方、散乱微粒子はB：3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランにより表面処理されており、平坦性は良好であった。

(比較例2)

実施例1と同様に光取り出し層2を形成後に、平坦化層3を形成した。

光取り出し層 2 の樹脂と ZrO_2 の組成は実施例 1 と同様であるが、 $BaTiO_3$ へのシランカップリング処理は行わなかった。平坦化層 3 の組成は実施例 1 と同様である。平坦化層 3 形成後に密着性を評価したところ、良好であった。しかし、散乱微粒子は C : 被覆なしのため、平坦性を評価したところ、表面粗さ R_a が大きい箇所があり、面内での平坦性は不均一であった。（図 5 (b)）

符号の説明

- [0087] 1…ガラス基板、2…光取り出し層、3…平坦化層、4…ITO電極、5…正孔注入層、6…正孔輸送層、7…発光層、8…電子輸送層、9…電子注入層、10…Ag電極、
11…散乱微粒子、12…ナノ粒子

請求の範囲

- [請求項1] 基板、光取り出し層、平坦化層、第一の電極、有機層及び第二の電極を有する有機発光素子であって、
前記基板の上に前記光取り出し層が形成され、
前記光取り出し層の上に前記平坦化層が形成され、
前記平坦化層の上に前記第一の電極が形成され、
前記第一の電極の上に前記有機層が形成され、
前記有機層の上に第二の電極が形成され、
前記有機層には発光層が含まれ、
前記光取り出し層には散乱微粒子が含まれ、
前記光取り出し層及び前記平坦化層の屈折率は1.7以上であることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項2] 請求項1に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子は分散剤により表面処理されていることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項3] 請求項1または2に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子の屈折率は2以上であることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項4] 請求項3に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子の平均粒径が100～800nmであることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項5] 請求項4に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子は、BaTiO₃またはルチル型TiO₂であることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項6] 請求項1乃至5のいずれかに記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子が前記光取り出し層において5～15vol%含まれることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項7] 請求項1乃至6のいずれかに記載の有機発光素子において、

前記光取り出し層または前記平坦化層には、屈折率が2以上で、粒径が1～40 nmのナノ粒子が含まれることを特徴とする有機発光素子。

[請求項8] 請求項7に記載の有機発光素子において、
前記平坦化層の厚さが2～10 μm であることを特徴とする有機発光素子。

[請求項9] 請求項7または8に記載の有機発光素子において、
前記ナノ粒子が前記光取り出し層または前記平坦化層において30～60 vol %含まれることを特徴とする有機発光素子。

[請求項10] 請求項1乃至9のいずれかに記載の有機発光素子において、
前記光取り出し層には第一の高屈折率樹脂が含まれ、
前記平坦化層には第二の高屈折率樹脂が含まれ、
前記第一の高屈折率樹脂と前記第二の高屈折率樹脂とは、互いに一方の樹脂を溶解させない関係にあることを特徴とする有機発光素子。

[請求項11] 請求項10に記載の有機発光素子において、
前記第一の高屈折率樹脂の溶解パラメータを示すSP値と、前記第二の高屈折率樹脂の溶解パラメータを示すSP値の差が、1以上であることを特徴とする有機発光素子。

[請求項12] 請求項10または11に記載の有機発光素子において、
前記第一の高屈折率樹脂は、構造式の繰返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂のいずれかであることを特徴とする有機発光素子。

[請求項13] 請求項10乃至12のいずれかに記載の有機発光素子において、
前記第二の高屈折率樹脂は、構造式の繰返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂、メタクリル酸メチル樹脂のいずれかであることを特徴とする有機発光素子。

補正された請求の範囲
[2014年2月3日(03.02.2014)国際事務局受理]

- [請求項 1] (補正後) 基板、光取り出し層、平坦化層、第一の電極、有機層及び第二の電極を有する有機発光素子であって、
前記基板の上に前記光取り出し層が形成され、
前記光取り出し層の上に前記平坦化層が形成され、
前記平坦化層の上に前記第一の電極が形成され、
前記第一の電極の上に前記有機層が形成され、
前記有機層の上に第二の電極が形成され、
前記有機層には発光層が含まれ、
前記光取り出し層には、屈折率は2以上で、平均粒径が100～800nmの散乱微粒子が含まれ、
前記光取り出し層及び前記平坦化層の屈折率は1.7以上であり、
前記光取り出し層または前記平坦化層には、屈折率が2以上で、粒径が1～40nmのナノ粒子が含まれることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 2] 請求項1に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子は分散剤により表面処理されていることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 3] (削除)
- [請求項 4] (削除)
- [請求項 5] 請求項4に記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子は、BaTiO₃またはルチル型TiO₂であることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 6] 請求項1乃至5のいずれかに記載の有機発光素子において、
前記散乱微粒子が前記光取り出し層において5～15vol%含まれることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 7] (削除)
- [請求項 8] 請求項7に記載の有機発光素子において、
前記平坦化層の厚さが2～10μmであることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 9] 請求項7または8に記載の有機発光素子において、
前記ナノ粒子が前記光取り出し層または前記平坦化層において30～60vol%含まれることを特徴とする有機発光素子。
- [請求項 10] 請求項1乃至9のいずれかに記載の有機発光素子において、
前記光取り出し層には第一の高屈折率樹脂が含まれ、
前記平坦化層には第二の高屈折率樹脂が含まれ、

前記第一の高屈折率樹脂と前記第二の高屈折率樹脂とは、互いに一方の樹脂を溶解させない関係にあることを特徴とする有機発光素子。

[請求項 1 1] 請求項 1 0 に記載の有機発光素子において、

前記第一の高屈折率樹脂の溶解パラメータを示す S P 値と、前記第二の高屈折率樹脂の溶解パラメータを示す S P 値の差が、1 以上であることを特徴とする有機発光素子。

[請求項 1 2] 請求項 1 0 または 1 1 に記載の有機発光素子において、

前記第一の高屈折率樹脂は、構造式の繰返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂のいずれかであることを特徴とする有機発光素子。

[請求項 1 3] 請求項 1 0 乃至 1 2 のいずれかに記載の有機発光素子において、

前記第二の高屈折率樹脂は、構造式の繰返し単位の一部が塩素、臭素または硫黄で置換されている樹脂、窒素または硫黄の複素環を有する樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂、メタクリル酸メチル樹脂のいずれかであることを特徴とする有機発光素子。

条約第19条(1)に基づく説明書

1. 補正の内容

請求項1に、請求項3、4、7の内容を追加する補正を行いました。

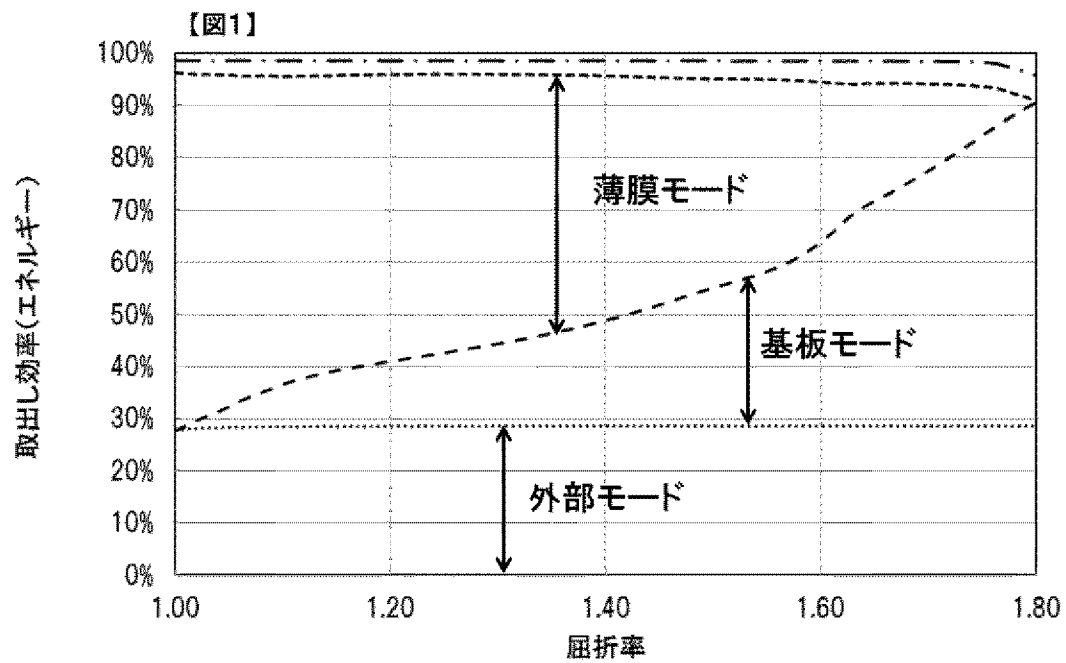
請求項3、4、7を削除しました。

2. 説明

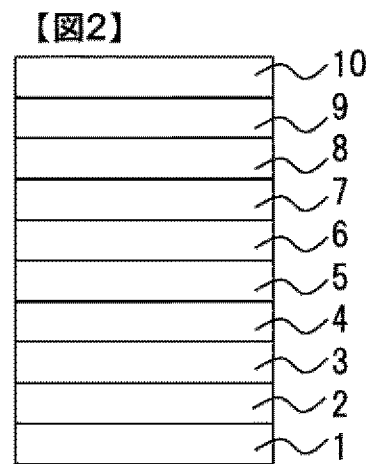
いずれの引用文献についても「前記光取り出し層には、屈折率は2以上で、平均粒径が100～800nmの散乱微粒子が含まれ、・・・前記光取り出し層または前記平坦化層には、屈折率が2以上で、粒径が1～40nmのナノ粒子が含まれる」こと、すなわち特徴の異なる2つの粒子を含むことを開示、示唆、動機づける記載はありません。

以上

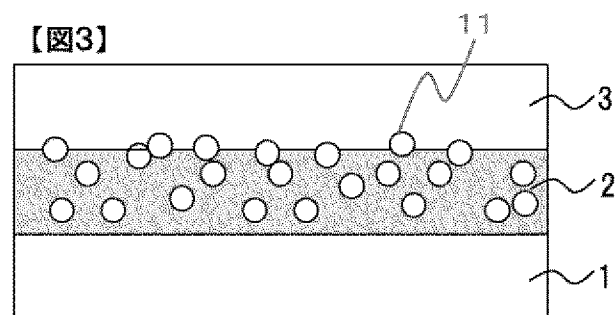
[図1]



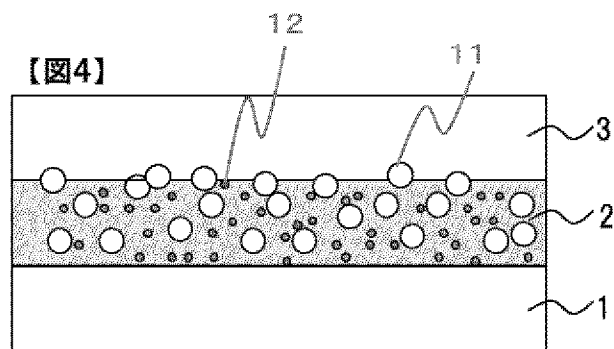
[図2]



[図3]



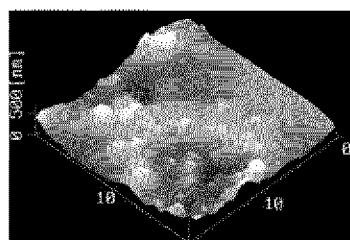
[図4]



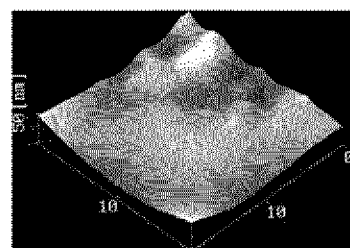
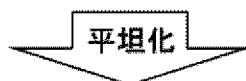
[図5]

【図5】

(a)実施例1

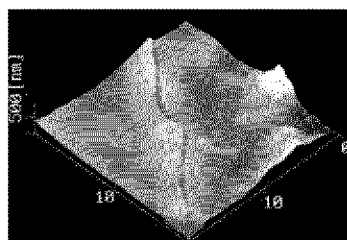


Ra=37.0nm

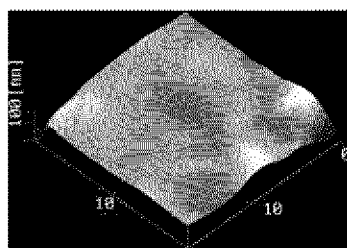
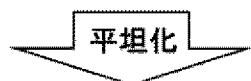


Ra=4.58nm

(b)比較例2



Ra=98.0nm



Ra=26.5nm

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/050352

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/02(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/22(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)

H05B33/02, H01L51/50, H05B33/22

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	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 Y	JP 2012-155177 A (Fujifilm Corp.), 16 August 2012 (16.08.2012), paragraphs [0001], [0011] to [0022], [0061] to [0067], [0070], [0073], [0075], [0132] to [0162]; fig. 1, 2 (Family: none)	1, 6-10, 12-13 2-5, 11
X Y	JP 2006-294491 A (Seiko Epson Corp.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraphs [0005], [0015], [0020], [0022]; fig. 1 (Family: none)	1, 6 2-5, 7-13

☒ 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

“T” 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
08 April, 2013 (08.04.13)

Date of mailing of the international search report
23 April, 2013 (23.04.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/050352

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2005/115740 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 08 December 2005 (08.12.2005), claim 16; paragraphs [0001], [0016], [0019], [0046], [0050], [0052], [0056], [0057], [0064], [0091], [0094]; fig. 5 & US 2007/0267966 A1 & KR 10-2007-0024487 A & CN 1942308 A	1, 6 2-5, 7-13
Y	JP 2012-155868 A (Hitachi, Ltd.), 16 August 2012 (16.08.2012), paragraphs [0035], [0047], [0048], [0053] to [0055] & WO 2012/102243 A1	2-5
X Y	JP 2009-4275 A (Panasonic Electric Works Co., Ltd.), 08 January 2009 (08.01.2009), claim 1; paragraphs [0022], [0023], [0030], [0034], [0045], [0055], [0057], [0070]; fig. 1 (Family: none)	1, 6 2-5, 7-13
Y	JP 2007-188672 A (Asahi Kasei Corp.), 26 July 2007 (26.07.2007), claim 1; paragraph [0004] (Family: none)	11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05B33/02 (2006.01)i, H01L51/50 (2006.01)i, H05B33/22 (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. H05B33/02, H01L51/50, H05B33/22

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 Y	JP 2012-155177 A (富士フイルム株式会社) 2012.08.16, 段落【0001】、【0011】 - 【0022】、【0061】 - 【0067】、【0070】、【0073】、【0075】、【0132】 - 【0162】、図1、図2 (ファミリーなし)	1, 6 - 10, 12 - 13 2 - 5, 11
X Y	JP 2006-294491 A (セイコーエプソン株式会社) 2006.10.26, 段落【0005】、【0015】、【0020】、【0022】、図1 (ファミリーなし)	1, 6 2 - 5, 7 - 13

☒ 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

「A」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
「E」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
「L」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)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」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

「T」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
「X」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
「Y」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
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 8 . 0 4 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

2 3 . 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)

池田 博一

2 0

3 4 9 1

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

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 Y	WO 2005/115740 A1 (日産化学工業株式会社) 2005.12.08, 請求項 1 6, 段落【0001】, 【0016】, 【0019】, 【0046】, 【0 050】, 【0052】, 【0056】, 【0057】, 【0064】, 【0 091】, 【0094】, 図5 & US 2007/0267966 A1 & KR 10-2007-0024487 A & CN 1942308 A	1, 6 2-5, 7- 13
Y	JP 2012-155868 A (株式会社日立製作所) 2012.08.16, 段落【00 35】, 【0047】, 【0048】, 【0053】-【0055】 & WO 2012/102243 A1	2-5
X Y	JP 2009-4275 A (パナソニック電気株式会社) 2009.01.08, 請求項 1, 段落【0022】, 【0023】, 【0030】, 【0034】, 【0 045】, 【0055】, 【0057】, 【0070】, 図1 (ファミリー なし)	1, 6 2-5, 7- 13
Y	JP 2007-188672 A (旭化成株式会社) 2007.07.26, 請求項 1, 段落 【0004】 (ファミリーなし)	11