

(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  
2013年5月23日(23.05.2013)



(10) 国際公開番号  
WO 2013/073301 A1

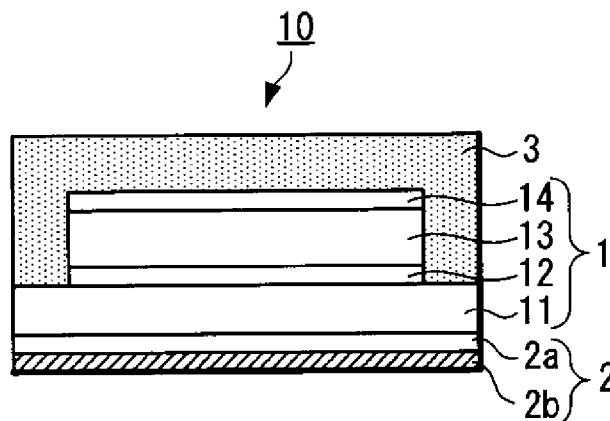
- (51) 国際特許分類:  
H05B 33/02 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)  
G02B 5/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/075690
- (22) 国際出願日: 2012年10月3日(03.10.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2011-248367 2011年11月14日(14.11.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタ株式会社(Konica Minolta, Inc.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (71) 出願人(米国についてのみ): 上澤 邦明(UEZAWA Kuniaki) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP). 遠西 正数(TONISHI Masakazu) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町2970番地 コニカミノルタアドバンストレイヤー株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人信友国際特許事務所(SHINYU INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1510073 東京都渋谷区笹塚2-1-6 笹塚センタービル 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,

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND PLANAR LIGHT-EMITTING BODY

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、面状発光体

FIG. 1



(57) Abstract: Provided is an organic EL element having both excellent light extraction efficiency and excellent weather resistance. The organic EL element (10) has a configuration comprising: an organic EL element main body (1) including an organic compound layer (13) including a light-emitting layer; and a light extraction sheet (2) provided on the light-extraction side of the organic EL element main body (1). In addition, the organic EL element (10) is characterized by: the light extraction sheet (2) including a silicon compound; the haze value of the light extraction sheet (2) being at least 90; and the total light transmittance of the light extraction sheet (2) being at least 80%.

(57) 要約: 光取り出し効率及び耐候性の両方に優れた有機EL素子を提供する。有機EL素子10を、発光層を含む有機化合物層13を含む有機EL素子本体部1と、有機EL素子本体部1の光取り出し側に設けられた光取り出しシート2とを備える構成とする。そして、有機EL素子10では、光取り出しシート2がシリコン化合物を含み、光取り出しシート2のヘイズ値が90以上の値であり、かつ、光取り出しシート2の全光透過率が80%以上の値であることを特徴とする。



WO 2013/073301 A1

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))

## 明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、面状発光体

### 技術分野

[0001] 本発明は、例えば、表示装置、照明装置等の用途に適用可能な有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、該有機エレクトロルミネッセンス素子を複数配列して作製された面状発光体に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、例えば各種ディスプレイのバックライト、看板や非常灯などの表示板、照明装置等の光源として用いられる面状発光体は、高輝度、高効率、薄型、軽量等の多くの優れた特徴を有することから注目されている。このような面状発光体の一つに、有機材料からなる発光層に正負の各電極から電気エネルギーを供給することにより発光する有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子という）がある。この有機EL素子は、数V～数十V程度の低電圧で発光可能であることや、薄膜型の完全固体素子であるので省スペースを図ることができるなどの理由から特に注目されている。

[0003] 有機EL素子は、一般に、透明基板、第1電極、発光層及び第2電極を備え、第1電極、発光層及び第2電極がこの順で透明基板上に形成される。このような構成の有機EL素子において、第1電極及び第2電極間に電圧を印加すると、一方の電極から発光層に正孔が注入され、かつ、他方の電極から発光層に電子が注入される。次いで、発光層に注入された正孔及び電子は、発光層において再結合し、これにより、発光が生じる。そして、発光層で発光した光（以下、発光光という）が第1電極及び透明基板を透過することで、使用者には有機EL素子が発光して見える。なお、発光層は、有機発光物質（発光材料）を含有する一つ又は複数の有機化合物層で構成され、添加される有機発光物質の種類によって発光光の波長を変化させることができる。

[0004] なお、面状発光体を照明装置等の光源として用いる場合には、白色光を取

り出すことが求められる。有機EL素子において、白色光を得るための手法としては、互いに異なる波長の光を発光する複数の発光材料をそれぞれ含む複数の発光層を積層する手法や、一つの発光層に、互いに異なる波長の光を発光する複数の発光材料を混合する手法がある。このような手法を用いた場合、各発光材料からの発光光の色が混色され、白色光が得られる。なお、このような手法では、用いる発光材料の種類を適宜変更することにより、白色光だけでなく、様々な色の光と取り出すことができる。

[0005] しかしながら、有機EL素子のような薄膜で構成される面状発光素子では、発光層の発光は指向性を有しない。それゆえ、発光光のうち、発光層を含む薄膜層の屈折率と発光した光が出射する際に通過する媒質の屈折率とにより決まる光の臨界角以上の出射角を有する光成分は、媒質界面において全反射して有機EL素子の内部に閉じ込められ、該内部を伝搬する導波光となる。すなわち、発光層で発生した光のうち、臨界角以内の出射角を有する光成分は外部に取り出すことができるが、それ以外の光成分は失われることとなり、光取り出し効率（発光光のエネルギーに対する透明基板を介して外部に出射される光のエネルギーの割合）が低くなるという問題が生じる。

[0006] ここで、上述した光取り出し効率の問題をより具体的に説明する。発光層の屈折率が $n$ である有機EL素子に対して古典光学に基づいた多重反射現象の解析を適用して、光取り出し効率（発光効率）を導出すると、光取り出し効率は、 $1 / (2 n^2)$  で近似でき、発光層の屈折率 $n$ でほぼ決まる。発光層の屈折率 $n$ を約1.7として、この近似式で有機EL素子の光取り出し効率を単純に計算すると、有機EL素子の光取り出し効率は約20%となる。それゆえ、残りの約80%の光は、発光層の面内方向へ伝搬するか（横方向への霧散）、又は、発光層を挟んで透明電極（陽極）と対向する位置に設けられた金属電極（陰極）で消失する（後方向への吸収）。すなわち、有機EL素子では、空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7~2.1程度）層の内部で発光した光のうち15%~20%程度の光しか外部に取り出すことができない。

[0007] そこで、従来、有機EL素子において、光取り出し効率を向上させるための技術が種々提案されている。具体的には、基板と発光体との間に両者の中間の屈折率を有する平坦層を導入して反射防止を図る手法や、基板表面にバインダー及び充填材を含んだ光拡散層を形成し、該光拡散層の散乱効果を利用して発光光の全反射を防ぐ手法などが提案されている。また、従来、透明基板の表面にプリズムシートやマイクロレンズアレイを形成して、透明基板の表面にプリズム形状又はレンズ形状などの凹凸形状を設けることにより透明基板と空気との界面における光の全反射を防ぐ手法（例えば特許文献1参照）も提案されている。さらに、従来、発光層の構成を工夫して（発光層の膜厚を厚くするなど）、発光層の発光効率そのものを向上させる手法も提案されている。

#### 先行技術文献

#### 特許文献

[0008] 特許文献1：特開2011-18583号公報

#### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0009] 上述のように、有機EL素子において、光取り出し効率を向上させるための手法が種々提案されており、例えば、基板と発光体との間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入する手法や、基板表面に散乱効果を持つ光拡散層を作製する手法などでは、層間の界面における発光光の全反射を緩和させることができる。しかしながら、これらの手法を用いても、有機EL素子の光取り出し面には平滑な界面が存在するので、そのような平滑面と空気との界面で発光光の全反射が起こり得る。すなわち、上述のような従来手法では、光の取り出し効率を十分に向上させることが難しい。

[0010] 一方、光拡散機能及びレンズ機能を両立するために表面に凹凸形状が設けられた光拡散性シートを用いる手法では、光取り出し面と空気との間の界面に平滑な界面を無くすことができるので、光取り出し面と空気との界面にお

ける発光光の全反射を防ぐ手法として有効である。しかしながら、このような光拡散性シートは、例えば熱や光に対する耐候性が不十分であり、特に光拡散性シートが屋外用途の照明装置に使われる場合、光拡散性シート（光取り出しシート）が変色し、輝度が低下する場合もある。

[0011] 本発明は上記状況に鑑みなされたものであり、本発明の目的は、光取り出し効率及び耐候性の両方に優れた有機EL素子、及び、それを備えた面状発光体を提供することである。

### 課題を解決するための手段

[0012] 上記課題を解決するために、本発明の有機EL素子は、素子基板、素子基板上に形成された第1電極、第1電極上に形成されかつ発光層を含む有機化合物層、及び、有機化合物層上に形成された第2電極を含む有機エレクトロルミネッセンス素子本体部と、有機エレクトロルミネッセンス素子本体部の光取り出し側に設けられた光取り出しシートとを備える構成とする。そして、本発明の有機EL素子では、光取り出しシートがシリコン化合物を含み、光取り出しシートのヘイズ値が90以上の値であり、かつ、光取り出しシートの全光透過率が80%以上の値であることを特徴とする。

[0013] また、本発明の面状発光体は、複数の上記本発明の有機EL素子と、複数の上記本発明の有機EL素子を、所定の形態で配列して支持する支持部材とを備える構成とする。

### 発明の効果

[0014] 上述のように、本発明の有機EL素子、及び、それを備える面状発光体では、その光取り出し側に、シリコン化合物を含み、ヘイズ値が90以上の値であり、かつ、全光透過率が80%以上の値である光取り出しシートを設ける。本発明によれば、このような光取り出しシートを設けることにより、光取り出し効率及び耐候性の両方に優れた有機EL素子、及び、それを備える面状発光体を提供することができる。

### 図面の簡単な説明

[0015] [図1]図1は、本発明の一実施形態に係る有機EL素子の概略構成断面図であ

る。

[図2]図2は、本発明の一実施形態に係る面状発光体の概略構成断面図である。

[図3]図3は、各種実施例で作製した光取り出しシートの光学特性を示す図である。

[図4]図4は、各種実施例で作製した有機EL素子の有機EL素子本体部の概略構成断面図である。

[図5]図5は、実施例1の評価結果を示す図である。

[図6]図6は、実施例2の評価結果を示す図である。

[図7]図7は、実施例3の評価結果を示す図である。

### 発明を実施するための形態

[0016] 以下に、本発明の一実施形態に係る有機EL素子、及び、それを備える面状発光体の一例を、図面を参照しながら具体的に説明するが、本発明は下記の例に限定されない。

[0017] <1. 有機EL素子の構成>

[有機EL素子の全体構成]

図1に、本発明の一実施形態に係る有機EL素子の構成例を示す。なお、図1は、本実施形態の有機EL素子の概略構成断面図である。

[0018] 有機EL素子10は、有機EL素子本体部1と、光取り出しシート2と、封止材3とを備える。有機EL素子本体部1は、素子基板11と、陽極12（第1電極）と、有機化合物層13と、陰極14（第2電極）とを備える。そして、本実施形態では、光取り出しシート2は、素子基板11の陽極12側とは反対側の面上に設けられ、封止材3は、有機EL素子本体部1の陽極12、有機化合物層13、及び、陰極14を覆うように設けられる。

[0019] なお、本実施形態の有機EL素子10では、陽極12側から発光光を取り出す例を説明するが、本発明はこれに限定されず、陰極14側から、又は、陽極12側及び陰極14側の両方から発光光を取り出す構成にしてもよい。この場合、有機EL素子10の陰極14側の光取り出し面にも、光取り出し

シート2を設けてもよい。

[0020] また、有機化合物層13は、発光層を含む層であるが、発光層以外にも、例えば、キャリア（正孔及び電子）の注入層、阻止層及び輸送層等の各種有機層を備え、これらの各種有機層を積層して構成される。

[0021] 有機EL素子本体部1を構成する各部及び各層の好ましい積層例は、次の通りである。

- (1) 素子基板／陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- (2) 素子基板／陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (3) 素子基板／陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
- (4) 素子基板／陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層（陰極バッファ層）／陰極
- (5) 素子基板／陽極／正孔注入層（陽極バッファ層）／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (6) 素子基板／陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極

以下、有機EL素子10の各部及び各層の構成をより具体的に説明する。

[0022] [素子基板]

素子基板11（基体、基板、基材、支持体）は、例えば、ガラス、プラスチック等の透明性材料で形成することができる。特に、素子基板11を、ガラス基板、薄膜ガラス、石英基板、又は、透明樹脂フィルムで構成することが好ましい。

[0023] 透明樹脂フィルムの形成材料としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステルを用いることができる。また、透明樹脂フィルムの形成材料としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン等の材料を用いることができる。さらに、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP

）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類、又は、それらの誘導体を透明樹脂フィルム形成材料として用いることができる。

[0024] また、透明樹脂フィルム形成材料としては、例えば、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリル、ポリアリレート類等の材料を用いることができる。さらに、例えば、アートン（登録商標：JSR社製）、又は、アペル（登録商標：三井化学社製）と呼ばれるシクロオレフィン系樹脂を透明樹脂フィルム形成材料として用いることもできる。

[0025] 素子基板11としてポリイミドフィルムを用いる場合には、貯蔵弾性率が約2～10GPaの範囲内の値であり、かつ、熱膨張係数が約0～6ppmの範囲内の値であるという条件を満たす非熱可塑性ポリイミドフィルムであれば、任意のポリイミドフィルムを素子基板11として用いることができる。それゆえ、素子基板11として、従来公知のポリイミドフィルムを使用することができ、例えば、XENOMAX（登録商標：東洋紡績（株）製）や、ポミラン（登録商標）T（荒川化学工業（株）製）などの市販のポリイミドフィルムを用いることができる。なお、ポリイミドフィルムの作製手法としては、例えば、特開平5-70590号公報、特開2000-119419号公報、同2007-56198号公報、同2005-68408号公報等に記載されている従来公知の手法を用いることができる。

[0026] また、素子基板11を上記各種材料からなる透明樹脂フィルムで構成した場合、有機EL素子10内への例えば水蒸気、酸素等の透過を抑制するために、透明樹脂フィルムの表面に、無機材料からなる被膜、有機材料からなる被膜、又は、これらの被膜を積層したハイブリッド被膜を設けてもよい。こ

の場合には、水蒸気透過度（環境条件： $25 \pm 0.5$ ℃、相対湿度（ $90 \pm 2$ ）%RH）が約 $0.01 \text{ g} / [\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}]$ 以下の値となるようなバリア性フィルムで上記被膜を構成することが好ましい。また、上記被膜を、酸素透過度が約 $10^{-3} \text{ cm}^3 / [\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}]$ 以下の値であり、かつ、水蒸気透過度が約 $10^{-3} \text{ g} / [\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}]$ 以下の値となるようなバリア性フィルムで構成することがより好ましい。さらに、上記被膜を、酸素透過度が約 $10^{-3} \text{ cm}^3 / [\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}]$ 以下の値であり、かつ、水蒸気透過度が約 $10^{-5} \text{ g} / [\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}]$ 以下の値となるようなバリア性フィルムで構成することが特に好ましい。なお、本明細書でいう「水蒸気透過度」は、JIS（日本工業規格）-K7129（1992年）に準拠した赤外センサー法により測定された値であり、「酸素透過度」は、JIS-K7126（1987年）に準拠したクーロメトリック法により測定された値である。

[0027] 上述したバリア性フィルム（上記被膜）の形成材料としては、有機EL素子10の劣化を招く、例えば水分、酸素等の因子の有機EL素子10への浸入を抑制できる材料であれば、任意の材料を用いることができる。例えば、バリア性フィルムを、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等の無機材料からなる被膜で構成することができる。なお、バリア性フィルムの脆弱性を改良するためには、上記無機材料からなる被膜と有機材料からなる被膜とを積層したハイブリッド被膜でバリア性フィルムを構成することが好ましい。この場合、無機材料からなる被膜及び有機材料からなる被膜の積層順序は任意であるが、両者を交互に複数回積層することが好ましい。

[0028] また、上述のようなバリア性フィルムの形成手法としては、バリア性フィルムを素子基板11（透明樹脂フィルム）上に形成できる手法であれば任意の手法を用いることができる。例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法（特開2004-68143号公報参照）、プラズマCVD（Chemical Vapor Depo

sition) 法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等の手法を用いることができる。なお、本実施形態では、特に、大気圧プラズマ重合法を用いることが好ましい。

[0029] さらに、本実施形態では、素子基板11を、メタルフォイルで構成してもよい。メタルフォイルとしては、例えば、アルミニウム箔、銅箔、ステンレス箔、金箔、銀箔等の金属箔を用いることができる。なお、金属箔の厚さは、約10～100 $\mu$ mの範囲内の値で設定することが好ましい。

[0030] また、素子基板11としてメタルフォイルを用いる場合、メタルフォイルの片面又は両面に絶縁層を設けることが好ましい。絶縁層は、例えば、無機酸化物や無機窒化物などの無機物、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ(クロロトリフルオロエチレン)、ポリイミド等で形成することができる。

[0031] 絶縁層として無機絶縁層を用いる場合には、無機絶縁層を、例えば、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、酸化亜鉛、酸化アルミニウム、酸化チタン、酸化銅等からなる金属酸化物膜や、窒化珪素、窒化ゲルマニウム、窒化アルミニウム等からなる金属窒化物膜で構成することが好ましい。また、これらの各種無機膜から一種又は二種以上の膜を組合せて絶縁層を構成してもよい。なお、無機絶縁層の膜厚は、約10～100nmの範囲内の値で設定することが好ましい。また、金属酸化物及び／又は金属窒化物からなる絶縁層を成膜する手法としては、任意の手法を用いることができ、例えば、蒸着法、スパッタリング法、CVD (Chemical Vapor Deposition) 法等の乾式法、ゾルーゲル法等の湿式法、金属酸化物及び／又は金属窒化物の粒子を溶剤に分散させた溶液を塗布する手法等を利用することができる。

[0032] なお、絶縁層をメタルフォイルの両面に設ける場合には、金属酸化物及び／又は金属窒化物からなる絶縁層を、メタルフォイルの両面に設けてもよい

し、ポリイミドシートのようなプラスチック絶縁層を、メタルフォイルの両面に設けてもよい。また、メタルフォイルの一方の面に、金属酸化物及び／又は金属窒化物からなる絶縁層を設け、他方の面にポリイミドシートのようなプラスチック絶縁層を設けてもよい。

[0033] [陽極]

陽極12は、発光層に正孔を供給（注入）する電極膜であり、仕事関数の大きい（4 eV以上）、例えば、金属、合金、電気伝導性化合物、及び、これらの混合物等の電極材料で形成される。

[0034] なお、陽極12の屈折率は任意であるが、約1.5～2.0の範囲内の値であることが好ましく、約1.55～1.85の範囲内の値であることが特に好ましい。また、陽極12のシート抵抗（表面抵抗）は数百 $\Omega/\text{sq}$ .以下の値であることが好ましい。さらに、陽極12の膜厚は、形成材料に依存して変化するが、通常、約10～1000 nm、好ましくは約10～200 nmの範囲内の値に設定される。

[0035] このような特性を有する電極材料としては、例えば、Au等の金属や、CuI、ITO (Indium Tin Oxide)、 $\text{SnO}_2$ 、ZnO等の金属化合物などの光透過性を有する電極材料を用いることができる。また、陽極12は、例えばIDIXO（登録商標： $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ ）等の非晶質の透明電極材料で形成することもできる。

[0036] 陽極12は、上述した電極材料を蒸着やスパッタすることにより形成される。この際、フォトリソグラフィ技術を用いて、陽極12を所望の形状パターンで形成してもよい。なお、陽極12において、その形状パターンの精度を必要としない場合（精度が100 $\mu\text{m}$ 以上程度の場合）には、陽極12を例えば蒸着やスパッタリングなどの手法により形成する際に、所望の形状パターンが形成されたマスクを用いて、所望パターンの陽極12を形成してもよい。

[0037] また、陽極12は、有機導電性化合物で形成することもできる。この場合、有機導電性化合物は塗布可能な物質であるので、例えば、印刷方式、コー

ティング方式等の湿式成膜手法を用いて、陽極 1 2 を形成することができる。

[0038] [有機化合物層]

有機化合物層 1 3 は、上述のように、発光層だけでなく、キャリア（正孔及び電子）の注入層、阻止層及び輸送層等の各種有機層を備える。ここで、各有機層の構成をより具体的に説明する。

[0039] (1) 発光層

発光層は、陽極 1 2 から直接、又は、陽極 1 2 から正孔輸送層等を介して注入される正孔と、陰極 1 4 から直接、又は、陰極 1 4 から電子輸送層等を介して注入される電子とが再結合して発光する層である。なお、発光する部分は、発光層の内部であってもよいし、発光層と、それに隣接する層との間の界面であってもよい。

[0040] また、発光層は、一層で構成してもよいし、複数の層を積層して構成してもよい。発光層を複数の層で構成する場合には、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有する層を複数積層してもよいし、互いに異なる発光スペクトルや発光極大波長を有する層を複数積層してもよい（例えば、青、緑、赤等の各色発光層で発光層を構成する）。なお、後者の場合には、隣り合う発光層間に、非発光性の中間層を設けることが好ましい。

[0041] 本実施形態では、発光層を、ホスト化合物（ホスト材料）と、発光材料（発光ドーパント化合物）とを含む有機発光性材料で形成する。このような構成の発光層では、発光材料の発光波長や含有させる発光材料の種類等を適宜調整することにより任意の発光色を得ることができる。また、本実施形態では、発光材料で発光させることが好ましい。

[0042] 発光層の膜厚の総和は、例えば必要とする発光特性等に応じて適宜設定することができる。例えば、構成膜の均質性、発光時における不必要な高電圧の印加の防止、及び、駆動電流に対する発光色の安定性向上等の観点では、発光層の膜厚の総和を、例えば、約 1 ~ 2 0 0 n m の範囲内の値に設定することが好ましい。特に、低駆動電圧の観点では、発光層の膜厚の総和を約 3

0 nm以下の値に設定することが好ましい。

[0043] なお、発光層を複数の層で構成し、かつ、隣り合う該層間に中間層を設けた場合には、中間層を含む発光層全体の厚さを上記数値範囲内の値に設定することが好ましい。また、発光層を複数の層で構成する場合、各層の膜厚を、約1～50 nmの範囲内の値に設定することが好ましく、約1～20 nmの範囲内の値に設定することがさらに好ましい。なお、発光層を複数の層で構成する場合には、各層間の膜厚関係は、任意に設定することができる。

[0044] 上述のような構成の発光層は、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB (Langmuir-Blodgett) 法、インクジェット法等の公知の薄膜形成手法を用いて形成することができる。以下、発光層に含まれるホスト化合物及び発光材料の構成について具体例に説明する。

[0045] (a) ホスト化合物

発光層に含まれるホスト化合物としては、室温(25℃)における燐光発光の燐光量子収率が約0.1未満の値である化合物を用いることが好ましい。特に、燐光量子収率が約0.01未満の値である化合物をホスト化合物として用いることが好ましい。また、発光層中のホスト化合物の体積比は、発光層に含まれる各種化合物の中で約50%以上の値とすることが好ましい。

[0046] また、ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を用いることができる。その際、一種類のホスト化合物を用いてもよいし、複数種のホスト化合物を併用してもよい。複数種のホスト化合物を用いることにより、電荷(正孔及び/又は電子)の移動度(移動量)を調整することができ、有機EL素子10の発光効率を向上させることができる。

[0047] 上述のような特性を有するホスト化合物としては、例えば、公知の低分子化合物、繰り返し単位をもつ高分子化合物、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物(蒸着重合性発光ホスト)等の化合物を用いることができる。なお、ホスト化合物としては、正孔輸送機能、電子輸送機能、発光の長波長化を防止する機能、及び、高T<sub>g</sub>(ガラス転移温度)を有する化合物を用いることが好ましい。なお、ここでいう、「ガラス転移温度

(T<sub>g</sub>)」とは、DSC (Differential Scanning Calorimetry: 示差走査熱量) 法を用いて、JIS-K7121に準拠した手法により求められる値である。

[0048] 具体的には、ホスト化合物として、例えば、特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等の文献に記載されている化合物を用いることができる。

[0049] なお、本実施形態では、ホスト化合物は、カルバゾール誘導体であることが好ましく、特に、カルバゾール誘導体であって、かつ、ジベンゾフラン化合物であることが好ましい（例えば、後述の各種実施例で用いる構造式(1) H-Aを有するホスト化合物）。

[0050] (b) 発光材料

発光材料としては、例えば、燐光発光材料（燐光性化合物、燐光発光性化合物）、蛍光発光材料等を用いることができる。なお、一つの発光層には、一種類の発光材料を含有させてもよいし、発光極大波長が互いに異なる複数

種の発光材料を含有させてもよい。複数種の発光材料を用いることにより、上述のように、発光波長の異なる複数の光を混ぜることができ、これにより、任意の発光色の光を得ることができる。例えば、青色発光材料、緑色発光材料及び赤色発光材料（3種類の発光発光材料）を発光層に含有させることにより白色光を得ることができる。

[0051] また、一つの発光層に、燐光発光材料及び蛍光発光材料を混合してもよい。さらに、本実施形態では、一つの発光層に2種以上の発光材料を含有させる場合には、発光層における発光材料の濃度比を発光層の厚さ方向において変化させてもよい。

[0052] 燐光発光材料は、励起三重項からの発光が得られる化合物である。具体的には、燐光発光材料は、室温（25℃）において燐光発光する化合物であり、燐光量子収率が、25℃において約0.01以上の値の化合物である。なお、本実施形態では、燐光量子収率が約0.1以上の値である燐光発光材料を用いることが好ましい。燐光量子収率は、例えば、「第4版実験化学講座7・分光11」（1992年版、丸善）の398頁に記載されている手法により測定することができる。また、溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本実施形態では、燐光発光材料が、任意の溶媒において、約0.01以上の燐光量子収率が得られる燐光発光材料であればよい。

[0053] 上述したホスト化合物及び燐光発光材料を含む発光層における発光（燐光発光）の過程（原理）としては、次の2種類の過程が挙げられる。

[0054] 第1の発光過程は、エネルギー移動型の発光過程である。このタイプの発光過程では、まず、キャリア（正孔及び電子）が輸送される発光層内のホスト化合物上において、キャリアが再結合し、これにより、燐光発光材料の励起状態が生成される。そして、この際に発生するエネルギーがホスト化合物から燐光発光材料に移動し（励起状態のエネルギー準位がホスト化合物の励起準位から燐光発光材料の励起準位（励起三重項）に移動し）、この結果、燐光発光材料から発光が生じる。

[0055] 第2の発光過程は、キャリアトラップ型の発光過程である。このタイプの

発光過程では、発光層において、燐光発光材料がキャリア（正孔及び電子）をトラップする。その結果、燐光発光材料上でキャリアの再結合が起こり、燐光発光材料から発光が生じる。上述したいずれの発光過程においても、燐光発光材料の励起状態のエネルギー準位はホスト化合物の励起状態のエネルギー準位より低くする必要がある。

[0056] 上述のような発光過程を生じさせる燐光発光材料としては、従来の有機EL素子で用いられる公知の各種燐光発光材料の中から所望の燐光発光材料を適宜選択して用いることができる。例えば、燐光発光材料としては、元素の周期表で8族～10族の金属元素を含有する錯体系化合物を用いることができる。そのような錯体系化合物の中でも、イリジウム化合物、オスミウム化合物、白金化合物（白金錯体系化合物）、及び、希土類錯体のいずれかを燐光発光材料として用いることが好ましい。本実施形態では、特に、燐光発光材料として、イリジウム化合物（例えば、後述の各種実施例で用いる構造式（2）～（4）を有する燐光発光材料）を用いることが好ましい。

[0057] また、蛍光発光材料（蛍光発光体、蛍光性ドーパント）としては、例えば、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、又は希土類錯体系蛍光体等を用いることができる。

[0058] さらに、蛍光発光材料としては、例えば、国際公開第00/70655号パンフレット、特開2002-280178号公報、同2001-181616号公報、同2002-280179号公報、同2001-181617号公報、同2002-280180号公報、同2001-247859号公報、同2002-299060号公報、同2001-313178号公報、同2002-302671号公報、同2001-345183号公報、同2002-324679号公報、国際公開第02/15645号パンフレット、特開2002-332291号公報、同2002-50484号公報、同

2002-332292号公報、同2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、同2002-338588号公報、同2002-170684号公報、同2002-352960号公報、国際公開第01/93642号パンフレット、特開2002-50483号公報、同2002-100476号公報、同2002-173674号公報、同2002-359082号公報、同2002-175884号公報、同2002-363552号公報、同2002-184582号公報、同2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、同2002-226495号公報、同2002-234894号公報、同2002-235076号公報、同2002-241751号公報、同2001-319779号公報、同2001-319780号公報、同2002-62824号公報、同2002-100474号公報、同2002-203679号公報、同2002-343572号公報、同2002-203678号公報等に記載の従来公知の蛍光発光材料も用いることができる。

[0059] (c) 中間層

上述のように、発光層を複数の層で構成した場合、隣り合う層間に、非発光性の中間層（非ドーブ領域）を設けることが好ましい。この場合、中間層の膜厚を、約1～20nmの範囲内の値に設定することが好ましい。特に、中間層と隣接する発光層との間におけるエネルギー移動等の相互作用の抑制、及び、有機EL素子10の電流電圧特性への影響の低減という観点では、中間層の膜厚は、約3～10nmの範囲内の値で設定することが好ましい。

[0060] 中間層の形成材料としては、発光層内のホスト化合物と同様の材料で形成することができる。なお、中間層を設ける場合、中間層の形成材料は、隣接する発光層のホスト化合物の形成材料と同一であってもよいし、異なってもよいが、隣接する2つの発光層のうち、少なくとも一方の発光層のホスト化合物の形成材料と同一であることが好ましい。

[0061] このように、中間層（非ドーブ発光層）と各発光層との間に共通の化合物を含有させた場合、次のような利点を得られる。例えば両者間において、共通のホスト材料を用いた場合（ここでいう、ホスト材料が共通であるとは、ホスト材料の分子構造が同一である場合だけでなく、ホスト材料の燐光発光エネルギー、ガラス転移点等の物理化学的特性が同一である場合等も含む意味である）には、発光層及び中間層間の界面におけるキャリアの注入障壁が低減され、電圧（電流）を変化させても正孔及び電子間の注入バランスが保たれ易いという効果を得られる。さらに、中間層と発光層との間で共通のホスト材料を用いた場合には、従来の有機EL素子の作製において大きな問題点となっていた素子作製の煩雑さも併せて解消することができる。

[0062] なお、本実施形態では、ホスト材料はキャリアの輸送を担うため、キャリア輸送能を有する材料が好ましい。このキャリア輸送能を表す物性としてはキャリア移動度が用いられ、有機材料のキャリア移動度は、一般に、電界強度に依存する。それゆえ、電界強度依存性の高い材料をホスト材料を用いた場合には、正孔及び電子間の注入バランスが崩れやすいので、発光層のホスト化合物及び中間層の形成材料としては、キャリア移動度の電界強度依存性の小さいホスト材料を用いることが好ましい。また、正孔及び電子間の注入バランスを最適に調整するために、非発光性の中間層を、後述するキャリアの阻止層（正孔阻止層、電子阻止層）として機能させてもよい。

[0063] （２）注入層（正孔注入層、電子注入層）

有機化合物層13内には、必要に応じて、キャリアの注入層（正孔注入層及び／電子輸送層）が設けられる。注入層は、駆動電圧の低下や発光輝度の向上を図るための層であり、電極及び有機層（発光層）間に設けられる。

[0064] 正孔注入層（陽極バッファ層）は、陽極と、発光層又は正孔輸送層との間に設けられ、電子注入層（陰極バッファ層）は、陰極と、発光層又は電子輸送層との間に設けられる。また、各注入層（バッファ層）は、非常に薄い膜で構成することが望ましく、本実施形態では、形成材料にも依存するが、その膜厚を約0.1 nm～5 μmの範囲内の値に設定することが好まし

い。

[0065] なお、各注入層の構成は、例えば、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

[0066] また、正孔注入層（陽極バッファ層）の構成は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にも詳細に記載されている。具体的には、銅フタロシアニン等を用いて形成されたフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウム等を用いて形成された酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いて形成された高分子バッファ層などが、正孔注入層として例示されている。なお、後述の各種実施例で説明するように、例えば、PEDOT（ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフェン））等を含む化合物を、正孔注入層の形成材料として用いてもよい。

[0067] さらに、電子注入層（陰極バッファ層）の構成は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にも詳細に記載されている。具体的には、ストロンチウムやアルミニウム等を用いて形成された金属バッファ層、フッ化リチウム、フッ化カリウム等を用いて形成されたアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウム等を用いて形成されてアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウム等を用いて形成された酸化物バッファ層等が電子注入層として例示されている。

[0068] （3）阻止層（正孔阻止層、電子阻止層）

有機化合物層13内には、必要に応じて、キャリアの阻止層（正孔阻止層及び／又は電子阻止層）が設けられる。なお、阻止層の構成は、例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に詳細に記載されている。

[0069] 正孔阻止層（ホールブロック層）は、広い意味で、電子輸送層の機能を有する層であり、電子輸送機能を有しつつ正孔の輸送能力が著しく小さい材料で形成される。このような正孔阻止層を設けることにより、発光層に対する正孔及び電子間の注入バランスを最適な注入バランスに調整することができ、その結果、電子と正孔との再結合確率を向上させることができる。また、正孔阻止層の構成として、必要に応じて、後述する電子輸送層の構成を用いることができる。さらに、正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられることが好ましい。

[0070] 一方、電子阻止層は、広い意味で、正孔輸送層の機能を有する層であり、正孔輸送機能を有しつつ電子の輸送能力が著しく小さい材料で形成される。このような電子阻止層を設けることにより、発光層に対する正孔及び電子間の注入バランスを最適な注入バランスに調整することができ、その結果、電子と正孔との再結合確率を向上させることができる。また、電子阻止層の構成として、必要に応じて、後述する正孔輸送層の構成を用いることができる。

[0071] なお、各阻止層の膜厚は、約3～100nmの範囲内の値で設定することが好ましく、約5～30nmの範囲内の値で設定することがさらに好ましい。

[0072] (4) 輸送層（正孔輸送層、電子輸送層）

有機化合物層13内には、必要に応じて、キャリアの輸送層（正孔輸送層及び／又は電子輸送層）が設けられる。

[0073] (a) 正孔輸送層

正孔輸送層は、陽極12から供給された正孔を発光層に輸送（注入）する層である。また、正孔輸送層は、陰極14側からの電子の流入を阻止する障壁としても作用する。それゆえ、正孔輸送層という用語は、広い意味で、正孔注入層及び／又は電子阻止層を含む意味で用いられることもある。なお、正孔輸送層は、一層だけ設けてもよいし、複数層設けてもよい。

[0074] 正孔輸送材料としては、上述した正孔を輸送（注入）する作用、及び、電

子の流入を阻止する作用を発現可能な材料であれば、有機材料及び無機材料のいずれの材料も用いることができる。具体的には、正孔輸送材料として、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー（特に、チオフェンオリゴマー）等の化合物を用いることができる。

[0075] また、正孔輸送材料としては、例えば、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物（スチリルアミン化合物）等の化合物を用いることができる。特に、本実施形態では、芳香族第3級アミン化合物を正孔輸送材料として用いることが好ましい。

[0076] 芳香族第3級アミン化合物としては、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル、N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) - [1, 1' -ビフェニル] -4, 4' -ジアミン(TPD)、2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N' -テトラ-p-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル、1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル) -4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-メトキシフェニル) -4, 4' -ジアミノビフェニル、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル、4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N-トリ(p-トリル)アミン等の化合物を用いることができる。また、芳香族第3級アミン化合物として、4-(ジ-p-トリルアミノ) -4' - [4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-

N, N-ジフェニルアミノ- (2-ジフェニルビニル) ベンゼン、3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン等のスチリルアミン化合物を用いることができる。さらに、芳香族第3級アミン化合物として、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されているような2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの(例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD))、特開平4-308688号公報に記載されているようなトリフェニルアミンユニットが3つ、スターバースト型に連結された4, 4', 4"-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)などの化合物を用いてもよい。また、後述の実施例で説明するように、正孔輸送材料として、ポリ-N, N'-ビス(4-ブチルフェニル)-N, N'-ビス(フェニル)ベンジジンなどの化合物を用いてもよい。

[0077] また、正孔輸送材料としては、例えば、上述した各種正孔輸送材料を高分子鎖に導入した高分子材料、又は、上述した各種正孔輸送材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。なお、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物もまた、正孔輸送材料及び上述の正孔注入層の形成材料として使用することができる。

[0078] さらに、正孔輸送材料として、例えば、特開平11-251067号公報、J. Huang et. al. 著文献(Applied Physics Letters 80(2002), p. 139)等の文献に記載されているような、いわゆるp型正孔輸送材料と呼ばれる材料を用いてもよい。なお、このような材料を正孔輸送材料として用いた場合には、より高効率の発光素子を得ることができる。

[0079] また、本実施形態では、正孔輸送層に不純物をドーピングして、p性の高い(正孔リッチ)の正孔輸送層を形成してもよい。その一例は、例えば、特開平4-297076号、特開2000-196140号、特開2001-102175号、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等の

文献に記載されている。このような正孔リッチの正孔輸送層を用いた場合には、より低消費電力の有機EL素子10を作製することができる。

[0080] 上記構成の正孔輸送層は、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の手法を用いて形成することができる。なお、正孔輸送層の膜厚は、任意に設定することができる。一般には、約5nm～5 $\mu$ m、好ましくは約5～200nmの範囲内の値に設定される。また、正孔輸送層を1層構造とする場合には、上記各種正孔輸送材料のうち一種又は二種以上の材料が正孔輸送層に含まれるようにしてもよい。

[0081] (b) 電子輸送層

電子輸送層は、陰極14から供給された電子を発光層に輸送（注入）する層である。また、電子輸送層は、陽極12側からの正孔の流入を阻止する障壁としても作用する。それゆえ、電子輸送層という用語は、広い意味で、電子注入層及び／又は正孔阻止層を含む意味で用いられることもある。なお、電子輸送層は、一層だけ設けてもよいし、複数層設けてもよい。

[0082] 発光層の陰極14側に隣接する電子輸送層（電子輸送層を一層構造とする場合には当該電子輸送層、電子輸送層を複数設ける場合には最も発光層側に位置する電子輸送層）に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、陰極14より注入された電子を発光層に伝達（輸送）する機能を有する材料であれば任意の材料を用いることができる。例えば、電子輸送材料として、従来の有機EL素子で用いられる公知の各種化合物の中から適宜好適な化合物を選択して用いることができる。

[0083] より具体的には、電子輸送材料として、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノロン誘導体、チオピランジオキソド誘導体、カルボジイミド誘導体、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の化合物を用いることができる。更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られ

ているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。また、これらの材料を高分子鎖に導入した高分子材料、又は、これらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料も電子輸送材料として用いることができる。さらに、後述の実施例で説明するように、電子輸送材料として、カルバゾール誘導体等の化合物（後述の構造式（5）ET-Aを有する化合物）を用いてもよい。

[0084] また、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq3）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（Znq）等の8-キノリノール誘導体の金属錯体、及び、これらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリーフタロシアニンもしくはメタルフタロシアニン、又は、それらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されている材料も、電子輸送材料として用いることができる。さらに、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体を電子輸送材料として用いることができる。また、正孔注入層及び正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiC等の無機化合物（無機半導体）を電子輸送材料として用いることもできる。

[0085] また、本実施形態では、電子輸送層に不純物をゲスト材料としてドーピングして、n性の高い（電子リッチ）電子輸送層を形成してもよい。このような構成の電子輸送層の具体例は、例えば、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等の文献に記載されている。

[0086] 上記構成の電子輸送層は、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の手法により形成す

ることができる。なお、電子輸送層の膜厚は、任意に設定することができ、一般には、約5 nm～5 μm、好ましくは約5～200 nmの範囲内の値に設定される。また、電子輸送層を1層構造とする場合には、上記各種電子輸送材料のうち一種又は二種以上の材料が電子輸送層に含まれるようにしてもよい。

[0087] [陰極]

陰極14は、発光層に電子を供給（注入）する電極膜であり、通常、仕事関数の小さい（4 eV以下）、例えば、金属（電子注入性金属）、合金、電気伝導性化合物、及び、これらの混合物等の電極材料で形成される。

[0088] 陰極14は、例えば、アルミニウム、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム（ $Al_2O_3$ ）混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等の電極材料で形成することができる。これらの電極材料の中でも、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の観点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム（ $Al_2O_3$ ）混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

[0089] また、陰極14のシート抵抗は、数百Ω/sq.以下の値であることが好ましい。さらに、陰極14の膜厚は、一般に、約10 nm～5 μmの範囲内の値に設定され、好ましくは、約50 nm～200 nmの範囲内の値で設定される。

[0090] 上述のような構成の陰極14は、例えば蒸着やスパッタリングなどの手法により形成することができる。

[0091] なお、有機EL素子10において、陰極14側から光を取り出す場合には、陰極14を、例えば、上記陽極12と同様に、光透過性を有する電極材料

で形成することができる。また、この場合には、約1 nm～20 nmの範囲内の膜厚で、上記陰極用電極材料からなる金属膜を形成した後に、該金属膜上に、陽極12で説明した導電性透明材料を形成することにより、透明又は半透明の陰極14を形成することができる。

[0092] [光取り出しシート]

光取り出しシート2は、例えば、図1に示すように、基材2aと、該基材2aの有機EL素子本体部1側とは反対側の表面上に形成された光拡散層2bとを有する光拡散シートで構成することができる。光取り出しシート2は、素子基板11の陽極12側とは反対側の表面上に、例えば接着剤等を介して取り付けられる。この際、光取り出しシート2の基材2aの光拡散層2b側とは反対側の表面が素子基板11と対向するように、光取り出しシート2が素子基板11に取り付けられる。

[0093] 本実施形態では、光取り出しシート2は、ヘイズ値が約90以上の値であり、かつ、全光透過率（全光線透過率）が約80%以上の値である光拡散シートで構成される。より好ましくは、光取り出しシート2を、ヘイズ値が92以上の値であり、かつ、全光透過率が82%以上の値である光拡散シートで構成し、特に好ましくは、ヘイズ値が94以上の値であり、かつ、全光透過率が85%以上の値である光拡散シートで構成する。

[0094] 光取り出しシート2のヘイズ値は、光拡散層2bに含まれる、光の拡散及び散乱機能を備える添加材料（添加化合物）の含有量により制御することができる。また、光取り出しシート2の全光透過率は、基材2aの透明度を増減することなどにより制御することができる。

[0095] また、ヘイズ値は、下記式で表される。

$$\text{ヘイズ値 (曇価)} = \{ \text{拡散透過率 (\%)} / \text{全光透過率 (\%)} \} \times 100 (\%)$$

なお、ヘイズ値は、JIS-K-7136「プラスチック-透明材料のヘイズの求め方」、又は、ISO14782「Plastics-Determination of haze for transparent mate

rials」に記載されている手法で測定することができる。

[0096] 一方、全光透過率は、JIS-K-7361-1「プラスチック-透明材料の全光線透過率の試験方法」、又は、ISO13468-1「Plastics - Determination of the total luminous transmittance of transparent materials」に記載されている手法で測定することができる。

[0097] (a) 基材

本実施形態の光取り出しシート2の基材2aは、光透過性を有する基材であれば、任意の基材で構成することができる。また、本実施形態では、基材2aの屈折率 $n_1$ は、約1.65以上の値であることが好ましい。

[0098] 上記条件を満たす基材2aの例としては、ガラスフィルムや透明樹脂フィルムなどが挙げられる。柔軟性の観点では、基材2aとして透明樹脂フィルムを用いることが好ましい。この場合には、透明樹脂フィルムの厚さを、約 $50\mu\text{m}$ ~ $250\mu\text{m}$ の範囲内の値に設定することが好ましい。

[0099] なお、透明樹脂フィルムの形成材料としては、上記素子基板11と同様の材料で形成することができる。また、本実施形態では、透明樹脂フィルムの形成材料として、ポリカーボネートフィルム、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、ポリエチレンナフタレート（PEN）フィルム又はフッ素樹脂含有フィルムのいずれかを用いることが好ましい。

[0100] フッ素樹脂含有フィルムの形成材料としては、任意の材料を用いることができる。例えば、フッ素樹脂含有フィルムは、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリクロロトリフルオロエチレン（PCTFE）、ポリビニリデンフルオライド（PVDF）、テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロアルコキシエチレンとの共重合体（PFA）、エチレンとテトラフルオロエチレンとの共重合体（ETFE）、テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体（FEP）などの化合物を含有するフィルムで構成することができる。

[0101] また、柔軟性及び輝度の向上の観点では、基材2aとして薄膜ガラスを用

いることが好ましい。なお、ここでいう「薄膜ガラス」とは、厚さが約0.5 mm以下のガラスフィルムのことである。

[0102] (b) 添加材料

光取り出しシート2に添加する(含有させる)、光の拡散及び散乱能を備える添加材料としては、例えばシリコン化合物(Si含有有機化合物)、ポリアクリル酸エステル樹脂、臭素含有化合物等が挙げられる。そして、本実施形態では、光取り出しシート2は、少なくとも、シリコン化合物(Si含有有機化合物)を添加材料として含む構成とする。

[0103] 本実施形態の光取り出しシート2に用い得るシリコン化合物の代表例としては、シリコン樹脂又はシリコンオイルが挙げられる。シリコン樹脂としては、例えば、 $RSiO_{3/2}$ 、 $RSiO$ 、 $RSiO_{1/2}$ の単位を組み合わせることが出来る3次元網状構造を有する樹脂などを用いることができる。なお、この化学式中の「R」は、メチル基、エチル基、プロピル基などのC1~C10のアルキル基、芳香族基等の置換基、又は、該置換基にビニル基を含む置換基を示す。

[0104] また、シリコンオイルとしては、ポリジメチルシロキサン及びポリジメチルシロキサンの側鎖又は末端の少なくとも1つのメチル基が、水素、アルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基、ベンジル基、エポキシ基、ポリエーテル基、カルボキシ基、メルカプト基、クロロアルキル基、アルキルアルコールエステル基、アルコール基、アリル基、ビニル基、トリフルオロメチル基、及び、これらの組み合わせからなる群より選択される基によって変性された変性ポリシロキサン、又は、これらの混合物を用いることができる。

[0105] 本実施形態の光取り出しシート2に含有し得るポリアクリル酸エステル樹脂としては、例えば、メチルメタクリレート単量体と、メチルメタクリレート単量体を除く直鎖状、分枝状、環状アルキル(メタ)アクリレート、及び、これらの組み合わせからなる群より選択される少なくとも一種以上の単量体とからなる共重合体が挙げられる。より具体的には、後述の実施例で説明するように、添加材料として、例えば、ポリメタクリル酸メチル樹脂(PM

MA) を用いることができる。

[0106] 上述した共重合体では、メチルメタクリレート単量体の組成を約60～95質量%の範囲内の組成とし、かつ、他の単量体の組成を約5～40質量%の範囲内の値に設定することができる。特に、メチルメタクリレート単量体の組成が約75～85質量%の範囲内の組成であり、かつ、他の単量体の組成が約15～25質量%の範囲内の組成であることがより好ましい。また、共重合体としてアクリル系共重合体を用いる場合、アクリル系共重合体の重量平均分子量は、約500,000～10,000,000 g/molの範囲内の値であることが好ましい。なお、アクリル系共重合体は、乳化重合、懸濁重合、溶液重合などの手法を実施して製造することができる。

[0107] また、本実施形態の光取り出しシート2に含有し得る臭素含有化合物としては、化学構造中に臭素を含有する化合物であれば任意の化合物を用いることができる。

[0108] 例えば、ヘキサブロモベンゼン、ペンタブロモトルエン、ヘキサブロモビフェニル、デカブロモビフェニル、ヘキサブロモシクロデカン、デカブロモジフェニルエーテル、オクタブロモジフェニルエーテル、ヘキサブロモジフェニルエーテル、ビス(ペンタブロモフェノキシ)エタン、エチレンービス(テトラブロモフタルイミド)、及び、テトラブロモビスフェノールA等のモノマー系有機臭素化合物を、臭素含有化合物として用いることができる。また、臭素含有化合物としては、臭素化エポキシ化合物(例えば臭素化ビスフェノールAとエピクロルヒドリンとの反応によって製造されるジエポキシ化合物や臭素化フェノール類とエピクロルヒドリンとの反応によって得られるモノエポキシ化合物)、ポリ(臭素化ベンジルアクリレート)、臭素化ポリフェニレンエーテル、臭素化ビスフェノールA、塩化シアヌール及び臭素化フェノールの縮合物、臭素化(ポリスチレン)、ポリ(臭素化スチレン)、架橋臭素化ポリスチレンなどの臭素化ポリスチレン、及び、架橋又は非架橋臭素化ポリ( $\alpha$ -メチルスチレン)等のハロゲン化されたポリマー系臭素化合物を用いることができる。なお、臭素含有化合物の添加量は、ポリアミ

ド樹脂 100 重量部に対して、約 1 ~ 50 重量部の範囲内の値に設定することができる。

[0109] (c) 光取り出しシートの表面形状

本実施形態の光取り出しシート 2 の光出射側（光取り出し側）の表面形状は、平坦形状であってもよいし、凹凸形状であってもよい。

[0110] 光取り出しシート 2 の表面形状を凹凸形状とする場合、例えば、表面に所定の凹凸パターンが形成されたフィルム（以下、凹凸フィルムという）を光拡散層 2 b 上に設けることにより、光取り出しシート 2 の表面に凹凸パターンを形成してもよい。

[0111] また、凹凸パターンの凹部（又は凸部）のシート面内の幅（大きさ）は、約  $0.5 \mu\text{m}$  ~  $20 \mu\text{m}$  の範囲内の値に設定することができる。また、凹部（又は凸部）のシート厚み方向の深さ（又は高さ）は、シート面内方向の凹部（又は凸部）の幅（大きさ）や、凹部（又は凸部）の周期により適宜設定される。例えば、凹部（又は凸部）のシート厚み方向の深さ（又は高さ）は、シート面内方向の凹部（又は凸部）の幅以下の値、又は、凹部（又は凸部）の周期以下の値に設定することができる。

[0112] さらに、凹部（又は凸部）の形状は、任意であり、例えば、凹部（又は凸部）の表面形状を、曲面を有する形状にすることが好ましい。なお、凹部（又は凸部）の表面形状を曲面とする場合には、特に、凹部（又は凸部）の表面形状を半球面形状とすることが好ましい。また、凹部（又は凸部）は、シート面内において、規則的（周期的）に配置されることが好ましく、例えば基盤の目状に配置されることが好ましい。

[0113] 凹凸フィルムの形成材料としては、例えば、高分子材料やガラスなどを用いることができる。なお、高分子材料としては、例えば、ポリアリレート、ポリカーボネート、ポリシクロオレフィン、ポリエチレンナフタレート、ポリエチレンスルホン酸、ポリエチレンテレフタレート等の材料を用いることができる。また、凹凸フィルムの厚みは、任意に設定することができ、例えば、約  $20 \mu\text{m}$  ~  $1000 \mu\text{m}$  の範囲内の値で設定することができる。

[0114] 凹凸フィルムの作製手法としては、フィルム表面に所定の凹凸パターンを形成することができる手法であれば、任意の手法を用いることができる。凹凸フィルムの形成材料を高分子材料とする場合には、例えば、加熱されたフィルムに表面が凹凸状の金属板を押し付けて金属板の凹凸形状をフィルムに転写する方法、表面が凹凸状のロールを用いて高分子フィルム（シート）を圧延する方法、凹凸形状を有するスリットから高分子フィルム（シート）を押し出して成形する方法等を用いることができる。また、凹凸フィルムの形成材料を高分子材料とする場合には、例えば、表面が凹凸形状の基台上に、高分子材料を含む溶液または分散液を滴下（以下、キャストという）して成膜する方法や、モノマーからなる膜の一部を選択的に光重合し、その後、未重合部分を除去する方法などを用いることができる。さらに、凹凸フィルムの形成材料を高分子材料とする場合には、高湿度条件下において高分子溶液を基台にキャストし、その後、凹凸が設けられた金型で高分子溶液を加熱及び加圧することにより、金型の凹凸形状をインプリントする手法（水滴構造を表面に転写する手法）を用いることもできる。

[0115] 上述のように、本実施形態の有機EL素子10では、光拡散層2bに少なくともシリコン化合物が添加され、ヘイズ値が約90以上の値であり、かつ、全光透過率が約80%以上の値である光取り出しシート2を用いる。このような構成の光取り出しシート2を、有機EL素子10の光取り出し面に設けることにより、光取り出し効率及び耐候性の両方を向上させることができる（この効果の詳細は、下記各種実施例の特性評価において説明する）。

[0116] [封止材]

封止材3は、有機化合物層13を封止する部材であり、図1に示すように、有機EL素子本体部1を覆うように設けられる。なお、図1には示さないが、封止材3で有機EL素子本体部1を封止する際には、陽極12及び陰極14の引き出し電極部分が外部に露出するように有機EL素子本体部1を封止する。

[0117] 封止材3は、略板状（フィルム状）の封止部材で構成することができる。

なお、封止手法として、固体密着型タイプの手法を用いる場合には、封止材 3 として、素子基板 1 1 側の表面が平坦な板状基材（平板状の封止部材）を用い、この封止部材を、接着剤を介して素子基板 1 1 に接着する。

[0118] また、封止手法として、缶封止タイプの手法を用いる場合には、素子基板 1 1 側の表面に凹部が形成された略板状基材、すなわち、凹板状の封止部材（缶）を用い、この封止部材を、接着剤を介して素子基板 1 1 に接着する。

[0119] さらに、封止手法として、膜封止の手法を用いる場合には、封止材 3 として、無機材料や有機材料からなる膜で構成された封止膜を用いる。そして、有機 E L 素子本体部 1 が封止膜で覆われるように、封止膜を有機 E L 素子本体部 1 上に設ける。

[0120] [有機 E L 素子の作製手法]

次に、有機 E L 素子 1 0 の作製手法の一例を説明する。具体的には、有機 E L 素子本体部 1 の構成が、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極である場合の作製手法の一例を説明する。

[0121] まず、上述した透明材料からなる素子基板 1 1 を用意する。次いで、素子基板 1 1 の光取り出し面（光取り出しシート 2 の形成面）と反対側の面上に、上述した透明電極材料からなる陽極 1 2 を形成する。

[0122] 次いで、陽極 1 2 上に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層及び電子輸送層をこの順で積層して有機化合物層 1 3 を形成する。この際、有機化合物層 1 3 を構成する各層は、上記各層の構成で説明した各種形成手法を用いて形成される。なお、本実施形態では、有機化合物層 1 3 を構成する各層の形成手法として、特に、真空蒸着法、スピコート法、インクジェット法、印刷法を用いることが好ましい。これらの手法を用いて有機化合物層 1 3 内の各層を形成した場合、例えば、均一な膜質が得られ易い、膜にピンホールが生成され難い等の利点を得られる。また、有機化合物層 1 3 の成膜手法として蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する有機化合物の種類等の条件に応じて適宜設定される。具体的には、ボート加熱温度を約 5 0 °C ~ 4 5 0 °C、真空度を約  $1 0^{-6}$  Pa ~  $1 0^{-2}$  Pa、蒸着速度を約 0. 0

1 nm/秒～50 nm/秒、基板温度を約-50℃～300℃、そして、膜厚を約0.1 nm～5 μm（好ましくは5 nm～200 nm）の各範囲からそれぞれ適宜選択して、蒸着条件を設定することが好ましい。

[0123] 次に、有機化合物層13を形成した後、有機化合物層13上に、例えば、蒸着やスパッタリング等の手法により、上述した陰極用電極材料からなる薄膜を、約1 μm以下、好ましくは、約50～200 nmの範囲内の膜厚で積層して、陰極14を形成する。本実施形態では、このようにして有機EL素子本体部1を作製する。

[0124] その後、有機EL素子本体部1の陰極14側の表面に封止材3を設けて有機化合物層13を封止する。そして、最後に、有機EL素子本体部1の素子基板11の光取り出し面（陽極12側の面）に、光取り出しシート2を貼り付ける。本実施形態では、このようにして有機EL素子10を作製する。

[0125] なお、上述した作製手法では、同じ成膜装置内で、一回の真空引きで一貫して陽極12、有機化合物層13及び陰極14を形成するのが好ましいが、本発明はこれに限定されない。成膜工程毎に基板部材を成膜装置から取り出し、該基板部材に対して異なる成膜法を施して有機化合物層13及び各種電極膜を形成してもよい。なお、この場合には、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。また、本実施形態では、有機EL素子本体部1を形成する際、各層の積層順序を逆にしてもよい。すなわち、素子基板11上に、陰極、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、及び、陽極をこの順で積層してもよい。

[0126] <2. 面状発光体の構成>

次に、上述した有機EL素子10を複数配列（タイリング）して作製された面状発光体について説明する。

[0127] [面状発光体の構成]

図2に、本発明の一実施形態に係る面状発光体の概略構成断面図を示す。なお、図2には、説明を簡略化するため、2枚の有機EL素子10を配列した構成例を示すが、本発明はこれに限定されず、面状発光体を構成する有機

EL素子10の枚数及び配列形態は、例えば用途等に応じて適宜設定される。

[0128] 面状発光体20は、2枚の有機EL素子10と、支持基板21（支持部材）と、各有機EL素子10を支持基板21上に固定するための接着部材22とを備える。

[0129] 面状発光体20では、各有機EL素子10の封止材3側の面が接着部材22により大型の支持基板21上に固定される。なお、この際、図2に示す例では、2枚の有機EL素子10の対向する側面同士が互いに接するように、2枚の有機EL素子10を支持基板21上に配列する。また、この際、配列された2枚の有機EL素子10の光取り出し面（光取り出しシート2の光拡散層2b側の面）が、互いに面一となるように、2枚の有機EL素子10を支持基板21上に配列する。以下、面状発光体20の各部の構成をより具体的に説明する。

[0130] [支持基板]

支持基板21は、2枚の有機EL素子10を、接着部材22を介して搭載した際に、その状態を保持可能な板状部材であれば、任意の板状部材を用いることができる。

[0131] なお、面状発光体20をフレキシブルに屈曲する構成とする場合には、支持基板21を、屈曲性を有する可撓性基板で構成する。このような可撓性基板としては、例えば樹脂フィルムや、板厚が約0.01mm~0.50mmの範囲内の値であるガラス基板などを用いることができる。

[0132] [接着部材]

本実施形態では、各種工業分野において、粘着剤、接着剤等、又は、粘着材、接着材等の呼称で用いられる接着部材のうち、支持基板21又は封止材3上に塗布して、支持基板21と封止材3とを貼り合わせた後に、種々の化学反応により高分子量体又は架橋構造体を形成する硬化型の接着部材22を用いる。すなわち、接着部材22は、紫外線のような光を照射するか、熱を加えるか、又は、加圧することによって接着部分が硬化する材料で形成され

る。

[0133] 上述のような物性を備えた接着部材 22 としては、例えば、ウレタン系、エポキシ系、フッ素含有系、水性高分子－イソシアネート系、アクリル系等の硬化型接着剤、湿気硬化ウレタン接着剤、ポリエーテルメタクリレート型、エステル系メタクリレート型、酸化型ポリエーテルメタクリレート等の嫌気性接着剤、シアノアクリレート系の瞬間接着剤、アクリレート及びペルオキシド系の 2 液型瞬間接着剤等の接着剤が挙げられる。

[0134] また、接着部材 22 の形成手法としては、任意の手法を用いることができ、特に、未硬化の接着剤を供給可能な手法を用いることが好ましい。このような手法としては、例えば、グラビアコーター、マイクログラビアコーター、コンマコーター、バーコーター、スプレー塗布、インクジェット法等の手法が挙げられる。また、未硬化の接着部材 22 の硬化手法には、用いる接着剤に適した手法を用いる。

[0135] なお、図 2 に示す例では、支持基板 21 を用いて複数の有機 EL 素子 10 を支持する構成例を説明したが、本発明はこれに限定されない。例えば、互いに隣り合う 2 枚の有機 EL 素子 10 の側部同士を接着剤（支持部材）で貼り合わせる場合には、支持基板 21 を用いなくてもよい。

[0136] < 3. 各種実施例及び評価結果 >

次に、実際に作製した本発明の有機 EL 素子の各種実施例（サンプル）の構成、並びに、各実施例で作製した有機 EL 素子に対して行った評価試験及びその結果を説明する。

[0137] [各種光取り出しシート]

以下に説明する各種実施例の有機 EL 素子では、互いに構成の異なる複数種の光取り出しシートを用いた。それゆえ、有機 EL 素子の各種実施例の構成を説明する前に、各種実施例で用いた光取り出しシートの構成及び作製手法について説明する。

[0138] (1) 第 1 の光取り出しシート（光取り出しシートのサンプル番号 1）

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液 A（光拡散層 2b の形成

材料)を、厚さ100 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレートフィルム(PET : 基材2a)に塗布することにより、第1の光取り出しシートを作製した。

[0139] (光取り出しシート用溶液A)

アクリルポリオール(アクリディック49-394IM<固形分50%>, 大日本インキ化学工業社) : 162重量部

イソシアネート(タケネートD110N<固形分60%>, 三井武田ケミカル社) : 32重量部

シリカ樹脂粒子(平均粒子径27.2 $\mu$ m) : 200重量部

酢酸ブチル : 215重量部

[0140] (2) 第2の光取り出しシート(光取り出しシートのサンプル番号2)

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Bを、厚さ100 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレートフィルム(PET)に塗布することにより、第2の光取り出しシートを作製した。

[0141] (光取り出しシート用溶液B)

アクリルポリオール(アクリディック49-394IM<固形分50%>, 大日本インキ化学工業社) : 162重量部

イソシアネート(タケネートD110N<固形分60%>, 三井武田ケミカル社) : 32重量部

シリカ樹脂粒子(平均粒子径27.2 $\mu$ m) : 250重量部

酢酸ブチル : 215重量部

[0142] (3) 第3の光取り出しシート(光取り出しシートのサンプル番号3)

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Cを、厚さ100 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレートフィルム(PET)に塗布することにより、第3の光取り出しシートを作製した。

[0143] (光取り出しシート用溶液C)

アクリルポリオール(アクリディック49-394IM<固形分50%>, 大日本インキ化学工業社) : 162重量部

イソシアネート(タケネートD110N<固形分60%>, 三井武田ケミ

カル社) : 32重量部

シリカ樹脂粒子 (平均粒子径 27.2  $\mu\text{m}$ ) : 150重量部

酢酸ブチル : 215重量部

[0144] (4) 第4の光取り出しシート (光取り出しシートのサンプル番号4)

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Dを、厚さ100  $\mu\text{m}$ のポリエチレンテレフタレートフィルム (PET) に塗布することにより、第4の光取り出しシートを作製した。

[0145] (光取り出しシート用溶液D)

アクリルポリオール (アクリディック49-394 IM<固形分50%>, 大日本インキ化学工業社) : 162重量部

イソシアネート (タケネートD110N<固形分60%>, 三井武田ケミカル社) : 32重量部

シリカ樹脂粒子 (平均粒子径 27.2  $\mu\text{m}$ ) : 130重量部

シリコン樹脂粒子 (平均粒子径 30.0  $\mu\text{m}$ ) : 80重量部

酢酸ブチル : 215重量部

[0146] (5) 第5の光取り出しシート (光取り出しシートのサンプル番号5)

上記第4の光取り出しシートで用いられた光取り出しシート用溶液Dを、厚さ100  $\mu\text{m}$ のポリカーボネートフィルムに塗布することにより、第5の光取り出しシートを作製した。

[0147] (6) 第6の光取り出しシート (光取り出しシートのサンプル番号6)

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Eを、厚さ100  $\mu\text{m}$ のポリカーボネートフィルムに塗布することにより、第6の光取り出しシートを作製した。

[0148] (光取り出しシート用溶液E)

アクリルポリオール (アクリディック49-394 IM<固形分50%>, 大日本インキ化学工業社) : 162重量部

イソシアネート (タケネートD110N<固形分60%>, 三井武田ケミカル社) : 32重量部

シリカ樹脂粒子（平均粒子径 27.2  $\mu\text{m}$ ）：120 重量部

シリコン樹脂粒子（平均粒子径 30.0  $\mu\text{m}$ ）：80 重量部

ポリメタクリル酸メチル樹脂（PMMA）粒子（平均粒形 8.0  $\mu\text{m}$ ）：  
30 重量部

酢酸ブチル：215 重量部

[0149] (7) 第7の光取り出しシート（光取り出しシートのサンプル番号7）

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Fを、厚さ100  $\mu\text{m}$ のポリカーボネートフィルムに塗布することにより、第7の光取り出しシートを作製した。

[0150]（光取り出しシート用溶液F）

アクリルポリオール（アクリディック49-3941M<固形分50%>，大日本インキ化学工業社）：162 重量部

イソシアネート（タケネートD110N<固形分60%>，三井武田ケミカル社）：32 重量部

シリカ樹脂粒子（平均粒子径 27.2  $\mu\text{m}$ ）：110 重量部

シリコン樹脂粒子（平均粒子径 30.0  $\mu\text{m}$ ）：80 重量部

ポリメタクリル酸メチル樹脂粒子（平均粒形 8.0  $\mu\text{m}$ ）：30 重量部

ヘキサブロモベンゼン：5 重量部

酢酸ブチル：215 重量部

[0151] (8) 第8の光取り出しシート（光取り出しシートのサンプル番号8）

表面に凹部が周期的に配列された、厚さ40  $\mu\text{m}$ のポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム（凹凸フィルム）を、上記第7の光取り出しシートの光拡散層上に貼り付けることにより、第8の光取り出しシートを作製した。なお、凹凸フィルムの凹部の面形状は球面状とし、凹部の直径は5  $\mu\text{m}$ とし、かつ、凹部の間隔は3  $\mu\text{m}$ とした（すなわち、凹凸パターンの周期は8  $\mu\text{m}$ とした）。また、凹凸パターンは、上述した水滴構造を表面に転写する手法を用いて形成した。

[0152] (9) 第9の光取り出しシート（光取り出しシートのサンプル番号9）

下記の組成で調製された光取り出しシート用溶液Gを、厚さ100 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレート（PET）フィルムに塗布することにより、第9の光取り出しシートを作製した。

[0153]（光取り出しシート用溶液G）

アクリルポリオール（アクリディック49-394IM<固形分50%>，大日本インキ化学工業社）：162重量部

イソシアネート（タケネートD110N<固形分60%>，三井武田ケミカル社）：32重量部

シリカ樹脂粒子（平均粒子径27.2 $\mu$ m）：180重量部

シリコン樹脂粒子（平均粒子径30.0 $\mu$ m）：40重量部

酢酸ブチル：215重量部

[0154] 上述のようにして作製した各種光取り出しシートのヘイズ値及び全光透過率を測定した。その測定結果を図3に示す。上述のように、本実施形態では、光取り出しシート2を、ヘイズ値が約90以上であり、かつ、全光透過率が約80%以上である光拡散シートで構成するので、サンプル番号4～9の光取り出しシートが、本実施形態で用い得る光取り出しシートになる。

[0155] [各種実施例の有機EL素子の構成]

次に、下記各種実施例で作製した有機EL素子の構成及びその作製手法について説明する。図4に、各種実施例の有機EL素子における有機EL素子本体部の概略構成断面図を示す。

[0156] 有機EL素子本体部30は、素子基板31と、陽極32と、正孔注入層33と、正孔輸送層34と、発光層35と、電子輸送層36と、電子注入層37と、陰極38とを備える。そして、陽極32、正孔注入層33、正孔輸送層34、発光層35、電子輸送層36、電子注入層37及び陰極38は、素子基板31の光取り出し面とは反対側の面上に、この順で形成される。

[0157] ここで、有機EL素子本体部30の作製手法を説明しながら、各層の構成（形成材料、膜厚等）を説明する。

[0158] まず、素子基板31として、サイズが60mm×60mmであり、かつ、

厚さが0.7 mmであるガラス基板を用意した。次いで、素子基板31上に、厚さ100 nmのITO膜（屈折率1.85）を形成し、その後、ITO膜に対してパターンニング処理を施して、所定パターンの陽極32を形成した。次いで、陽極32が形成された素子基板31を、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した。その後、洗浄された素子基板31を乾燥窒素ガスで乾燥し、さらに、乾燥後の素子基板31に対して、UVオゾン洗浄を5分間行った。

[0159] 次いで、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液(正孔注入層用塗布液)を、3000 rpm、30秒の条件でスピコーターにより陽極32上に塗布した。次いで、正孔注入層用塗布液が塗布された素子基板31を、基板表面温度が200℃になる環境下で1時間乾燥し、これにより、膜厚30 nmの正孔注入層33を形成した。

[0160] 次いで、窒素雰囲気下で、かつ、JIS B 9920に準拠して測定した清浄度がクラス100である雰囲気下で、露点温度が-80℃以下の値であり、かつ、酸素濃度が0.8 ppmであるグローブボックスに、正孔注入層33が形成された素子基板31を移した。次いで、グローブボックス内において、下記組成の正孔輸送層用塗布液を調製し、該正孔輸送層用塗布液を、1500 rpm、30秒の条件でスピコーターにより、正孔注入層33上に塗布した。そして、正孔輸送層用塗布液が塗布された素子基板31を、基板表面温度が150℃になる環境下で30分加熱乾燥し、これにより、正孔輸送層34を形成した。なお、別途用意した基板上に、正孔輸送層用塗布液の上記塗布条件と同じ条件で正孔輸送層用塗布液を塗布して正孔輸送層を形成し、その膜厚を測定したところ、膜厚は20 nmであった。

[0161] (正孔輸送層用塗布液)

モノクロロベンゼン：100 g

ポリ-N, N'-ビス(4-ブチルフェニル)-N, N'-ビス(フェニ

ル) ベンジジン (ADS254BE : アメリカン・ダイ・ソース社製) : 0.5 g

[0162] 次に、下記組成の発光層用塗布液を調製し、該発光層用塗布液を、2000 rpm、30秒の条件でスピコーターにより、正孔輸送層34上に塗布した。そして、発光層用塗布液が塗布された素子基板31を、基板表面温度が120℃になる環境下で30分加熱乾燥し、これにより、発光層35を形成した。なお、別途用意した基板上に、発光層用塗布液の上記塗布条件と同じ条件で発光層用塗布液を塗布して発光層を形成し、その膜厚を測定したところ、膜厚は40nmであった。また、下記発光層組成物のうち、最も低いT<sub>g</sub> (ガラス転移温度)を示したのはホスト化合物(H-A)であり、132℃であった。

[0163] (発光層用塗布液)

酢酸ブチル : 100 g

ホスト化合物(H-A) : 1 g

第1発光材料(D-A) : 0.11 g

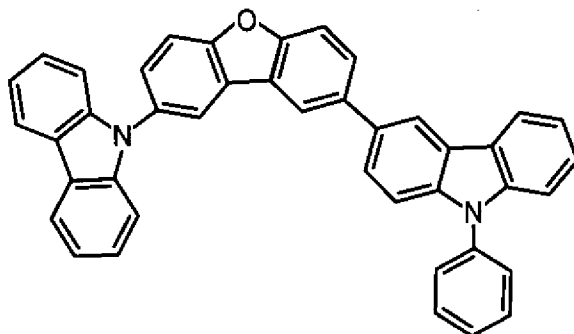
第2発光材料(D-B) : 0.002 g

第3発光材料(D-C) : 0.002 g

[0164] なお、上記発光層用塗布液に含まれるホスト化合物(H-A)、第1発光材料(D-A)、第2発光材料(D-B)、及び、第3発光材料(D-C)は、それぞれ下記構造式(1)~(4)で表される。なお、各発光材料には、イリジウム化合物を用いた。

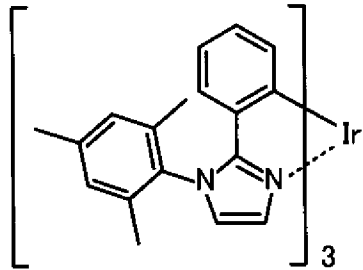
[0165] [化1]

(1) H-A



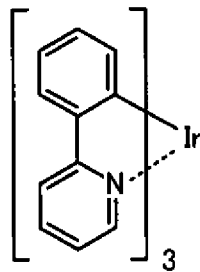
[0166] [化2]

(2) D-A



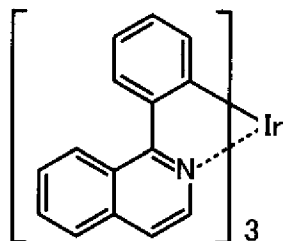
[0167] [化3]

(3) D-B



[0168] [化4]

(4) D-C



[0169] 次いで、下記組成の電子輸送層用塗布液を調製し、該電子輸送層用塗布液を、1500rpm、30秒の条件でスピコートにより、発光層35上

に塗布した。そして、電子輸送層用塗布液が塗布された素子基板 3 1 を、基板表面温度が 1 2 0 °C になる環境下で 3 0 分加熱乾燥し、これにより、電子輸送層 3 6 を形成した。なお、別途用意した基板の上に、電子輸送層用塗布液の上記塗布条件と同じ条件で電子輸送層用塗布液を塗布して電子輸送層を形成し、その膜厚を測定したところ、膜厚は 3 0 n m であった。

[0170] (電子輸送層用塗布液)

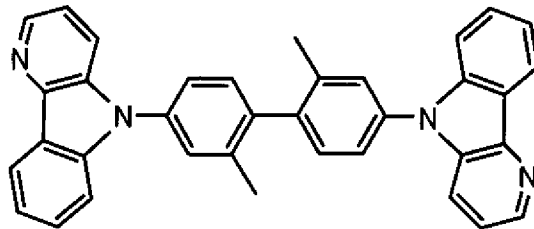
2, 2, 3, 3-テトラフルオロ-1-プロパノール : 1 0 0 g

電子輸送材料 (E T - A) : 0. 7 5 g

[0171] なお、上記電子輸送層用塗布液に含まれる電子輸送材料 (E T - A) は、カルバゾール誘導体であり、下記構造式 (5) で表される。

[0172] [化5]

(5) ET-A



[0173] 次に、電子輸送層 3 6 まで形成された素子基板 3 1 を、大気暴露せずに、蒸着機に移動させ、その後、蒸着機内を  $4 \times 10^{-4}$  P a まで減圧した。なお、減圧前に、予め、フッ化カリウム及びアルミニウムをそれぞれタンタル製抵抗加熱ポートに入れ、該抵抗加熱ポートを蒸着機に取り付けた。

[0174] 次に、フッ化カリウムの入った抵抗加熱ポートに通電して該抵抗加熱ポートを加熱した。これにより、電子輸送層 3 6 上に、フッ化カリウムを蒸着して、膜厚 3 n m の電子注入層 3 7 を形成した。

[0175] 次に、アルミニウムの入った抵抗加熱ポートに通電して該抵抗加熱ポートを加熱した。これにより、電子注入層 3 7 上に、アルミニウムを蒸着速度 1 ~ 2 n m / 秒で蒸着して、膜厚 1 0 0 n m の陰極 3 8 を形成した。

[0176] ここでは、このようにして、有機EL素子本体部30を作製した。その後、有機EL素子本体部30の陰極38側の表面に封止材を設けた。そして、最後に、素子基板31の光取り出し面（陽極32側とは反対側の面）に、上述した第1～第8の光取り出しシートのいずれかを接着剤を介して貼り付けて、下記各種実施例及び各種比較例の有機EL素子を作製した。

[0177] [実施例1]

(1) 有機EL素子の構成（実施例1-1～1-6）

実施例1では、上記第4～第9の光取り出しシートをそれぞれ用いて有機EL素子（実施例1-1～1-6）を作製した。

[0178] また、この例では、実施例1-1～1-6の有機EL素子と比較するため、光取り出しシートを備えない有機EL素子（比較例1-1）を作製した。さらに、比較例として、上記第1～第3の光取り出しシートをそれぞれ用いて有機EL素子（比較例1-2～1-4）を作製した。

[0179] (2) 特性評価

実施例1では、上述のようにして作製した実施例1-1～1-6及び比較例1-1～1-4の各有機EL素子に対して、次のような輝度特性の評価を行った。

[0180] 輝度特性の評価では、まず、作製直後の各有機EL素子に、 $2.5\text{ mA/cm}^2$ の直流定電流を流したときの輝度（初期輝度）を、分光放射輝度計CS-2000（コニカミノルタセンシング製）を用いて測定した。そして、この測定した輝度に基づいて、光取り出し効率を算出した。なお、光取り出し効率は、光取り出しシートを備えない有機EL素子（比較例1-1）の輝度に対する、光取り出しシートを備える有機EL素子（実施例1-1～1-6及び比較例1-2～1-4）の輝度の比率とした。

[0181] また、この例における輝度特性の評価では、実施例1-1～1-6及び比較例1-1～1-4の各有機EL素子を、温度60℃、相対湿度90%の恒温恒湿槽内で100時間放置した後、上記手法と同様にして輝度（高温高湿後輝度）を測定した（耐候性試験）。

[0182] さらに、この例における輝度特性の評価では、有機EL素子を恒温恒湿槽に投入する前の輝度（初期輝度）と、投入後の輝度（高温高湿後輝度）とから輝度低下率を算出した。具体的には、 $[\text{投入後の輝度} / \text{投入前の輝度}] \times 100 (\%)$  の算出式で輝度低下率を算出した。

[0183] また、実施例1の特性評価では、実施例1-1～1-6及び比較例1-1～1-4の各有機EL素子の光取り出しシートの黄変の有無を調べた。具体的には、上述した耐候性試験後、非発光状態で、有機EL素子の光取り出しシート側の面を目視で観察し、黄変の有無を2段階（後述の「OK」評価、「NG」評価）で評価した。

[0184] 図5に、上記各種評価の結果を示す。なお、図5には、評価結果だけでなく、各有機EL素子の素子基板及び光取り出しシートの構成も一緒に記載する。また、図5中の黄変の有無を示す「OK」評価及び「NG」評価の基準は下記の通りである。

OK：黄変が認識できない。

NG：明らかに黄色に変色している。

[0185] 図5に示す評価結果から明らかのように、実施例1-1～1-6の各有機EL素子では、輝度特性の全ての項目（輝度（初期輝度）、光取り出し効率、高温高湿後輝度及び輝度低下率）において、比較例1-1～1-4の有機EL素子の特性以上の特性が得られた。

[0186] また、比較例1-2～1-4では、黄変が見られたが、実施例1-1～1-6では、黄変が観測されなかった。なお、光取り出しシートを備えない比較例1-1の有機EL素子では黄変は見られないが、輝度（初期輝度）、光取り出し効率及び高温高湿後輝度が他の有機EL素子に比べて劣る。

[0187] 上記実施例1の評価結果から、光取り出しシートとして、第4～第9の光取り出しシート（図5中のサンプル番号4～9）を用いることにより、黄変が無く、かつ、輝度特性の優れた有機EL素子が得られることが分かった。すなわち、光拡散層に少なくともシリコン化合物が添加され、ヘイズ値が約90以上の値となり、かつ、全光透過率が約80%以上の値となる光取り出

しシートを、有機EL素子の光取り出し面に設けることにより、光取り出し効率及び耐光性の両方が優れた有機EL素子が得られることが分かった。

[0188] [実施例2]

(1) 有機EL素子の構成 (実施例2-1~2-6)

実施例2では、素子基板31の形成材料を種々変化させて有機EL素子(実施例2-1~2-6)を作製した。なお、実施例2の有機EL素子において、素子基板31以外の構成は、上記実施例1-5の有機EL素子の対応する構成と同様とした。すなわち、実施例2では、光取り出しシートとして、光取り出し面に凹凸パターンを形成した第8の光取り出しシート(光取り出しシートのサンプル番号8)を用いた。

[0189] 実施例2-1~2-6のそれぞれで用いた素子基板31は次の通りである。実施例2-1の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ200 $\mu$ mのPEN(ポリエチレンナフタレート)フィルムを用いた。実施例2-2の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ200 $\mu$ mのPET(ポリエチレンテレフタレート)フィルムを用いた。実施例2-3の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ200 $\mu$ mのポリイミドフィルムを用いた。

[0190] また、実施例2-4の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ0.4mmのガラス基板、すなわち、薄膜ガラスを用いた。実施例2-5の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ0.2mmのガラス基板(薄膜ガラス)を用いた。そして、実施例2-6の有機EL素子では、素子基板31として、厚さ90 $\mu$ mのアルミニウム箔の両面に、厚さ30 $\mu$ mのポリイミド層(絶縁層)を設けたメタルフォイル基板を用いた。

[0191] なお、この例では比較のため、上記比較例1-1の有機EL素子(光取り出しシート無し)の素子基板を、厚さ200 $\mu$ mのPENフィルムに変更した有機EL素子(比較例2-1)を作製した。また、比較例2-1の有機EL素子の光取り出し面に上記第1の光取り出しシート(光取り出しシートのサンプル番号1)を貼り付けた有機EL素子(比較例2-2)も作製した。さらに、比較例2-1の有機EL素子において素子基板を、厚さ200 $\mu$ m

のPETフィルムに変更した有機EL素子（比較例2-3）を作製した。

[0192] (2) 特性評価

実施例2では、上記実施例2-1～2-6及び比較例2-1～2-3の各有機EL素子に対して、上記実施例1と同様にして、輝度特性、及び、黄変の有無を評価した。なお、黄変の有無の評価基準は、上記実施例1の評価基準と同様である。

[0193] また、この例では、各サンプルの光取り出し効率を、次のようにして算出した。比較例2-1及び2-2のサンプルについては、比較例2-1の輝度（=550）を基準（光取り出し効率=1.00）にして光取り出し効率を求めた。実施例2-1～2-6、及び、比較例2-3の各サンプルについては、ここでは説明を省略するが、サンプル毎（素子基板毎）に対応する、光取り出しシートを設けない構成の有機EL素子をそれぞれ作製し、該作製した光取り出しシート無しの有機EL素子の輝度を基準にして、各サンプルの光取り出し効率を求めた。

[0194] 図6に、その評価結果を示す。なお、図6には、上記実施例1-5の有機EL素子の評価結果も一緒に記載する。

[0195] 図6から明らかなように、光拡散層に少なくともシリコン化合物が添加され、ヘイズ値が約90以上の値であり、かつ、全光透過率が約80%以上の値である光取り出しシートを用いた場合、素子基板31の形成材料としてPEN、PET、ポリイミド、ガラス及びメタフォイルのいずれを用いても、黄変が無く、かつ、輝度特性の優れた有機EL素子が得られることが分かった。さらに、上記構成条件を満たす光取り出しシートを用い、素子基板31としてガラス基板を用いた場合には、素子基板31（ガラス基板）の厚さに関係なく、優れた発光特性が得られることが分かった。

[0196] [実施例3]

実施例3では、上記実施例1-5、上記実施例2-1～2-6、及び、比較例2-1～2-3の各有機EL素子に対して、JIS C8105-1に記載の手法に従ってグローワイヤー耐熱性試験を実施し、各有機EL素子の

難燃性について調べた。

[0197] 図7に、その評価結果を示す。なお、図7に示す難燃性の「OK」評価及び「NG」評価の基準は下記の通りである。

OK：グローワイヤーを有機EL素子から離した後、30秒より短い時間で消火した。

NG：グローワイヤーを有機EL素子から離した後、30秒を越えても消火しない。

[0198] 図7から明らかなように、光拡散層に少なくともシリコン化合物が添加され、ヘイズ値が約90以上の値となり、かつ、全光透過率が約80%以上の値となる光取り出しシートを用いた場合、光取り出し効率及び耐候性だけでなく、難燃性にも優れた有機EL素子が得られることが分かった。

[0199] なお、上記各種実施例では、具体的に示さなかったが、光取り出しシートの基材をフッ素樹脂含有フィルムで構成した場合についても、上記各種実施例と同様の評価を行った。その結果、光取り出しシートの基材をフッ素樹脂含有フィルムで構成した場合もまた、上記各種実施例と同様の評価結果が得られた。

### 符号の説明

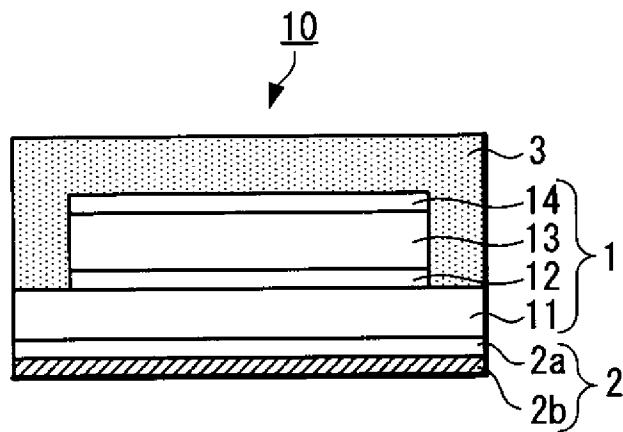
[0200] 1…有機EL素子本体部、2…光取り出しシート、2a…基材、2b…光拡散層、3…封止材、10…有機EL素子、11…素子基板、12…陽極、13…有機化合物層、14…陰極、20…面状発光体、21…支持基板、22…接着部材

## 請求の範囲

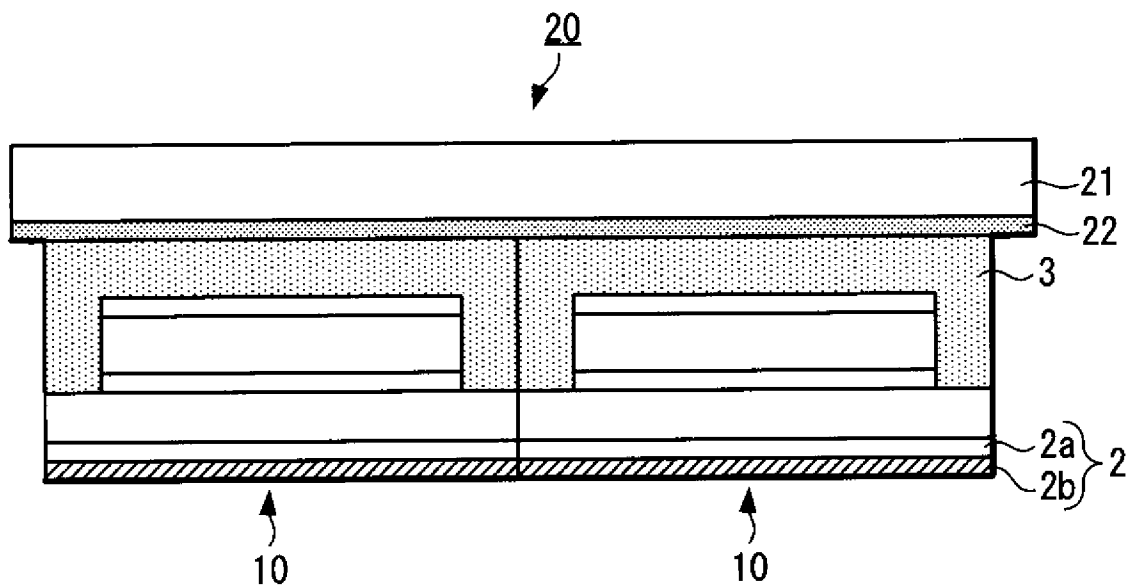
- [請求項1] 素子基板、該素子基板上に形成された第1電極、該第1電極上に形成されかつ発光層を含む有機化合物層、及び、該有機化合物層上に形成された第2電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子本体部と、
- 前記有機エレクトロルミネッセンス素子本体部の光取り出し側に設けられた光取り出しシートとを備え、
- 前記光取り出しシートがシリコン化合物を含み、前記光取り出しシートのヘイズ値が90以上の値であり、かつ、前記光取り出しシートの全光透過率が80%以上の値であることを特徴とする
- 有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項2] 前記光取り出しシートのヘイズ値が92以上の値であり、かつ、前記光取り出しシートの全光透過率が82%以上の値であることを特徴とする
- 請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項3] 前記光取り出しシートが基材を有し、該基材が、ポリカーボネートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリイミドフィルム、及び、フッ素樹脂含有フィルムのいずれかであることを特徴とする
- 請求項1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項4] 前記光取り出しシートが、さらに、ポリアクリル酸エステル樹脂を含むことを特徴とする
- 請求項1～3のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項5] 前記光取り出しシートが、さらに、臭素含有化合物を含むことを特徴とする
- 請求項1～4のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [請求項6] 前記光取り出しシートの光取り出し面に所定の凹凸パターンが形成されていることを特徴とする  
請求項1～5のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項7] 前記素子基板が、薄膜ガラスであることを特徴とする  
請求項1～6のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項8] 前記素子基板が、メタルフォイルであることを特徴とする  
請求項1～7のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項9] 前記素子基板が、ポリイミドフィルムであることを特徴とする  
請求項1～8のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項10] 複数の有機エレクトロルミネッセンス素子と、  
前記複数の有機エレクトロルミネッセンス素子を、所定の形態で配列して支持する支持部材とを備え、  
前記有機エレクトロルミネッセンス素子が、素子基板、該素子基板上に形成された第1電極、該第1電極上に形成されかつ発光層を含む有機化合物層、及び、該有機化合物層上に形成された第2電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子本体部と、該有機エレクトロルミネッセンス素子本体部の光取り出し側に設けられた光取り出しシートとを有し、  
前記光取り出しシートがシリコン化合物を含み、前記光取り出しシートのヘイズ値が90以上の値であり、かつ、前記光取り出しシートの全光透過率が80%以上の値であることを特徴とする  
面状発光体。

[図1]

**FIG. 1**

[図2]

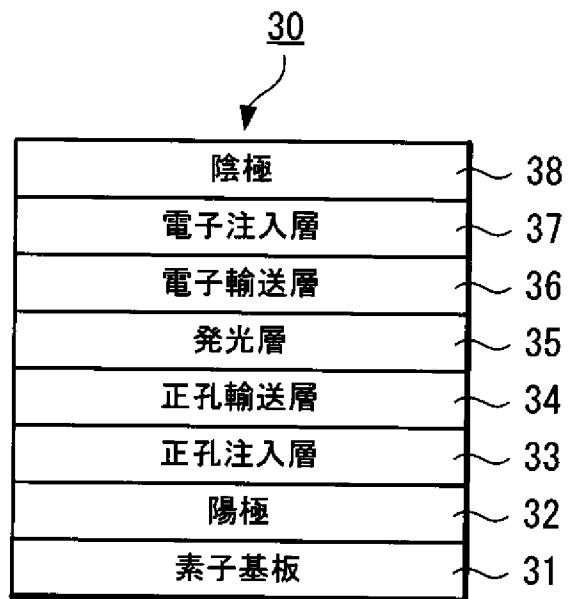
**FIG. 2**

[図3]

**FIG. 3**

|             |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
|-------------|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| 光取り出しシートNo. | 1  | 2  | 3  | 4  | 5  | 6  | 7  | 8  | 9  |
| ヘイズ値        | 85 | 92 | 82 | 92 | 92 | 93 | 94 | 96 | 90 |
| 全光透過率(%)    | 75 | 71 | 83 | 85 | 86 | 85 | 85 | 82 | 80 |

[図4]

**FIG. 4**

[図5]

FIG. 5

| サンプル            | 比較例<br>1-1   | 比較例<br>1-2   | 比較例<br>1-3   | 比較例<br>1-4   | 実施例<br>1-1   | 実施例<br>1-2   | 実施例<br>1-3           | 実施例<br>1-4                       | 実施例<br>1-5                       | 実施例<br>1-6   |
|-----------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|----------------------|----------------------------------|----------------------------------|--------------|
| 有機EL素子<br>基板    | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm | ガラス<br>0.7mm         | ガラス<br>0.7mm                     | ガラス<br>0.7mm                     | ガラス<br>0.7mm |
| 光取り出し<br>シートNo. | —            | 1            | 2            | 3            | 4            | 5            | 6                    | 7                                | 8                                | 9            |
| 基材              | —            | PET          | PET          | PET          | PET          | ポリカーボ<br>ネイト | ポリカーボ<br>ネイト         | ポリカーボ<br>ネイト                     | ポリカーボ<br>ネイト                     | PET          |
| 添加化合物           | —            | シリカ樹脂        | シリカ樹脂        | シリカ樹脂        | シリコン<br>化合物  | シリコン<br>化合物  | シリコン<br>化合物<br>+PMMA | シリコン化合<br>物+PMMA<br>+臭素含有<br>化合物 | シリコン化合<br>物+PMMA<br>+臭素含有<br>化合物 | シリコン<br>化合物  |
| 表面加工            | —            | —            | —            | —            | —            | —            | —                    | —                                | 凹凸形状                             | —            |
| ヘイズ値            | —            | 85           | 92           | 82           | 92           | 92           | 93                   | 94                               | 96                               | 90           |
| 全光透過率           | —            | 75%          | 71%          | 83%          | 85%          | 86%          | 85%                  | 85%                              | 82%                              | 80%          |
| 輝度              | 600          | 800          | 730          | 820          | 900          | 940          | 920                  | 950                              | 1000                             | 810          |
| 光取り出し<br>効率     | 1.00         | 1.33         | 1.22         | 1.37         | 1.50         | 1.57         | 1.53                 | 1.58                             | 1.67                             | 1.35         |
| 高温高湿度<br>輝度     | 580          | 680          | 640          | 730          | 880          | 925          | 910                  | 920                              | 970                              | 740          |
| 輝度低下率           | 97%          | 85%          | 88%          | 89%          | 98%          | 98%          | 99%                  | 97%                              | 97%                              | 92%          |
| 黄変              | OK           | NG           | NG           | NG           | OK           | OK           | OK                   | OK                               | OK                               | OK           |

[図6]

FIG. 6

| サンプル            | 比較例<br>2-1 | 比較例<br>2-2 | 比較例<br>2-3 | 実施例<br>1-5   | 実施例<br>2-1 | 実施例<br>2-2 | 実施例<br>2-3 | 実施例<br>2-4   | 実施例<br>2-5   | 実施例<br>2-6  |
|-----------------|------------|------------|------------|--------------|------------|------------|------------|--------------|--------------|-------------|
| 有機EL素子<br>基板    | PEN        | PEN        | PET        | ガラス<br>0.7mm | PEN        | PET        | ポリイミド      | ガラス<br>0.4mm | ガラス<br>0.2mm | メタル<br>フオイル |
| 光取り出し<br>シートNo. | —          | 1          | 1          | 8            | 8          | 8          | 8          | 8            | 8            | 8           |
| 輝度              | 550        | 700        | 750        | 1000         | 850        | 860        | 840        | 1100         | 1150         | 940         |
| 光取り出し効率         | 1.00       | 1.27       | 1.32       | 1.67         | 1.49       | 1.49       | 1.52       | 1.80         | 1.87         | 1.59        |
| 高温高湿後<br>輝度     | 520        | 600        | 620        | 970          | 800        | 810        | 805        | 1050         | 1100         | 920         |
| 輝度低下率           | 95%        | 86%        | 83%        | 97%          | 94%        | 94%        | 96%        | 95%          | 96%          | 98%         |
| 黄変              | OK         | NG         | NG         | OK           | OK         | OK         | OK         | OK           | OK           | OK          |

[図7]

FIG. 7

| サンプル            | 比較例<br>2-1 | 比較例<br>2-2 | 比較例<br>2-3 | 実施例<br>1-5   | 実施例<br>2-1 | 実施例<br>2-2 | 実施例<br>2-3 | 実施例<br>2-4   | 実施例<br>2-5   | 実施例<br>2-6  |
|-----------------|------------|------------|------------|--------------|------------|------------|------------|--------------|--------------|-------------|
| 有機EL素子<br>基板    | PEN        | PEN        | PET        | ガラス<br>0.7mm | PEN        | PET        | ポリイミド      | ガラス<br>0.4mm | ガラス<br>0.2mm | メタル<br>フオイル |
| 光取り出し<br>シートNo. | —          | 1          | 1          | 8            | 8          | 8          | 8          | 8            | 8            | 8           |
| 難燃性             | NG         | NG         | NG         | OK           | OK         | OK         | OK         | OK           | OK           | OK          |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2012/075690

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

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

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 | 1996-2012 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2012 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2012 |

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<br>Y    | WO 2011/046190 A1 (Asahi Glass Co., Ltd.),<br>21 April 2011 (21.04.2011),<br>paragraphs [0134] to [0168]; fig. 4<br>& EP 2490506 A1 & CA 2777649 A<br>& CN 102577601 A & MX 2012004318 A<br>& TW 201125420 A & KR 10-2012-0098611 A | 1, 2<br>10            |
| Y         | JP 2000-298203 A (Shiseido Co., Ltd.),<br>24 October 2000 (24.10.2000),<br>claim 5; paragraphs [0018] to [0020], [0032] to<br>[0036]; fig. 2<br>(Family: none)  | 1-3, 6-10             |

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  
25 December, 2012 (25.12.12)

Date of mailing of the international search report  
08 January, 2013 (08.01.13)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/075690

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y         | JP 2009-238694 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.),<br>15 October 2009 (15.10.2009),<br>paragraphs [0015] to [0017]; fig. 1<br>& US 2011/0018431 A1 & EP 2278853 A1<br>& WO 2009/119558 A1 & CN 101982011 A<br>& KR 10-2011-0004367 A & TW 200950580 A | 1-3, 6-10             |
| Y         | JP 2003-109747 A (Matsushita Electric Works,<br>Ltd.),<br>11 April 2003 (11.04.2003),<br>paragraphs [0016] to [0020]; fig. 1, 2<br>(Family: none)  | 1-3, 6-10             |
| Y         | WO 2011/105141 A1 (Konica Minolta Holdings,<br>Inc.),<br>01 September 2011 (01.09.2011),<br>paragraphs [0024] to [0030]; fig. 1<br>(Family: none)  | 7-9                   |
| Y         | JP 2011-228262 A (Panasonic Electric Works<br>Co., Ltd.),<br>10 November 2011 (10.11.2011),<br>paragraphs [0119] to [0125], [0158] to [0172];<br>fig. 14, 21 to 24<br>& WO 2011/090039 A1 & DE 112011100278 T<br>& TW 201214819 A & CN 102714894 A | 10                    |
| P,X       | JP 2011-248104 A (JSR Corp.),<br>08 December 2011 (08.12.2011),<br>claims 1, 8, 13, 14; paragraphs [0090] to<br>[0097], [0099], [0100], [0104], [0106], [0107];<br>example 11<br>(Family: none)  | 1, 3                  |
| P,A       | WO 2011/148823 A1 (Konica Minolta Holdings,<br>Inc.),<br>01 December 2011 (01.12.2011),<br>paragraphs [0025] to [0201]; fig. 1 to 4<br>(Family: none)  | 1-10                  |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2012/075690

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The matter to define the inventions of claims 1 and 2 of the present application is disclosed in the document 1 (WO 2011/046190 A1 (Asahi Glass Co., Ltd.), 21 April 2011 (21.04.2011), paragraphs [0134] to [0168]; fig. 4).

Consequently, since the inventions of claims 1 and 2 of the present application cannot be considered to be novel in the light of the invention disclosed in the document 1 and have no special technical feature, the inventions of claims 1-10 of the present application are lack in unity of invention.

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int.Cl. H05B33/02(2006.01)i, G02B5/02(2006.01)i, H01L51/50(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 (IPC))  
 Int.Cl. H05B33/02, G02B5/02, H01L51/50

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 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2012年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2012年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2012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<br>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<br>請求項の番号 |
|-----------------|--|----------------|
| X               | WO 2011/046190 A1 (旭硝子株式会社)<br>2011.04.21, [0134] - [0168], [図4]   | 1, 2           |
| Y               | & EP 2490506 A1<br>& CA 2777649 A<br>& CN 102577601 A<br>& MX 2012004318 A<br>& TW 201125420 A<br>& KR 10-2012-0098611 A | 10             |

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。

|   |   |
|---|---|
| <p>* 引用文献のカテゴリー<br/>                 「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<br/>                 「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<br/>                 「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)<br/>                 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br/>                 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p> | <p>の日の後に公表された文献<br/>                 「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<br/>                 「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<br/>                 「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<br/>                 「&amp;」同一パテントファミリー文献</p> |
|---|---|

|   |  |
|---|--|
| 国際調査を完了した日<br>25.12.2012  | 国際調査報告の発送日<br>08.01.2013                               |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁 (ISA/J P)<br>郵便番号100-8915<br>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)<br>本田 博幸<br>電話番号 03-3581-1101 内線 3271 |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |  |                |
|-----------------------|--|----------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| Y                     | JP 2000-298203 A (株式会社資生堂)<br>2000. 10. 24, 【請求項5】, 【0018】 - 【0020】,<br>【0032】 - 【0036】, 【図2】<br>(ファミリーなし)   | 1-3,<br>6-10   |
| Y                     | JP 2009-238694 A (住友化学株式会社)<br>2009. 10. 15, 【0015】 - 【0017】, 【図1】<br>& US 2011/0018431 A1<br>& EP 2278853 A1<br>& WO 2009/119558 A1<br>& CN 101982011 A<br>& KR 10-2011-0004367 A<br>& TW 200950580 A | 1-3,<br>6-10   |
| Y                     | JP 2003-109747 A (松下電工株式会社)<br>2003. 04. 11, 【0016】 - 【0020】, 【図1】, 【図2】<br>(ファミリーなし)  | 1-3,<br>6-10   |
| Y                     | WO 2011/105141 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2011. 09. 01, [0024] - [0030],<br>[図1]<br>(ファミリーなし)  | 7-9            |
| Y                     | JP 2011-228262 A (パナソニック電工株式会社)<br>2011. 11. 10, 【0119】 - 【0125】, 【0158】 -<br>【0172】, 【図14】, 【図21】 - 【図24】<br>& WO 2011/090039 A1<br>& DE 112011100278 T<br>& TW 201214819 A<br>& CN 102714894 A       | 10             |
| P, X                  | JP 2011-248104 A (JSR株式会社)<br>2011. 12. 08, 【請求項1】, 【請求項8】, 【請求項13】,<br>【請求項14】, 【0090】 - 【0097】, 【0099】,<br>【0100】, 【0104】, 【0106】, 【0107】, 実施例11<br>(ファミリーなし)  | 1, 3           |
| P, A                  | WO 2011/148823 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2011. 12. 01, [0025] - [0201],<br>[図1] - [図4]<br>(ファミリーなし)   | 1-10           |

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求項 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2.  請求項 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3.  請求項 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

文献1（WO 2011/046190 A1（旭硝子株式会社）2011.04.21，[0134]－[0168]，[図4]）には、本願の請求項1、2に係る発明の発明特定事項が記載されている。

したがって、本願の請求項1、2に係る発明は、文献1に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しないので、本願の請求項1乃至10に係る発明は、発明の単一性が欠如している。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。