

(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
2011年10月27日(27.10.2011)

PCT



(10) 国際公開番号

WO 2011/132773 A1

(51) 国際特許分類:

H05B 33/02 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2011/059935

(22) 国際出願日: 2011年4月22日(22.04.2011)

(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 2010-099292 2010年4月22日(22.04.2010) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 奈良岡 亮 (NARAOKA Ryo) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 福田 雅彦 (FUKUDA Masahiko) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 熊 均 (KUMA Hitoshi) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人樹之下知的財産事務所 (KINOSHITA & ASSOCIATES); 〒1670051 東京都杉並区荻窪五丁目26番13号 荻窪TMビル3階 Tokyo (JP).

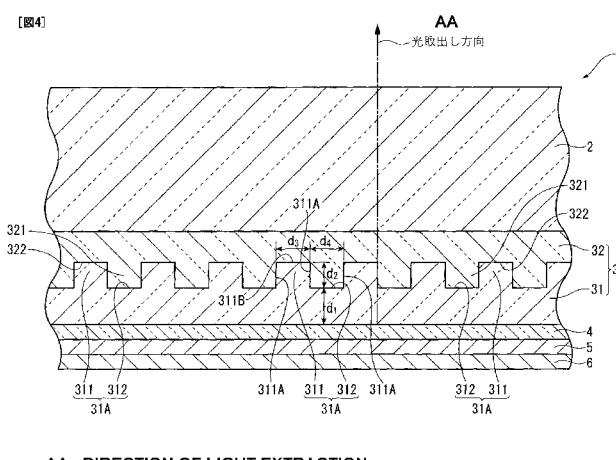
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND LIGHTING DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置



(57) Abstract: Disclosed is an organic EL element (1)—which is provided with a counter electrode (6), an organic light-emitting layer (5), and a transparent electrode (4) on a translucent substrate (2)—wherein: a light extraction layer (3), of which a high refractive index layer (31) adjacent to the transparent electrode (4) and a low refractive index layer (32) adjacent to the translucent substrate (2) are stacked, has a plurality of irregular-section units (31A) configured from convex sections (311) and concave sections (312) at the interface of the high refractive index layer (31) and the low refractive index layer (32); in at least one of the plurality of irregular-section units (31A), the distance (d_1) from the interface between the high refractive index layer (31) and the low refractive index layer (32) to the interface between the transparent electrode (4) and the high refractive index layer (31) is at least the optical coherence length; and the height (d_2) of the convex sections (311), the width (d_3) of the convex sections (311), and the spacing (d_4) between each convex sections (311) and the adjacent convex sections (311) with concave sections (312) therebetween is at least 1 μm .

(57) 要約:

[続葉有]



(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)）

透光性基板（2）に透明電極（4）と、有機発光層（5）と、対向電極（6）とが設けられた有機EL素子（1）であって、透明電極（4）に隣接する高屈折率層（31）及び透光性基板（2）に隣接する低屈折率層（32）が積層される光取出し層（3）は、その高屈折率層（31）と低屈折率層（32）との界面に凸部（311）及び凹部（312）で構成される複数の凹凸部ユニット（31A）を有し、複数の凹凸部ユニット（31A）のうち少なくとも一つにおける高屈折率層（31）と低屈折率層（32）との界面から透明電極（4）と高屈折率層（31）との界面までの距離d₁が光学可干渉距離以上で、かつ、凸部（311）の高さd₂、凸部（311）の幅d₃、及び凸部（311）と凹部（312）を介して隣接する凸部（311）との間隔d₄が1μm以上である。

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照明装置 技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子及び照明装置に関する。

背景技術

[0002] 陽極と陰極との間に発光層を含む有機薄膜層を備え、陽極から発光層に注入された正孔と陰極から発光層に注入された電子とが有機薄膜層で再結合し、その再結合によって生じる励起子（エキシトン）エネルギーによって発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。

有機エレクトロルミネッセンス素子においては、自発光型素子としての利点を活かし、発光効率、画質、消費電力、さらには薄型のデザイン性に優れた発光素子として期待されている。

[0003] 有機エレクトロルミネッセンス素子の光学設計において、発光効率を向上させるために、光学干渉距離の調整が行われている。正孔輸送層などの有機層の膜厚を調整することで、実効的な発光効率の向上や発光スペクトルの変調が可能であり、素子設計において不可欠な手法となっている。

しかしながら、光学干渉距離の調整だけでは素子内部に閉じ込められた光を取り出すことはできない。そこで、素子内部に閉じ込められた光を効率良く取り出し、飛躍的に発光効率を向上させるための構造を備えた素子が提案されている。

[0004] 有機薄膜層を支持する透光性の支持基体（透光体）が位置する方向に光を取り出す素子構成における光の損失は、主に次のようなモードに分類される。

- (i) 透光体と空気との界面での全反射により、透光体内に閉じ込められる光のモード（基板モード）
- (ii) 透明電極と透光体との界面での全反射により、透明電極及び有機層内に閉じ込められる光のモード（薄膜モード）

(iii) 金属電極に表面プラズモンとして吸収される光のモード（表面プラズモンモード）

これらの損失モードは、有機発光層中における全発光エネルギー量に対して、発光分子の存在する状態によって数10%から100%近くに及ぶ。ゆえに、これらの損失モードをどの様にして外部へ取り出すかが、高効率で発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の開発に必要となる。

上記基板モード、薄膜モード及び表面プラズモンモードに起因する光の閉じ込めは、いずれも発光層において放射された光がエバネッセント光として素子内部に閉じ込められることによるものである。

素子内部にエバネッセント光として閉じ込められた光を取り出す具体的な手法として、種々の方法が報告されている。

[0005] 基板モードの光を取り出す手法としては、透光性支持基体表面に光散乱微粒子やマイクロレンズなどの凹凸構造を設ける手法が提案されている。例えば、特許文献1では、電極、エレクトロルミネッセンス層、及び透光体がこの順に配置され、さらに、透光体の光取出し面側に光散乱機能を有する層が設けられている。透光体と空気との界面に光散乱微粒子を配置することで、基板モードからの光取り出しを行っている。また、実施の形態として、光の方向を変化させ全反射を抑制するような散乱層などの構造を透光体内部に備えた素子構成も提案されている。

[0006] 薄膜モードの光を取り出す手法としては、透光性基体と透明電極層との間に光散乱層を備えた素子構造が提案されている。光散乱層は、粒径が数10 nmから数10 μm程度のチタニアなどの高屈折率微粒子をバインダー樹脂中に分散させたものや、多孔質性のシリカ層、又は様々な光散乱性の新規性材料が用いられている。

例えば、特許文献2においては、電極、エレクトロルミネッセンス層、高屈折率透明電極層及び透光体がこの順に配置され、さらに、高屈折率透明電極層及び透光体のそれぞれ光取出し面側に、浸み出し光拡散層が設けられている。浸み出し光拡散層は、低屈折材料からなるマトリックス中に光を散乱

させる粒子を含有させた層であって、エバネッセント光を散乱させる機能を持ち、薄膜モードの光取り出しを行う。ここで、光散乱機能とは、発光光線をMie散乱によって多重散乱させることであり、有機薄膜層内部を進む導波光を光取り出し方向に散乱させる、とされている。なお、特許文献2で用いられている手法では、特に、光取り出し層と透明電極との界面の平坦性が悪く透明電極を成膜する際に問題となることから、より信頼性が高く光取り出し効率の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を作成するための手法が求められている。

また、特許文献3では、マイクロレンズなどの凹凸構造を透光性電極及び透光性基板の間に設けることにより光の全反射を抑制する手法が提案されている。

[0007] さらに、サブミクロン程度の微細な周期構造を有する回折格子やフォトニック結晶を備えることにより光の分散関係（エネルギー・波数の関係）を制御し、光取り出し効率を向上させる手法も盛んに研究されている。例えば、特許文献4または特許文献5では、透光性の基板と第1の電極との間にサブミクロン程度の周期性をもつ回折格子部を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子が提案されている。これらの有機エレクトロルミネッセンス素子では、回折格子を備えることでエバネッセント光となって閉じ込められている光（薄膜モードの光）を取り出すことが可能となる。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：特開平8-83688号公報
特許文献2：特許第4140541号公報
特許文献3：特許第4073510号公報
特許文献4：特許第4253302号公報
特許文献5：特許第4386285号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] しかしながら、特許文献1から特許文献5までに記載された技術をもってしても、十分に光取出し効率を高くすることができないという問題があった。

中でも、特許文献1に記載されている手法では、透明電極及び有機層中に閉じ込められている薄膜モードや表面プラズモンモードの光を効果的に取り出すことができなかった。

さらに、特許文献4や特許文献5に記載された技術は、サブミクロン程度の周期性を有する回折格子によって白色光が分光されてしまい、特に、照明装置の光源として用いる発光素子に適さないという問題もあった。

[0010] 本発明の目的は、光取出し効率が高く、照明装置用の光源に適した有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することである。特に、薄膜モードや表面プラズモンモードの光学的損失を調整し、さらに薄膜モードからの光を効果的に取り出して外部量子効率を向上させると共に、回折性の小さい良好な白色発光を得ることのできる有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することである。

また、本発明の目的は、当該有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた照明装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、有機エレクトロルミネッセンス素子内に閉じ込められる発光層から発生した光を効率的に取り出す方策を鋭意検討した結果、透明電極と透明基板との界面に所定の凹凸形状を介在させることで、当該界面における全反射を抑制し、全反射によって生じるエバネッセント光を素子外部へ効率的に取り出せることを見出した。本発明は、このような知見に基づいて成されたものである。

[0012] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、透明電極と、対向電極と、これら透明電極及び対向電極の間に設けられる有機発光層と、透光性基板とを備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記透明電極には

、前記有機発光層と対向する面とは反対の面に光取出し層が隣接して設けられ、この光取出し層は、前記透明電極側から順に積層される高屈折率層及び低屈折率層を備え、前記透光性基板は、前記低屈折率層に隣接して設けられ、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向断面を前記対向電極に対して前記光取出し層を上にして見たときに、前記高屈折率層は、当該高屈折率層と前記低屈折率層との界面に、凸部及び凹部で構成される複数の凹凸部ユニットを有し、前記複数の凹凸部ユニットのうち少なくとも一つの凹凸部ユニットにおける前記高屈折率層と前記低屈折率層との界面から前記透明電極と前記高屈折率層との界面までの距離 d_1 が光学可干渉距離以上で、かつ、前記凸部の高さ d_2 、前記凸部の幅 d_3 、及び前記凸部と前記凹部を介して隣接する他の凸部との間隔 d_4 が $1 \mu m$ 以上であることを特徴とする。

[0013] 本発明によれば、前記透光性基板側から光が取り出される有機エレクトロルミネッセンス素子において、光学可干渉距離以上の膜厚の高屈折率層を透明電極及び透光性基板の間に設けることで表面プラズモンモードに結合する割合が減少し、薄膜モードへの結合効率が高まる。従来技術では、当該高屈折率層を当該位置に設けることが考慮されていないので、表面プラズモンモードに結合する割合が大きく、光取り出し構造の効果は限定的であった。

本発明の構成では、結合効率の高くなった薄膜モードから光を取り出すために、高屈折率材料及び低屈折率材料により構成される凹凸構造を備えることで光取り出し効率が効果的に改善される。すなわち、透明電極側から順に高屈折率層及び低屈折率層が積層される光取出し層が透明電極に隣接して設けられ、上記凹凸部ユニットが高屈折率層と低屈折率層との界面に設けられているので、薄膜モードの光のうち、臨界角以上の角度で高屈折率層に入射する光が当該界面で全反射せずに、低屈折率層まで透過し、最終的に透光性基板を経て、外部へと光が取り出される。

よって、有機発光層で生じた放射光の取り出し効率を向上させることができる。

また、凸部の高さ d_2 、幅 d_3 、及び凸部同士の間隔 d_4 が、可視光領域にお

ける波長よりも十分に大きいので、サブミクロン程度の周期性及び突出高さを有する回折格子のように白色光が分光され難い。そのため、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、回折性の小さい良好な白色発光を得ることができ、照明装置の光源に適している。従来技術では、サブミクロン程度の凹凸構造を採用したため、光取り出しと同時に回折される。さらに従来技術を利用して白色発光を取り出そうとすると、白色光のうち一部波長の光のみ光取り出し効率が上がるうえ、放射角度によって光取り出し効率が変化するため、色合いが発光素子を見る角度で変化するなど、問題となる。前記したように本発明は、白色のように様々な発光波長を含む放射光に対しても、前記した問題が顕著になることなく、光取り出し効率が向上するものである。

[0014] 本発明において、有機エレクトロルミネッセンス素子を基板厚み方向で断面視する場合の、断面位置について説明する。本発明では、有機エレクトロルミネッセンス素子を平面視して、少なくとも2つの隣接する凹凸部ユニットを通過する断面切り出し線に沿って有機エレクトロルミネッセンス素子を切り出して得られる断面を見る。そして、この断面切り出し線の方向及び位置条件は、種々設定できるものであるが、本発明では、少なくとも一の方向及び位置条件で断面を切り出した際に、上記したような光学可干渉距離によって規定される光取出し層及び凹凸部ユニットの寸法を満たしていれば良い。

[0015] 次に、光学可干渉距離の調整について説明する。光学干渉距離の調整は素子設計において一般的に行われている手法であるが、近接場光領域の現象や双極子放射理論にまで立ち戻って素子の発光特性を考えたときに、今までに提案されている光取り出し構造の多くは素子内の発光機構とは別に備えられたものと見なせるものが多数であった。

素子内部に光取り出し機能を有する層が挿入されると、素子が本来有する光学モードに変化が生じるため、光学モードの変化を考慮せずに最適な光学素子の設計をすることはできない。そこで、双極子放射がどの様にして薄膜

モードや表面プラズモンモードに結合するのかを解析し、本発明では、表面プラズモンモードへの結合効率を低下させる上記光取り出し構造を備えることで外部量子効率の向上が可能となる。

また、表面プラズモンモードへの結合が抑制されることで、主に薄膜モードへの結合効率が向上することから、薄膜モードからの光取り出し効率を向上させる上記光取り出し構造を備えることで外部量子効率の向上が可能となる。

さらに、非回折性の周期構造で構築された上記光取り出し構造を備えることで、照明装置において有機発光層で生じた放射光が分光されることなく外部に取り出すことが可能となる。

なお、本発明において、光学可干渉距離は、 $(\text{光学可干渉距離}) = \lambda^2 / [n_H (\Delta \lambda)]$ で規定される。ここで、 λ は有機発光層で生じた放射光の発光スペクトルのピーク波長であり、 $\Delta \lambda$ は発光スペクトルの半値幅である。また、 n_H は高屈折率層の屈折率である。

また、非回折性の周期構造を有する本発明における凸部の高さ d_2 、幅 d_3 、及び凸部同士の間隔 d_4 は、可視光領域における波長よりも十分に大きい必要があるため、通常 $1 \mu m$ 以上を必要とする。好ましくは、 $5 \mu m$ 以上、さらに好ましくは、 $20 \mu m$ 以上である。なお、薄膜モードからの光取出しを効率的に行う意味では、凸部の高さ d_2 、幅 d_3 、及び凸部同士の間隔 d_4 は $1 m$ 以下であることが好ましい。

[0016] <Photonic mode densityの解析による素子設計>

ここで、双極子放射がどの様にして薄膜モードや表面プラズモンモードに結合するのかを、Photonic mode densityの解析結果に基づいて説明する。双極子放射理論の詳細は参考文献(Adv. Chem. Phys. 37 (1973) pp. 1-65) に記載されている。

(素子構成 A 1)

図 1 に、素子構成 A 1 として、典型的なボトムエミッション型の有機エレクトロルミネッセンス素子 100 の構成を示す。有機エレクトロルミネッセ

ンス素子100は、ガラスからなる透光性基板110、ITO(Indium Tin Oxide)からなる透光性電極120、有機層130、Ag(銀)からなる対向電極140を順に備えた素子構成となっている。なお、有機層130は、透光性電極120側から、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、及び電子輸送層を順に備えた構成となっている(有機層130の層構成は図示せず)。図1の有機層130には、正孔及び電子が再結合する再結合領域S1を一点鎖線で示し、有機層130内の発光層で生じた放射光の再結合領域S1からの光路を矢印で示した。また、透光性電極120の厚みLc1は、光学可干渉距離未満である。

この有機エレクトロルミネッセンス素子100において、有機層130内の発光分子を電気双極子モーメントとした場合の双極子放射エネルギーの波数展開形式を計算し、その結果に基づいて、発光分子がランダムに配向している場合における各モードへの結合効率を見積もった。結合効率を表1に示す。

[0017] [表1]

	素子構成 A1			素子構成 A2		
	Parallel	Vertical	Random	Parallel	Vertical	Random
発光モード	0.36	0.01	0.24	0.32	0.02	0.22
基板モード	0.29	0.11	0.23	0.32	0.15	0.26
薄膜モード	0.16	0.03	0.11	0.16	0.25	0.19
SPPsモード	0.20	0.84	0.41	0.20	0.58	0.33

SPPsモード:表面プラズモンモード

[0018] (素子構成 A 2)

図2に、素子構成A2として、膜厚の大きい高屈折率層を有するボトムエミッション型の有機エレクトロルミネッセンス素子200の構成を示す。有機エレクトロルミネッセンス素子200は、有機エレクトロルミネッセンス素子100の透光性基板110と透光性電極120との間に光学可干渉距離よりも十分に厚い膜厚の高屈折率層210を備えた構成となっており、その他は、有機エレクトロルミネッセンス素子100と共通である。図2の有機層130には、正孔及び電子が再結合する再結合領域S2を一点鎖線で示し

、有機層 130 内の発光層で生じた放射光の再結合領域 S2 からの光路を矢印で示した。また、透光性電極 120 及び高屈折率層 210 の合計厚み Lc2 は、光学可干渉距離以上である。

ここで、高屈折率層 210 の屈折率は、透光性基板 110 の屈折率よりも大きく、有機層 130 の屈折率以下である。有機エレクトロルミネッセンス素子 200 は、光学的に十分に厚く、可干渉距離以上の膜厚の高屈折率層 210 を備えることで、電気双極子モーメントの振動は、透光性基板 110 と高屈折率層 210 との界面から受ける電場及び磁場の反射の影響が低下する。すなわち、素子構成 A2 のような光学配置を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子 200 では、反射光による摂動の影響が小さい。一方、素子構成 A1 の光学配置では、電気双極子モーメントの振動は反射光による摂動を受ける。ゆえに、素子構成 A2 の光学配置は、発光層、透光性電極及び高屈折率層をまとめた半無限領域 S3 として、図 3 の様に近似することができる。図 3において、矢印は、再結合領域 S2 における双極子放射の水平方向及び垂直方向を表す。

図 3 に示す光学配置について、有機エレクトロルミネッセンス素子 100 の場合と同様に、発光層 130 中の発光分子を電気双極子モーメントとした場合の双極子放射エネルギーの波数展開形式を計算した。そして、この計算結果に基づいて、発光分子がランダムに配向している場合において各モードへの結合効率を見積もった。結合効率を表 1 に示す。

[0019] 表 1 に示されているように、素子構成 A2 では、表面プラズモンモード (SPPs モード : Surface plasmon Polaritons mode) への結合効率が低下する一方で、薄膜モードなどの他のモードへ結合することが分かる。なお、表面プラズモンモードとは、金属電極側に発光エネルギーが吸収される現象である。ゆえに表面プラズモンモードから光を取り出すことは、他の光学モードから取り出すことに比べて最も困難である。

このように透光性基板 110 と透光性電極 120 との間に高屈折率層 210 を備えた素子構成 A2 とすることで、表面プラズモンモードへの結合が低

下し、薄膜モードへの結合効率が高まる。さらに、本発明のように、高屈折率層と透光性基板との間に低屈折率層を設け、高屈折率層と低屈折率層との界面に凸部及び凹部で構成される複数の凹凸部ユニットを設けることで、結合効率が高まった当該薄膜モードの光を効率的に取り出すことができ、結果として、外部量子効率が向上する。

[0020] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記透明電極の屈折率 n_1 、前記低屈折率層の屈折率 n_L 、前記高屈折率層の屈折率 n_H 、及び前記透光性基板の屈折率 n_2 が次の関係式（1）（2）（3）を満たすことが好ましい。なお、前記屈折率 n_1 、 n_L 、 n_H 、及び n_2 は、波長 550 nm のときの値を示す。

[0021] [数1]

$$|n_1 - n_H| < 0.2 \quad (1)$$

$$|n_2 - n_L| < 0.2 \quad (2)$$

$$n_H > n_L \quad (3)$$

[0022] 本発明によれば、当該関係式（1）～（3）で規定される屈折率の関係を有するので、薄膜モードの光が光取出し層の高屈折率層と低屈折率層との界面まで効率的に導かれる。さらに、高屈折率層と低屈折率層との界面における光の全反射が抑制される。

前記透明電極及び前記高屈折率層の屈折率は、同程度であることが好ましく、同様に前記透光性基板及び前記低屈折率層の屈折率は、同程度であることが好ましい。これらの差が 0.2 を超えると、界面で反射率が高くなり損失モードが著しく増加する要因となる。

したがって、上記関係式（1）～（3）を満たすことにより有機発光層で生じた放射光の取出し効率をさらに高くすることができます。

[0023] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記凸部の高さ d_2 と、前記凸部の幅 d_3 とは、 $2.0 > d_2/d_3 > 0.2$ の関係を満たすことが好ましい。

[0024] 本発明によれば、高屈折率層と低屈折率層との界面にある凹凸部ユニット

まで透過した光をさらに効率的に低屈折率層まで透過させることができるので、光取出し効率をさらに高くすることができる。 d_2/d_3 が2.0より大きくなりアスペクト比が大きくなると、稠密構造をとったときに凸部側縁で屈折した光が隣接する凸部に再び入射する割合が高くなつて、多重反射などが起こり、光取り出し効率の低下を招くおそれがある。均一な面発光を得るためにには稠密構造もしくは、それに準ずるような充填率を取ることが望ましい。

[0025] さらに、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記凸部の高さ方向に沿つた側縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に対して35度以下で傾斜していることが好ましい。

[0026] 本発明によれば、高屈折率層と低屈折率層との界面で全反射する光を効率的に取り出すことができる。

[0027] そして、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記高屈折率層の凸部の側縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に沿つた形状を有することが好ましい。

加えて、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記高屈折率層の凸部上縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に直交する方向に沿つた形状を有することが好ましい。

[0028] これらの発明によれば、高屈折率層と低屈折率層との界面にある凹凸部ユニットまで透過した光をさらに効率的に低屈折率層まで透過させることができるので、光取出し効率をさらに高くすることができる。なお、光の取出し方向に沿つて高屈折率層の凸部側縁が形成されているときは、上記した傾斜角度は0度となる。

[0029] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記光学可干渉距離が $3\mu m$ 以上であることが好ましい。

[0030] この発明によれば、発光ピークの半値幅が広い光についても薄膜モードへの結合効率を効率的に高めることができる。

[0031] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記凸部の高さ d_2 、前記凸部の幅 d_3 、及び前記凸部と前記凹部を介して隣接する他の凸部との間隔 d_4 が $5 \mu m$ 以上であることが好ましい。

d_2 が光学可干渉距離以下の場合、 d_3 及び d_4 が光学可干渉距離以上であることが望ましい。

[0032] この発明によれば、白色光が回折されることをより確実に防ぐことができる。

[0033] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記対向電極と前記有機発光層との間には、膜厚が $70 nm$ 以上の電子輸送帯域が設けられていることが好ましい。

[0034] この発明によれば、電子輸送帯域の膜厚が $70 nm$ 以上なので、有機発光層内の水平方向に配向した発光分子の双極子放射の表面プラズモンモードへの結合効率が低下し、基板モード、薄膜モード、及び発光モードへの結合効率がさらに高まる。そして、上記光取出し層によって薄膜モードの光が効率的に取り出されるので、有機エレクトロルミネッセンス素子の外部量子効率を高めることができる。

[0035] 本発明の照明装置は、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子を備える。

[0036] 本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、高い光取出し効率を有するので、輝度の高い照明装置を提供できる。

図面の簡単な説明

[0037] [図1]ボトムエミッション型の有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構成を示す素子厚み方向の断面図。

[図2]ボトムエミッション型の有機エレクトロルミネッセンス素子であって、高屈折率層を備えた場合の素子構成を示す素子厚み方向の断面図。

[図3]図2の素子構成において、光学配置を近似した場合の一部断面図。

[図4]本発明の第一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向の断面図。

[図5A]前記実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の高屈折率層

を透光性基板側から平面視した図であって、凸部及び凹部の配置パターンを例示する図。

[図5B]図5Aとは、異なる配置パターンを例示する図。

[図5C]図5A、及び図5Bとは、異なる配置パターンを例示する図。

[図6]前記実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の高屈折率層と低屈折率層との界面について図4と同様の方向で断面視して一部拡大した図。

[図7]本発明の第二実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向の断面図。

[図8]水平方向に配向した発光分子の双極子放射のPhotonic mode density解析結果を表す図。

[図9]垂直方向に配向した発光分子の双極子放射のPhotonic mode density解析結果を表す図。

[図10]本発明の第三実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向の断面図。

[図11A]本発明の変形例に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の高屈折率層を透光性基板側から平面視した図であって、凸部及び凹部の配置パターンを例示する図。

[図11B]図11Aとは、異なる配置パターンを例示する図。

[図11C]図11A、及び図11Bとは、異なる配置パターンを例示する図。

[図12]本発明の別の変形例に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向の断面図。

[図13]本発明のさらに別の変形例に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向の断面図。

[図14A]有機エレクトロルミネッセンス素子からのEL発光スペクトルの計測方法を説明する図。

[図14B]図14Aにおける有機エレクトロルミネッセンス素子の構造を示す概略図。

[図15A]光取出し層構造からの散乱回折スペクトルの計測方法を説明する図。

[図15B]図15Aにおける光取出し層構造を示す概略図。

[図16A]実施例に係る有機EL素子の放射形状を示す図。

[図16B]比較例に係る有機EL素子の放射形状を示す図。

発明を実施するための形態

[0038] <第一実施形態>

以下、本発明の第一実施形態を図面に基づいて説明する。

[有機エレクトロルミネッセンス素子]

図4は、第一実施形態に係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。）の厚み方向の断面図であり、その断面の一部を拡大して示している。

有機EL素子1は、透光性基板2と、光取出し層3と、透明電極4と、有機発光層5と、対向電極6と、をこの順に積層されて構成される。

[0039] (透光性基板)

透光性基板2は、光取出し層3と、透明電極4と、有機発光層5と、対向電極6とを支持するための平滑な板状の部材である。有機EL素子1は、有機発光層5で生じた放射光の光取出し方向が、透光性基板2側となる、いわゆるボトムエミッション型の素子である。そのため、透光性基板2は、透光性の部材が用いられ、400nmから700nmまでの可視領域の光の透過率が50%以上であることが好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミニケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート系樹脂、アクリル系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリエーテルサルファイド系樹脂、ポリサルファン系樹脂等を原料として用いてなるものを挙げることができる。透光性基板2の屈折率n₂は、1.4以上1.6以下とするのが好ましい。

[0040] (光取出し層)

光取出し層3は、有機発光層5で生じた放射光を効率的に取り出すために、透光性基板2及び透明電極4の間に設けられる。

光取出し層3は、透明電極4側から順に高屈折率層31及び低屈折率層32が積層されて構成され、低屈折率層32が透光性基板2に隣接する。高屈折率層31は、低屈折率層32よりも高い屈折率を有する。

また、図4に示すように、高屈折率層31は、低屈折率層32との界面に、凸部311及び凹部312で構成される複数の凹凸部ユニット31Aを有している。凸部311は、透明電極4側から透光性基板2側へ向かって略円柱状に突出し、図4に示すように、略矩形の断面形状を有している。

[0041] 図5A、図5B、及び図5C（以下、これらをまとめて図5という場合がある。）は、高屈折率層31の一部を透光性基板2側から平面視した図であり、低屈折率層32及び透光性基板2については、説明の都合上、省略してある。図5は、高屈折率層31の凸部311及び凹部312の配置パターンを例示するものである。配置パターンは、後述する高屈折率層31及び凹凸部ユニット31Aの寸法関係を満たす限りにおいて、図5Bに示すような、凸部311が格子状に配置されたものであったり、図5Aに示すような、稠密構造となるように配置されたものであったり、図5Cに示すような、凸部311同士が接するように配置されたものであってもよいし、このような配置に限られない。また、凸部311と凹部312とが逆の関係になっていてもよい。すなわち、図5の凸部311の位置が凹部312となって、高屈折率層31に穴が設けられた状態であってもよい。

第一実施形態では、図5Bの配置パターンで高屈折率層31が設けられている。なお、図4は、図5BにおけるI V—I V線で断面を切り出した場合であって、矢印方向に沿って見た断面図を示すものである。

[0042] 凹部312は、凸部311が多数配置されていることに伴い、凸部311が配置されていない部分に形成されることになる。そして、図4及び図5に示すように、断面視で凸部311及び凹部312が交互に連続して形成され、一つの凸部311及び一つの凹部312で凹凸部ユニット31Aが構成さ

れる。低屈折率層32は、高屈折率層31と積層されているため、凹凸部ユニット31Aの凸部311に対応する凹部322、及び凹部312に対応する凸部321を有する。

[0043] 図6は、光取出し層3の高屈折率層31と低屈折率層32との界面について図4と同様の方向で断面視して一部拡大した図である。

本発明において、凸部311の高さ方向に沿った側縁（凸部側縁）311Aが有機EL素子1の光取出し方向（有機発光層5から透光性基板2へ向かう方向であって、透光性基板2の面に対して鉛直方向）に対して傾斜する角度θは、35度以下であることが好ましい。凸部側縁311Aの当該傾斜角度θを35度以下にすることで、高屈折率層31と低屈折率層32との界面に臨界角 θ_c 以上の角度で入射する光Rcを、低屈折率層32内へと効率的に導くことができる。

本実施形態では、傾斜角度θが略0度である。そのため、凸部311側縁は、光取出し方向に沿った形状となっている。また、凸部311の幅方向に沿った上縁（凸部上縁）311Bは、光取出し方向と直交する方向に沿った形状となっている。さらに、凹凸部ユニット31Aの凹部312の下縁312A（換言すれば、低屈折率層32側から見て、低屈折率層32の凸部の上縁）も、光取出し方向と直交する方向に沿った形状となっている。

[0044] 本実施形態では、光取出し層3及び凹凸部ユニット31Aの寸法が、光学可干渉距離又は所定の値によって規定される。まず、高屈折率層31と透明電極4との界面から、高屈折率層31と低屈折率層32との界面までの距離d₁は、光学可干渉距離以上である。

また、凸部311の高さd₂、幅d₃、及び一つの凹凸部ユニット31Aを構成する凸部311と他の凹凸部ユニット31Aを構成する凸部311との間隔d₄の寸法は、1μm以上である。好ましくは、5μm以上、さらに好ましくは、20μm以上である。なお、薄膜モードからの光取出しを効率的に行う意味では、凸部311の高さd₂、及び幅d₃、及び凸部311同士の間隔d₄は1mm以下であることが好ましい。高さd₂は、図4のように有機EL

L素子1を断面視したときに、凸部311の上縁を通り透光性基板2の面に沿う方向の直線と凹部312の下縁を通り透光性基板2の面に沿う方向の直線との距離を示す。また、幅d₃は、図4のように有機EL素子1を断面視したときに、凸部311の左右の凸部側縁311A間の透光性基板2の面に沿う方向の距離を示す。さらに、間隔d₄は、図4のように有機EL素子1を断面視したときに、凸部311の左右どちらかの凸部側縁311Aと、凹部312を介して当該左右どちらかの凸部側縁311Aと対向する他の凸部側縁311Aとの透光性基板2の面に沿う方向の距離を示す。

なお、凸部311の高さd₂及び幅d₃とは、 $2.0 > d_2/d_3 > 0.2$ の関係を満たすのが好ましく、本実施形態ではこの関係を満たす。より好ましくは、 $1.0 > d_2/d_3 > 0.5$ の関係を満たすことが好ましい。このような関係を満たすことで、高屈折率層31と低屈折率層32との界面にある凹凸部ユニット31Aまで透過した光をさらに効率的に低屈折率層32まで透過させることができるので、光取出し効率をさらに高くすることができる。 d_2/d_3 が2.0より大きくなりアスペクト比が大きくなると、凸部側縁311Aで屈折した光が隣接する凸部311に再び入射する割合が高くなつて、多重反射などが起こり、光取り出し効率の低下を招くおそれがある。

また、後述するように、有機発光層5は、それぞれ発光可能な有機発光層が積層されて構成される場合もある。この場合は、複数の有機発光層で生じた放射光のピーク波長のうち、最も大きいものを基準として光学可干渉距離を規定するものとする。例えば、赤色、緑色、及び青色で発光する有機発光層5を積層させて、これらの発光色を合成して有機EL素子から白色光を射出する場合には、赤色光のピーク波長が最も大きいので、赤色光のピーク波長に基づいて光学可干渉距離が規定される。

ここで本発明の光学可干渉距離を求めるための半値幅を測定するに当っては、赤色発光分子の発光スペクトルによって規定されるものとする。たとえばピーク波長610nmで半値幅10nmの時には、光学可干渉距離は、約20μmとなる。さらに、演色性に優れた照明装置を得るためにには、発光ビ

一クの半値幅が大きい発光分子を用いることが望ましく、たとえば発光ピーグの半値幅が60 nmのときは、光学可干渉距離は、3.5 μm程度となる。したがって、本発明の高屈折率層31の距離d₁として好ましい範囲は、3 μm以上である。また、実際に用いられる照明パネルの基板の厚さが1 mm程度であることから、高屈折率層の膜厚は1 mm以下が好ましい。

[0045] 高屈折率層31を形成するためには例えば、チタン系メタロキサンポリマーなど無機酸化物をゾルゲル反応により成膜する手法がある。また、高屈折率を示すチタニア、ジルコニアなど無機酸化物等の微粒子を汎用樹脂に分散させスピンドルコート法などの塗布法により成膜する手法がある。さらには、エピスルフィド系樹脂材料などを挙げることができる。

高屈折率層31の屈折率n_Hは、1.8以上2.2以下とするのが好ましい。なお、高屈折率層31の凸部311を構成する材料を、他の部分を構成する材料と異なるものとしてもよい。この場合、両者の屈折率を等しくするか、凸部311の方を低い屈折率で構成するのが好ましい。

低屈折率層32を構成する材料としては、ガラス材料、ポリマー材料等が挙げられる。ガラス材料としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー材料としては、ポリカーボネート系樹脂、アクリル系樹脂、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリエーテルサルファイド系樹脂、ポリサルファン系樹脂、シクロオレフィン系樹脂等を原料として用いてなるものを挙げができる。低屈折率層32の屈折率n_Lは、1.4以上1.6以下とするのが好ましい。なお、低屈折率層32の凸部321を構成する材料を、他の部分を構成する材料と異なるものとしてもよい。この場合、両者の屈折率を等しくするか、凸部321の方を凸部321以外の部分よりも高い屈折率で構成するのが好ましい。

[0046] (透明電極)

透明電極4は、光取出し層3の高屈折率層31に隣接して設けられる。本

実施形態では、透明電極4が陽極となり、対向電極6が陰極となる。なお、透明電極4を陰極とし、対向電極6を陽極としてもよい。

透明電極4には、公知の電極材料が用いられ、例えば、ITO（インジウム錫酸化物）や、IZO（登録商標）（酸化インジウム亜鉛）、ZnO（酸化亜鉛）等の透明電極材料が用いられる。透明電極4の屈折率 n_1 は、1.8以上2.2以下とするのが好ましい。

[0047] (有機発光層)

有機発光層5は、透明電極4及び対向電極6の間に設けられる。

有機発光層5は、一層で構成してもよいし、複数層で構成してもよい。また、透明電極4及び対向電極6と有機発光層5との間に正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、電荷障壁層などを介在させてもよい。

有機発光層5にはA1q₃等の公知の発光材料が用いられ、赤色、緑色、青色、黄色等の単色光を示す構成のものや、それらの組み合わせによる発光色、例えば、白色発光を示す構成のもの等が用いられる。また、発光層を形成するにあたっては、ホストに、ドーパントとして発光材料をドーピングするドーピング法が知られている。ドーピング法で形成した発光層では、ホストに注入された電荷から効率よく励起子を生成することができる。そして、生成された励起子の励起子エネルギーをドーパントに移動させ、ドーパントから高効率の発光を得ることができる。

本発明の有機EL素子の有機発光層5において、上述の例示した化合物以外に、従来の有機EL素子において使用される公知のものの中から任意の化合物を選択して用いることができる。

[0048] (対向電極)

対向電極6は、有機発光層5に隣接して設けられ、公知の電極材料が用いられる。

対向電極6は、好ましくは、光を反射させる材料で構成され、例えば、Al、Cu、Ag、Au等の金属や合金等で構成される。

対向電極6は、一層で構成してもよいし、複数層で構成してもよい。光を

反射させる材料で構成される層同士を積層させてもよいし、透明な導電性部材で構成される層と光を反射させる材料で構成される層とを積層させてもよい。

[0049] (屈折率の相対的関係)

有機EL素子1において、透光性基板2の屈折率 n_2 、高屈折率層31の屈折率 n_H 、低屈折率層32の屈折率 n_L 及び透明電極4の屈折率 n_1 が、上記数式(1)～(3)の関係を満たすことが好ましい。なお、屈折率 n_1 、 n_L 、 n_H 、及び n_2 は、波長550nmのときの値を示す。

[0050] (有機EL素子の製造方法)

・低屈折率層の作成

透光性基板2上に低屈折率層32を構成する低屈折率材料を均一に塗布する。ここでは、低屈折材料として熱可塑性樹脂材料を用いる。次に、第一実施形態に係る凹凸部ユニット31Aが複数配置されたパターンに対応した凹凸形状を有するモールドを加熱し、当該加熱されたモールドを低屈折材料に押し当てて軟化させ、当該凹凸形状を転写する(熱インプリント)。その後、モールド及び低屈折材料を室温程度まで冷却し、モールドを脱型すると低屈折率層32が透光性基板2上に形成される。

[0051] ・高屈折率層の作成

透光性基板2上の低屈折率層32に対して、高屈折率層31を構成する高屈折材料を均一に塗布する。ここでは、金属酸化物微粒子を樹脂バインダー中に均一に分散させたインク組成物をスピンドルコート法により塗布する。塗布回数を調整することによって、低屈折率層32の凹凸形状の凹部内に高屈折材料を充填するとともに、高屈折率層31の厚さ寸法(上記距離 d_1 に相当)を光学干渉距離以上にする。その後、インク組成物を乾燥固化させることで、高屈折率層31が形成される。こうして、光取出し層3が形成される。

低屈折率層32にモールド形成された凹凸形状に対して当該インク組成物が塗布されて、高屈折率層31が形成されるので、当該高屈折率層31は、

凹凸部ユニット31Aに対応した形状を有することになる。

[0052] ・有機発光層の形成

光取出し層3を形成した後、高屈折率層31上に、透明電極4、有機発光層5及び対向電極6を順次積層形成する。透明電極4や対向電極6の形成は、真空蒸着やスパッタリング等の公知の方法を採用することができる。また有機発光層5の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンドルコーティング、ディッピング、フローコーティング、インクジェット等の湿式成膜法等の公知の方法を採用することができる。

このようにして、複数の凹凸部ユニット31Aを有する光取出し層3を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子1を得ることができる。

[0053] 以上のような第一実施形態によれば、次のような作用効果を奏する。

透明電極4と高屈折率層31との界面から、高屈折率層31と低屈折率層32との界面までの距離 d_1 が、有機発光層5で生じた放射光の光学可干渉距離以上あるので、当該放射光が、対向電極6が反射電極である場合は該反射電極表層の表面プラズモンモードに結合する割合が減少し、薄膜モードへの結合効率が高まる。

そして、光取出し層3が透明電極4に隣接して設けられ、凹凸部ユニット31Aが高屈折率層31と低屈折率層32との界面に設けられているので、薄膜モードの光のうち、臨界角以上の角度で高屈折率層31に入射する光が当該界面で全反射せずに、低屈折率層32まで透過し、最終的に透光性基板2を経て、有機EL素子1の外部へと光が取り出される。

よって、有機発光層5で生じた放射光の取出し効率を高くすることができる。

[0054] また、高屈折率層31の凸部311の高さ d_2 、幅 d_3 、及び凸部同士の間隔 d_4 が、1μm以上であって、可視光領域における波長よりも十分に大きいので、サブミクロン程度の周期性及び突出高さを有する回折格子のように白色光が分光され難い。そのため有機EL素子1は、回折性の小さい良好な白

色発光を得ることができ、照明装置の光源に適している。

[0055] さらに、透光性基板2、高屈折率層31、低屈折率層32及び透明電極4のそれぞれの屈折率は、前記数式(1)～(3)の関係を満たすので、透明電極4と高屈折率層31との界面における薄膜モードの光の全反射が抑制され、高屈折率層31と低屈折率層32との界面まで効率的に導かれる。さらに、高屈折率層31と低屈折率層32との界面における光の全反射が抑制される。そのため、有機発光層5で生じた放射光の取出し効率をさらに高くすることができる。

[0056] そして、凸部311の高さd₂と、凸部311の幅d₃とは、 $2.0 > d_2 / d_3 > 0.2$ の関係を満たし、凸部側縁311Aは、光の取り出し方向に沿った形状（傾斜角度θが略0度である）を有し、凸部上縁311Bは、光の取り出し方向に直交する方向に沿った形状を有するので、高屈折率層と低屈折率層との界面にある凹凸部ユニット31Aまで透過した光をさらに効率的に低屈折率層まで透過させることができる。すなわち、凸部311が略矩形状に光取り出し方向に突出した形状なので、臨界角以上で光取り出し層3に入射してきた光を凸部側縁311Aで屈折させて低屈折率層32へと効率的に導くことができる。よって、光取り出し効率をさらに高くすることができる。

[0057] <第二実施形態>

次に、本発明の第二実施形態を図面に基づいて説明する。

[有機エレクトロルミネッセンス素子]

図7は、第二実施形態に係る有機EL素子40の厚み方向の断面図であり、その断面の一部を拡大して示している。

第二実施形態に係る有機EL素子40は、第一実施形態に係る有機EL素子1における有機発光層5と対向電極6との間に、電子輸送帯域41が設けられ、有機発光層5と透明電極4との間に、正孔輸送帯域42が設けられる以外は、有機EL素子1と同様の構成を有する。すなわち、有機EL素子40は、透光性基板2と、光取り出し層3と、透明電極4と、正孔輸送帯域42と、有機発光層5と、電子輸送帯域41と、対向電極6と、をこの順に積層

されて構成される。有機EL素子40は、有機発光層5で生じた放射光の光取出し方向が、透光性基板2側となる、いわゆるボトムエミッション型の素子である。

なお、第二実施形態の説明において第一実施形態と同一の構成要素は、同一符号や名称を付す等して説明を省略もしくは簡略にする。また、第二実施形態では、第一実施形態で説明したものと同様の材料や化合物を用いることができる。

[0058] (電子輸送帯域)

電子輸送帯域41は、有機発光層5への電子の注入を助け、発光領域まで電子を輸送する帯域であって、電子移動度が大きい。

電子輸送帯域41は、電子注入層、及び電子輸送層のいずれか一方によって構成されるものであって、いずれか単独で構成されてもよいし、電子注入層、及び電子輸送層の積層構造で構成されてもよい。言い換えると、電子輸送帯域とは陰極と発光層の間に存在する有機層体であって、陰極から発光層へ電子を輸送する機能を有する有機層体を示す。

[0059] 電子輸送帯域41の膜厚は、70nm以上であることが好ましい。

電子輸送帯域41の膜厚を70nm以上にすることで、第一実施形態で説明した光取出し層3との相乗効果によって、外部量子効率をさらに高めることができる。

外部量子効率が高まる理由は、素子構成A3を用いて次のように考えられる。

[0060] (素子構成A3)

素子構成A3は、上記素子構成A1において、対向電極をアルミニウム(A1)とし、対向電極と電子輸送帯域としての電子輸送層との間に電子注入層を備えた以外は素子構成A1と同様であり、発光層は、赤色に発光する層とする。

そして、素子構成A3において、発光層に含まれる発光分子を電気双極子モーメントとした場合の配向方向を、垂直方向(Vertical)、及び

水平方向（Parallel）に分けて考える。

この素子構成A3について電子輸送層の膜厚を変化させ、素子構成A1の場合と同じようにして、水平方向に配向した発光分子の双極子放射、及び垂直方向に配向した発光分子の双極子放射についてPhotonic mode densityの解析を行う。

[0061] 図8は、水平方向に配向した発光分子の双極子放射についてのPhotonic mode density解析結果を表す図であって、具体的には、電子輸送帯域の膜厚と発光分子の双極子放射の結合効率との関係を示す。図8によれば、電子輸送層の膜厚が増えるにしたがって双極子放射が表面プラズモンモードに結合する効率（SPPs結合効率）が低下することが分かる。このSPPs結合効率の低下に伴って、基板モード、薄膜モード、及び発光モードへ結合する効率が上昇することがわかる。

この解析結果より、電子輸送層の膜厚が70nmになると、SPPs結合効率が15%程度まで低下し、薄膜モードへの結合効率が15%程度まで向上するので、電子輸送帯域の膜厚としては、70nm以上が好ましい。

なお、通常の有機EL素子では、電子輸送帯域として設けられる電子輸送層の膜厚が30nm程度なので、SPPs結合効率が60%程度と高く、薄膜モードへの結合効率が5%程度と低い。

[0062] そして、素子構成A3において、透光性基板と透光性電極との間に第一実施形態で説明した光取出し層3を設ければ、結合効率が向上した薄膜モードの光を効率的に素子外部へと取り出すことができる。

[0063] そうすると、素子構成A3において、電子輸送層の膜厚を70nm以上とし、光取出し層3を設ければ、水平方向に配向した発光分子の双極子放射の薄膜モードへ結合する割合が増加するので、電子輸送層の膜厚が30nm程度の有機EL素子に光取出し層3を設けた場合に比べて、その結合割合が増加した分、素子外部へ取り出せる光が増える。

[0064] したがって、第二実施形態の有機EL素子40は、電子輸送帯域41の膜厚が70nm以上であり、第一実施形態の光取出し層3を備えているので、

外部量子効率をさらに高めることができる。

[0065] 図9は、垂直方向に配向した発光分子の双極子放射についてのPhotonic mode density解析結果を表す図であって、具体的には、電子輸送帯域の膜厚と発光分子の双極子放射の結合効率との関係を示す。図9によれば、電子輸送帯域の膜厚が増えても、図8のようにSPPs結合効率が低下しないことが分かる。実際には、電子輸送帯域の膜厚を250nm以上にすると、SPPs結合効率が低下する。なお、電子輸送帯域の膜厚は、300nmを超えると、製膜に時間を要したり、駆動電圧の上昇を招いたりするおそれがあるため、300nm以下にすることが好ましい。

[0066] (電子輸送帯域の材料)

電子注入層、及び電子輸送層に用いられる材料として、例えば、特開2009-199738号公報や特開2008-166629号公報に記載された、8-ヒドロキシキノリン、8-ヒドロキシキノリンの誘導体の金属錯体、オキサジアゾール誘導体、含窒素複素環誘導体、シラシクロペニタジエン誘導体、ボラン誘導体、ガリウム錯体が挙げられる。ただし、電子注入層、及び電子輸送層には、電子輸送帯域としての性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において電子の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の電子注入層や電子輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0067] また、電子輸送帯域41に還元性ドーパントが含まれていることが好ましい。還元性ドーパントが含まれていることで、有機EL素子40のように電子輸送帯域41の膜厚が大きくても、電子輸送帯域41は、有機発光層5への電子の注入を助け、発光領域まで電子を輸送できる。また、対向電極6と電子輸送帯域41との界面領域に還元性ドーパントが含まれていてもよい。

還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。したがって、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アル

カリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物または希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

[0068] また、より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、 Li （仕事関数：2. 9 eV）、 Na （仕事関数：2. 36 eV）、 K （仕事関数：2. 28 eV）、 Rb （仕事関数：2. 16 eV）、及び Cs （仕事関数：1. 95 eV）からなる群から選択される少なくとも1つのアルカリ金属や、 Ca （仕事関数：2. 9 eV）、 Sr （仕事関数：2. 0~2. 5 eV）、及び Ba （仕事関数：2. 52 eV）からなる群から選択される少なくとも1つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2. 9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、 K 、 Rb および Cs からなる群から選択される少なくとも1つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、 Rb または Cs であり、最も好ましいのは、 Cs である。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2. 9 eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、 Cs を含んだ組み合わせ、例えば、 Cs と Na 、 Cs と K 、 Cs と Rb あるいは Cs と Na と K との組み合わせであることが好ましい。 Cs を組み合わせて含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0069] 対向電極6と電子輸送帯域4 1との間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けても良い。この時、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物およびアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも1つの金属化合物を使用するのが好ましい。この電子注入層がこれ

らのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができるので好ましい。具体的には、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 Li_2O 、 K_2O 、 Na_2S 、 Na_2Se および Na_2O が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 、及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 、及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 、及び BeF_2 といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、この電子注入層を構成する半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Nb 、及び Zn の少なくとも1つの元素を含む酸化物、窒化物または酸化窒化物等の1種単独、又は2種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶、又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物、及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

[0070] (正孔輸送帯域)

正孔輸送帯域42は、有機発光層5への正孔の注入を助ける領域であり、正孔移動度が大きい。この正孔輸送帯域42は、正孔注入層、及び正孔輸送層のいずれか1層により形成される構成でもよく、正孔注入性および正孔輸送性を有する単層でもよい。また、正孔輸送帯域42は、有機発光層5に隣接する障壁層を含んでいても良い。

[0071] (正孔輸送帯域の材料)

正孔輸送帯域42を構成する材料は、例えば、特開2009-199738

号公報に記載された正孔注入層、及び正孔輸送層に用いられる材料の他、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入や正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0072] <第三実施形態>

次に、本発明の第三実施形態を図面に基づいて説明する。

〔有機EL素子〕

図10は、第三実施形態に係る有機EL素子50の厚み方向の断面図であり、その断面の一部を拡大して示している。

第三実施形態に係る有機EL素子50は、第二実施形態に係る有機EL素子40において、電子輸送帯域41と透明電極4との間に、中間ユニット5Aを有し、この中間ユニット5Aを挟んで複数の有機発光層51、55、56を有する以外は、有機EL素子40と同様の構成を有する。すなわち、有機EL素子50は、透光性基板2と、光取出し層3と、透明電極4と、正孔輸送帯域42と、第一有機発光層51と、中間ユニット5Aと、第二有機発光層55と、第三有機発光層56と、電子輸送帯域41と、対向電極6と、をこの順に積層されて構成される。この有機EL素子50のように、中間ユニットを介して複数の有機発光層51、55、56を積層し、直列に接続した素子構成は、タンデム型とも呼ばれる。有機EL素子50は、有機発光層51、55、56で生じた放射光の光取出し方向が、透光性基板2側となる、いわゆるボトムエミッション型の素子である。

なお、第三実施形態の説明において第一実施形態、及び第二実施形態と同一の構成要素は、同一符号や名称を付す等して説明を省略もしくは簡略にする。また、第三実施形態では、第一実施形態、及び第二実施形態で説明したものと同様の材料や化合物を用いることができる。

[0073] (有機発光層)

有機発光層51、55、56には、第一実施形態で説明した有機発光層の材料を用いることができる。

ここで、第一有機発光層51と、第二有機発光層55と、第三有機発光層56とが互いに同じ材料で構成されていても、異なる材料で構成されていてもよい。そして、第一有機発光層51と、第二有機発光層55と、第三有機発光層56の発光色が、互いに同じでなくてもよく、例えば、それぞれ青、緑、赤色で発光するように構成されていてもよい。

[0074] (中間ユニット)

中間ユニット5Aは、有機発光層51、55、56へ、正孔、もしくは電子の注入をする。

有機EL素子50における中間ユニット5Aは、図10に示したように、第一有機発光層51側から、中間ユニット内の電子注入層52、中間層53、中間ユニット内の正孔注入層54を順に備える。

中間ユニット5Aの各層52、53、54を構成する材料は、タンデム型有機EL素子の中間ユニットを構成する材料として使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。例えば、特開平11-329748号公報、特開2006-66380号公報、特開2006-173550号公報、特開2010-92741号公報、特開2004-281371号公報に記載された構成、及び材料が挙げられる。

[0075] 第三実施形態の有機EL素子50も、電子輸送帯域41の膜厚が70nm以上であり、第一実施形態の光取出し層3を備えている。さらに、第三実施形態の有機EL素子50は、中間ユニット5Aを介して複数の有機発光層51、55、56を積層し、直列に接続した素子構成である。そのため、単一の有機発光層を有する第一実施形態の有機EL素子1や第2実施形態の有機EL素子40と比べて、外部量子効率を高くすることができる。

[0076] [実施形態の変形]

なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲で以下に示される変形をも含むものである。

第一実施形態では、凹凸部ユニット31Aの凸部311は、透明電極4側から透光性基板2側へ向かって円柱状に突出し、図4に示すように、略矩形

の断面形状を有しているが、その他の形状であってもよい。

図11A、図11B、及び図11Cは、図5と同様に、高屈折率層31の一部を透光性基板2側から平面視した図である。図11Aや図11Bに示すように、平面視して四角形状となるように突出する四角柱状の凸部311であってもよい。そして、図11Aに示すように、格子状に配置されたり、図11Bに示すように、稠密構造となるように配置されたりしてもよいし、凸部311が千鳥格子状に配置（図示せず）されていてもよい。また、図11Cに示すように、平面視して三角形状となるように突出する三角柱状の凸部311であってもよい。

そして、凸部311同士の間隔、幅、及び高さが全ての凹凸部ユニット31Aにおいて同じでなくてもよい。さらに、凸部311が規則的に配置されなくとも、ランダムに配置されていてもよい。

さらに、凹凸部ユニット31Aを規定する上記高さ d_2 、上記幅 d_3 、及び上記間隔 d_4 の寸法関係は、必ずしも全ての凹凸部ユニット31Aが満たしている必要は無く、少なくとも一つの凹凸部ユニット31Aが満たしていれば良い。

また、第一実施形態で説明した有機EL素子1において、図5BのI-V—I-V線で切り出した断面でなく、図5BのV—V線で切り出した断面で、上記した光学可干渉距離によって規定される光取出し層3及び凹凸部ユニット31Aの寸法関係を満たしていれば良い。

[0077] ここで、当該凸部の断面形状が上記実施形態とは異なる場合の一例を変形例として示す。図12は、本発明の変形例に係る有機EL素子20の基板厚み方向の一部縦断面図である。なお、有機EL素子20の説明において上記実施形態と同一の構成要素は同一符号を付して説明を省略もしくは簡略にする。

高屈折率層31は、図12に示すように透明電極4側から透光性基板2側へ向かうにしたがって幅が狭くなる凸部331と、これとは反対に幅が広くなる凹部332とで構成される複数の凹凸部ユニット33Aを有する。低屈

折率層32は、高屈折率層31と積層されているため、凹凸部ユニット33Aの凸部331に対応する凹部342、及び凹部332に対応する凸部341を有する。

凹凸部ユニット33Aにおける凸部側縁331Aの傾斜角度 θ は、有機EL素子20の光取出し方向（有機発光層5から透光性基板2へ向かう方向であって、透光性基板2の面に対して鉛直方向）と直交する方向に対して約30度である。また、本実施形態では、凸部上縁331Bは、光取出し方向と直交する方向に沿った形状となっている。

[0078] 有機EL素子20においても、光取出し層3及び凹凸部ユニット33Aの寸法が、光学可干渉距離によって規定される。まず、高屈折率層31と透明電極4との界面から、高屈折率層31と低屈折率層32との界面までの距離 d_1 は、光学可干渉距離以上である。

凸部331の高さ d_2 、幅 d_3 、及び一つの凹凸部ユニット33Aを構成する凸部331と他の凹凸部ユニット33Aを構成する凸部331との間隔 d_4 の寸法は、1μm以上である。好ましくは、5μm以上、さらに好ましくは、20μm以上である。なお、薄膜モードからの光取出しを効率的に行う意味では、凸部331の高さ d_2 、及び幅 d_3 、及び凸部331同士の間隔 d_4 は1mm以下であることが好ましい。

ここで、図12のように凸部側縁331Aが傾斜している場合には、凸部側縁331Aのいずれかの位置で幅 d_3 の寸法及び間隔 d_4 の寸法を第一実施形態と同様にして規定した際に、上記規定した $d_2 \sim d_4$ の値となつていればよい。

また、本変形例でも、凸部331の高さ d_2 及び幅 d_3 とは、 $2.0 > d_2 / d_3 > 0.2$ の関係を満たすのが好ましく、より好ましくは、 $1.0 > d_2 / d_3 > 0.5$ の関係を満たすことが好ましい。

[0079] このような、有機EL素子20においても、有機発光層で生じた放射光の取出し効率を高くすることができます。また、凹凸部ユニット33Aの当該形状によっても、光の取出し効率を高くすることができます。そして、有機EL

素子 20 も、照明装置の光源に適している。

[0080] さらに、高屈折率層の凸部の断面形状が上記実施形態とは異なる場合の他の例を示す。

図 13 は、本発明の変形例に係る有機 EL 素子 30 の基板厚み方向の一部縦断面図である。なお、有機 EL 素子 30 の説明において上記実施形態と同一の構成要素は同一符号を付して説明を省略もしくは簡略にする。

有機 EL 素子 30 のように、凸部 351 及び凹部 352 で構成される凹凸部ユニット 35A における凸部上縁 351B の両端が湾曲していてもよい。

このような形状となっていても、凹凸部ユニット 35A における寸法関係 $d_2 \sim d_4$ が上記実施形態で説明した可視光領域における波長程度以上となっていれば、光の取出し効率を高くすることができる。そして、有機 EL 素子 30 も、照明装置の光源に適している。

[0081] その他、光取出し層 3 の高屈折率層 31 や低屈折率層 32 は、一層で構成されていなくともよく、上記数式 (1) ~ (3) の関係を満たすように複数層が積層されて構成されていてもよい。

[0082] 加えて、上記実施形態では、有機 EL 素子をボトムエミッション型素子として説明したが、必ずしもこれに限定されるものではない。例えば、トップエミッション型素子の場合にも適用し得る。

[0083] 光取出し層 3 の形成方法は、上記実施形態で説明したものに限られない。

例えば、高屈折率層 31 を構成する材料からなり、厚みが上記距離 d_1 と上記高さ d_2 の合計寸法以上のフィルムに対して、複数の凹凸部ユニット 31A の形状に対応するパターンを転写して凹凸を形成する。その後、当該凹凸が形成された高屈折率層 31 の面に対して、低屈折率層 32 を構成する材料からなる溶液を塗布して低屈折率層 32 を形成することで、光取出し層 3 が形成される。なお、これとは逆に、低屈折率層 32 を構成する材料からなるフィルムに凹凸を形成しておいて、高屈折率層 31 を構成する材料からなる溶液を塗布して高屈折率層 31 を形成する方法でもよい。

他の形成方法としては、例えば、高屈折率層 31 を構成する材料からなり

、厚みが上記距離 d_1 の寸法以上の基材フィルム上に、チタニアやジルコニアの微粒子が分散した樹脂バインダーを塗布して複数の凹凸部ユニット 31 A の形状に対応する凹凸を形成する。そして、当該凹凸が形成された面に対して、低屈折率層 32 を構成する材料からなる溶液を塗布して低屈折率層 32 を形成することで、光取出し層 3 が形成される。なお、ここでも高屈折率層 31 と低屈折率層 32 とを逆にして形成する方法でもよい。そして、当該分散される微粒子の屈折率 n_p は、 $n_H \leq n_p$ の関係を満たす。

このように形成した光取出し層 3 と透光性基板 2 とは、例えば、低屈折率層 32 を構成する材料と屈折率が略同等の接着剤等で両者を貼り合わせることで積層される。

[0084] また、本発明の有機EL素子において、透光性基板の上部方向外側に、第二の光取り出し層を隣接して設けてもよい。第二の光取り出し層の構造としては、微粒子による拡散シート、マイクロレンズ、マイクロプリズム、凹凸構造等の全反射を抑制する構造を適宜利用することができる。透光性基板と有機EL素子外部との界面に第二光取り出し層を介在させてるので、当該界面での全反射を防止して、光の取出し効率をさらに高くすることができる。

[0085] その他、タンデム型の有機EL素子において、第三実施形態で説明した有機EL素子 50 のように、3つの有機発光層を備えずに、例えば、中間ユニット 5 A を介して、第一有機発光層 51 と、第二有機発光層 55 とを備えた構成としてもよい。

さらに、複数の中間ユニットを備えた素子構成としてもよい。

また、各有機発光層の発光色を同じ色としてもよいし、異なる色としてもよい。このとき、赤（R）、緑（G）、及び青（B）で発光する発光層を設けて、各色を混色して白色発光素子としてもよい。

実施例

[0086] 次に、実施例を挙げて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例の記載内容に何ら制限されるものではない。

本実施例では、有機EL素子を作成し、駆動試験を行い、光取出し効率を

測定した。

<1>有機EL素子の作製

[実施例1]

(1)低屈折率層の形成

ポリメチルメタクリレート(PMMA, polymethyl methacrylate: 和光純薬製(平均分子量: 10万))を固体分濃度15質量%となるようにキシレンに溶解させ、低屈折率層形成用の塗布液を調製した(粘度: 30cP)。次に、この塗布液を、25mm×25mm×0.7mm厚(日本板硝子製、NA35)、屈折率: 1.50(波長=550nm)のガラス基板上にスピンドローティング法により塗布した。塗布条件は、1500rpmで60秒間、回転を保持した。

その後、150°Cのホットプレート上で30分間保持し、塗布液の乾燥を行なってPMMA膜を形成した。PMMA膜の膜厚を測定したところ、2.2μmであった。同じ操作(塗布及び乾燥)を多数回繰り返し、膜厚20μmとした。

屈折率の測定は、ジェーエー・ウーラム社製エリプソメーターを用いて測定した。屈折率測定値は1.50(波長=550nm)であった。以下の屈折率の測定も同様にして行った。

次に、熱インプリント法によって、光取出しパターンを上記PMMA膜に転写した。20mm×20mm×0.7mm厚のシリコン基板にフォトリソグラフィー法により形成した光取出しパターンを有する金型(モールド)を用いた。

上記PMMA膜を成膜したガラス基板と上記金型とを予め重ね合わせ、熱インプリント装置のステージに置いた。上記PMMA膜に対して圧力2MPaで対向板を押し当て、上記PMMA膜の温度が140°Cとなるように、加熱温度を設定した。上記PMMA膜を軟化させるために1分間、この状態を保持し、その後、ステージおよび対向板の加熱を停止し、冷却水を流し冷却した。上記金型と上記PMMA膜との温度が室温に戻ったところで圧力を開

放し、上記PMMA成膜基板と上記金型を取り出した。両者を離してガラス基板上に光取り出しパターンが転写された低屈折率層であるPMMA膜を得た。上記PMMA膜を走査型電子顕微鏡で観察したところ、深さ $20\text{ }\mu\text{m}$ 、直径 $20\text{ }\mu\text{m}$ の円柱が $20\text{ }\mu\text{m}$ 間隔で形成されていた。

[0087] (2) 高屈折率層の形成

高屈折率材料として、酸化チタン微粒子と樹脂の混合材料を用いた。酸化チタン微粒子スラリーとして、ティカ社製の高透明性微粒子酸化チタンスラリー（酸化チタン微粒子径： $15\sim25\text{ nm}$ 、溶剤：プロピレンジリコールモノメチルエーテル）を、また、樹脂として、DIC社製ベッコーライト（M-6401-50）、スーパーべッカミン（J-820-60）を用いた。3者の固形分質量比として $7.00:0.85:0.15$ 、総固形分濃度 33 質量\% となるように高屈折率層形成用のインクを調整した。このインクの粘度は、 42 cP であった。

高屈折材料膜の屈折率を測定するために上記インクを別のガラス基板上にスピンドルコート法により塗布した。その後、上記インクの乾燥を 100°C で行なって高屈折材料膜を形成した。高屈折材料膜の膜厚を測定したところ、 $3.3\text{ }\mu\text{m}$ であった。また、高屈折材料膜の屈折率を測定したところ、 1.83 （波長= 550 nm ）であった。

上記熱インプリントにて作製した基板上の光取出しパターンを有するPMMA膜（高屈折率層）の上に、上記インクをスピンドルコート法により塗布した。塗布条件は、 1500 rpm で 60 秒間 、回転を保持した。その後、 100°C のホットプレート上で 60 分間 保持し、上記インクの乾燥を行なって高屈折材料膜を形成した。同じ操作（塗布及び乾燥）を 12 回繰り返した。

ガラス基板を基板厚み方向に沿って切断し、その断面を走査型電子顕微鏡により観察したところ、ガラス基板側より、上記PMMA膜（低屈折率層）と上記高屈折率材料膜（高屈折率層）とが積層して光取出し層及び凹凸部ユニットが形成されていた。そして、上記第一実施形態で説明した光取出し層

及び凹凸部ユニットの各寸法は、距離 $d_1 = 20 \mu\text{m}$ 、高さ $d_2 = 20 \mu\text{m}$ 、幅 $d_3 = 20 \mu\text{m}$ 、及び間隔 $d_4 = 20 \mu\text{m}$ となっていた。

[0088] (3) 有機EL層の形成

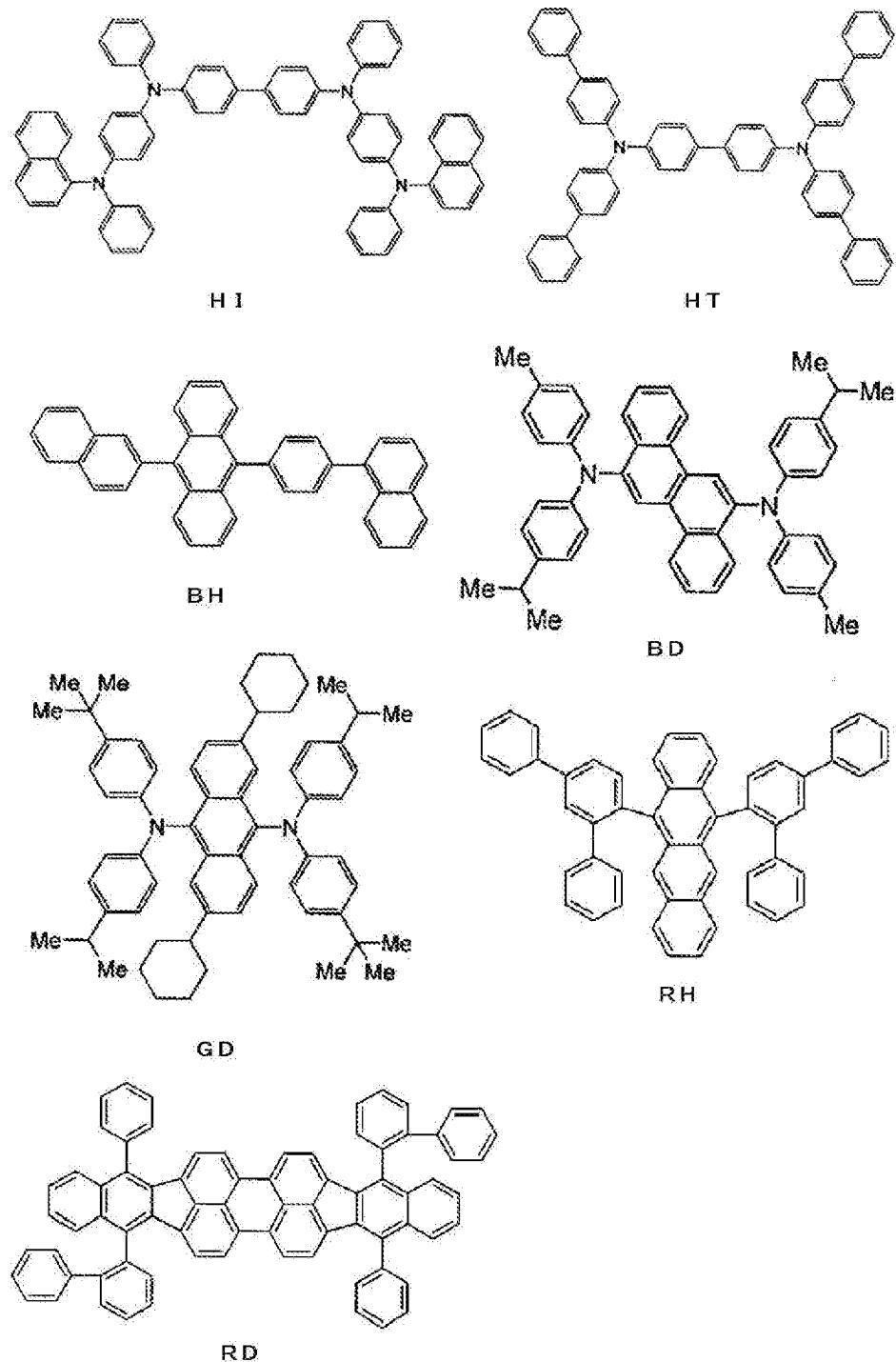
ガラス基板上の高屈折率層に対して、有機EL層を真空蒸着法で積層形成した。有機EL層の構成は次の通りとした。第1発光層は、赤色発光層とし、第2発光層は、青色発光層とし、第3発光層は、緑色発光層とした。

透明電極	: ITO (厚さ : 130 nm, 屈折率 : 1.85 (波長=550 nm))
正孔注入層	: 化合物HI (厚さ : 60 nm)
正孔輸送層	: 化合物HT (厚さ : 15 nm)
有機発光層 (第1発光層)	: 化合物RH及び化合物RD (厚さ : 5 nm、RD濃度 : 0.5質量%)
電荷障壁層	: 化合物HT及び化合物GD (厚さ : 5 nm、GD濃度 : 5質量%)
有機発光層 (第2発光層)	: 化合物BH及び化合物BD (厚さ 15 nm、BD濃度 : 7.5質量%)
有機発光層 (第3発光層)	: 化合物BH及び化合物GD (厚さ 25 nm、GD濃度 : 10質量%)
電子輸送層	: トリス(8-キノリノール)アルミニウム膜 (A1q ₃) (厚さ : 20 nm)
電子注入層	: LiF (厚さ : 1.6 nm)
対向電極	: Al (厚さ : 150 nm)

[0089] 上記有機EL素子に用いた化合物を次に示す。

[0090]

[化1]



[0091] [実施例 2]

光取出しパターンを、直径 50 μm、高さ 50 μm の円柱を六方最密充填構造状(図 5 A 参照)に配置し、最も隣接する円柱と円柱との間隔を 50 μm とした以外は、実施例 1 と同様にして有機 E-L 素子を作製した。上記第一実

施形態で説明した光取出し層及び凹凸部ユニットの各寸法は、距離 $d_1 = 20 \mu m$ 、高さ $d_2 = 50 \mu m$ 、幅 $d_3 = 50 \mu m$ 、及び間隔 $d_4 = 50 \mu m$ となっていた。

[0092] [比較例 1]

実施例 1において、光取出し層（低屈折率層及び高屈折率層）を形成しなかった以外は、実施例 1と同様にして有機EL素子を作製した。

[0093] [比較例 2]

金型の光取出しパターンを変更し、直径 $20 \mu m$ 、高さ $20 \mu m$ の円柱を六方最密充填構造状に配置し、最も隣接する円柱と円柱との間隔を、 $20 \mu m$ とし、高屈折材料膜の形成操作（塗布及び乾燥）回数を減らして、距離 d_1 が光学可干渉距離未満 ($0.5 \mu m$) となるようにした以外は、実施例 1と同様にして有機EL素子を作製した。光取出し層及び凹凸部ユニットの各寸法は、距離 $d_1 = 0.5 \mu m$ 、高さ $d_2 = 20 \mu m$ 、幅 $d_3 = 20 \mu m$ 、及び間隔 $d_4 = 20 \mu m$ となっていた。

[0094] <2> 駆動試験

有機EL素子の駆動試験条件としては、電流密度が $10 mA/cm^2$ となるように有機EL素子に電圧を印加し、そのときのEL発光スペクトルを分光放射輝度計（CS-1000：コニカミノルタ社製）にて計測した。

図14A、及び図14Bは、有機EL素子の構造の評価方法を説明する概略図である。

全光束で放射強度を測定するために、図14Aに示すように、有機EL素子1の透光性基板2（ガラス基板）に、シリンドリカルレンズ8を取り付けて、発光スペクトルの角度依存性を計測した。なお、シリンドリカルレンズ8の屈折率は、ガラス基板2と同等の屈折率（1.5）とした。また、シリンドリカルレンズ8と、ガラス基板2との間にはエアギャップを埋めるために、屈折率が1.5程度のオイルを充填した。放射角θを0度から70度まで5度おきに変化させて、分光放射輝度計9にてEL発光スペクトルを計測した。

有機EL素子1としては、実施例1、2、及び比較例1、2で作製したものを用いた。

得られた角度依存性の分光放射輝度スペクトルから、全光束の発光エネルギーを求めて光取り出し効率を計算した。比較例1の外部量子効率によって規格化したものを表2に示す。なお、図14Bでは、有機EL素子1の構造として、光取出し層を設けていない場合（比較例1に相当）を示しているが、光取出し層を設ける場合は、透光性基板2及び透明電極4の間に設けられるものとする。

[0095] [表2]

外部量子効率 (規格化後)	
比較例1 (リファレンス)	1.00
実施例1	1.62
実施例2	1.52
比較例2	1.40

[0096] <3>光取出し層の評価

次に、光取出し層の構造を評価した。

図15A、及び図15Bは、光取出し層の構造の評価方法を説明する概略図である。高屈折率層31及び低屈折率層32が積層された光取出し層3（図15B参照）の低屈折率層32側に、シリンドリカルレンズ9（上記<2>と同じもの）を取り付けた。そして、図15Aに示す矢印の方向に白色光を入射させ、その散乱回折スペクトルを分光放射輝度計9（CS-1000）にて測定した。また、シリンドリカルレンズ8と、低屈折率層32との間にはエアギャップを埋めるために、屈折率が1.5程度のオイルを充填した。放射角θを0度から70度まで5度おきに変化させて、分光放射輝度計9にてEL発光スペクトルを計測した。

光取出し層3としては、実施例1、実施例2、比較例2で作製したものを使いた。

得られた分光放射輝度スペクトルの角度依存性の測定結果から、光取出し

層の回折性を評価した。

[0097] 表2に示すように、実施例1、及び実施例2の有機EL素子は、すぐれた外部量子効率を示した。これは、実施例1、及び実施例2の有機EL素子は、上記式(1)～(3)に規定する屈折率の関係を満たすと共に、距離 d_1 が有機発光層で発光したピーク波長610nm、半値幅23nmの光に対する光学可干渉距離以上の寸法となっているので、発光した光の薄膜モードへの結合効率が高まるとともに、界面での光の全反射が防止されたためである。ここで、光学可干渉距離は、高屈折率層中においては、8.8μmである。さらに、高さ d_2 、幅 d_3 、及び間隔 d_4 が有機発光層で発光した光の波長よりも十分に大きいので、発光スペクトルの角度依存性が小さく、すなわち回折性が低く、白色光が放射角に依存して顕著に分光されることなく、取り出されたためである。

一方、表2に示すように、比較例1では、光取出し層を有していないので、外部量子効率は低いものとなった。また、比較例2では、光取出し層を有し、高さ d_2 、幅 d_3 、及び間隔 d_4 が有機発光層で発光した光の波長よりも十分に大きいので、白色光が放射角に依存して顕著に分光されることなく、取り出されるものの、距離 d_1 が有機発光層で発光した光に対して光学可干渉距離(8.8μm)未満の寸法となっているので、外部量子効率としては実施例1、及び実施例2に比べると、劣る結果となった。

[0098] <電子輸送層の厚膜化による表面プラズモン抑制効果>

高屈折率ガラス基板上に電子輸送帯域の厚さが異なる3種類の青色蛍光有機EL素子を作成し、表面プラズモンの抑制効果の検証を行った。

この有機EL素子は、上述の実施例1と同様にガラス基板上の高屈折率層に対して、有機EL層を真空蒸着法で積層形成した。有機EL層の構成は、次の通りとした。

透明電極	: ITO (厚さ: 130nm)、
正孔注入層	: 化合物HI-2 (厚さ: 50nm)
正孔輸送層	: 化合物HT-2 (厚さ: 45nm)

有機発光層 : 化合物 BH 及び化合物 BD
 (厚さ : 20 nm、 BD 濃度 : 5 質量%)

電子輸送層 1 : 化合物 ET-1 (厚さ : 5 nm)

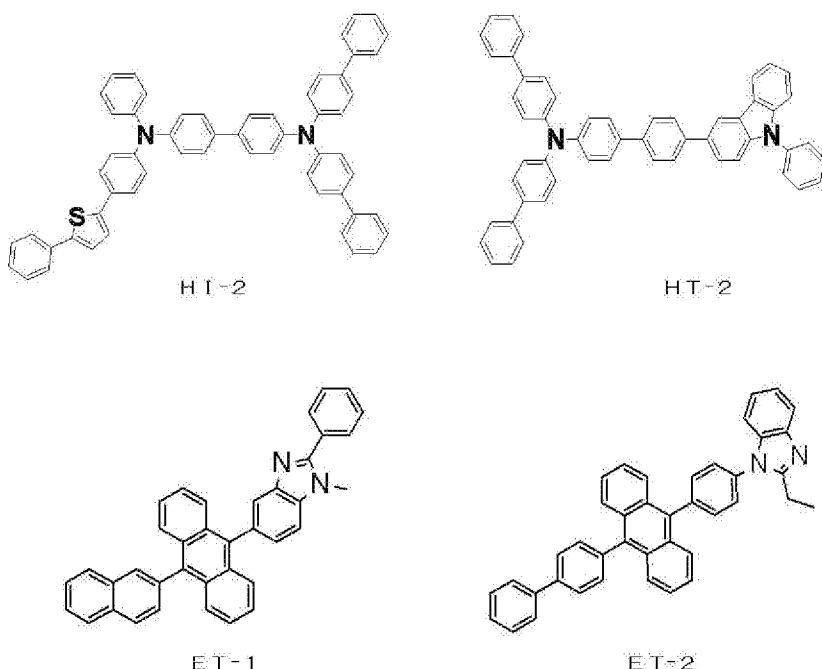
電子輸送層 2 : 化合物 ET-2 及び Li
 (厚さ : (X - 5) nm、 Li 濃度 : 5 質量%)

電子注入層 : LiF (厚さ : 0.5 nm)

対向電極 : Al (厚さ : 100 nm)

[0099] この有機 EL 素子に用いた化合物を次に示す。

[0100] [化2]



[0101] 陰極と発光層との距離 X を X = 30 nm、 X = 160 nm および X = 165 nm とした。この距離 X は、電子輸送帯域の厚さに相当し、そのため、電子輸送層 1 の厚さ 5 nm と電子輸送層 2 の厚さ (X - 5) nm との合計が、 X nm となる。

理論計算上、表面プラズモンモードの抑制効果は X = 70 nm 程度の膜厚で表れるが、青色発光波長における光学干渉距離の最適化を行うため上記の膜厚とした。なお、 X = 30 nm、 X = 160 nm および X = 165 nm は、光学干渉における 1 次モードと 2 次モードの極大値に対応する膜厚である

。

[0102] 上述の駆動試験と同じ条件で、 $X = 30\text{ nm}$ 、 $X = 160\text{ nm}$ および $X = 165\text{ nm}$ の有機EL素子構成の発光スペクトルの角度依存性を計測し外部量子効率を算出した。なお、表3には、 $X = 30\text{ nm}$ の場合の有機EL素子の外部量子効率によって規格化した値を示す。

電子輸送帯域の厚みを増加させることでSPPsモードの抑制が起き、結果として外部量子効率が向上した。

[0103] [表3]

$X(\text{nm})$	外部量子効率 ($X=30\text{nm}$ で規格化後)
30	1.00
160	1.15
165	1.17

[0104] [実施例3]

ガラス基板上に、直径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 、高さ $1\text{ }\mu\text{m}$ の円柱が六方最密充填構造状に配置され、最も隣接する円柱と円柱との間隔が $10\text{ }\mu\text{m}$ となる光取り出し構造を作成し、この光取り出し構造の上に以下の構成で第1発光層と第2発光層とを備えた有機EL層を作成し、実施例3に係る有機EL素子とした。なお、第1発光層は、青色発光層とし、第2発光層は、緑色発光層とした。化合物は、既に示したものと同じものを用いた。

表面プラズモンによる消光を抑制するために第二発光層と陰極との距離が計 90 nm 保たれている。各有機層の膜厚は、タンデム素子を設計する上でキャリアバランスと光路長の調整を考慮し決定した。

透明電極 : IZO (厚さ : 130 nm)

正孔注入層1 : 化合物HI-2 (厚さ : 70 nm)

正孔輸送層1 : 化合物HT-2 (厚さ : 50 nm)

有機発光層1 (第1発光層)

: 化合物BH及び化合物BD

(厚さ : 20 nm 、 BD濃度 : 5質量%)

電子輸送層 1 : 化合物 E T-1 (厚さ : 5 nm)

電子輸送層 2 : 化合物 E T-2 及び L i (厚さ : 5 nm、 L i 濃度 : 5 質量%)

電荷発生層 : 化合物 H I-3 (厚さ : 5 nm)

正孔注入層 2 : 化合物 H I-2 (厚さ : 10 nm)

正孔輸送層 2 : 化合物 H T-2 (厚さ : 30 nm)

有機発光層 2 (第 2 発光層)
: 化合物 B H 及び化合物 G D
(厚さ : 20 nm、 G D 濃度 : 5 質量%)

電子輸送層 3 : 化合物 E T-1 (厚さ : 45 nm)

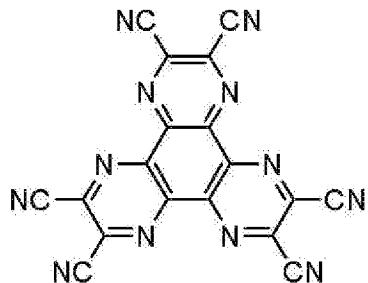
電子輸送層 4 : 化合物 E T-2 及び L i (厚さ : 45 nm、 L i 濃度 : 5 質量%)

電子注入層 : L i F (厚さ : 0.5 nm)

陰極 : A I (厚さ : 80 nm)

[0105] 実施例 3 に係る有機 E L 素子の電荷発生層に用いた化合物を次に示す。

[0106] [化3]



HI-3

[0107] [比較例 3]

光取り出し構造を備えていない以外は、実施例 3 に記載したものと同じ有機 E L 素子を作成した。

[0108] <外部量子効率>

上述の駆動試験と同じ条件で、実施例 3、及び比較例 3 の有機 E L 素子の発光スペクトルの角度依存性を計測し外部量子効率を算出した。比較例 3 の

外部量子効率によって規格化したものを表4に示す。

[0109] [表4]

外部量子効率(規格化後)	
実施例3	1.75
比較例3 (リフレンス)	1.00

[0110] <配光分布>

実施例3および比較例3の分光放射輝度スペクトルの角度依存性測定より配光分布を求めた結果、光取り出し構造を備えた有機EL素子は、その放射の形状がランバーシアン放射と比べて大幅に広がるため、外部量子効率の大幅な向上が得られた。

実施例3および比較例3の有機EL素子の放射形状を測定し、正面の外部量子効率で規格化した図を示す。図16Aは、実施例3の有機EL素子の規格化後の放射形状であり、図16Bは、比較例3の有機EL素子の規格化後の放射形状である。

産業上の利用可能性

[0111] 本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、照明装置の他に、ディスプレイ等の発光素子としても用いられる。

符号の説明

[0112] 1, 20, 30, 40, 50 有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）

2 透光性基板

3 光取出し層

3.1 高屈折率層

3.1A, 3.3A, 3.5A 凹凸部ユニット

3.2 低屈折率層

3.11, 3.31, 3.51 凸部

3.11A 凸部側縁

3 1 1 B 凸部上縁

3 1 2, 3 3 2, 3 5 2 凹部

4 透明電極

5 有機発光層

6 対向電極

4 1 電子輸送帯域

請求の範囲

[請求項1] 透明電極と、対向電極と、これら透明電極及び対向電極の間に設けられる有機発光層と、透光性基板とを備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記透明電極には、前記有機発光層と対向する面とは反対の面に光取出し層が隣接して設けられ、

この光取出し層は、前記透明電極側から順に積層される高屈折率層及び低屈折率層を備え、

前記透光性基板は、前記低屈折率層に隣接して設けられ、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子の厚み方向断面を前記対向電極に対して前記光取出し層を上にして見たときに、

前記高屈折率層は、当該高屈折率層と前記低屈折率層との界面に、凸部及び凹部で構成される複数の凹凸部ユニットを有し、

前記複数の凹凸部ユニットのうち少なくとも一つの凹凸部ユニットにおける前記高屈折率層と前記低屈折率層との界面から前記透明電極と前記高屈折率層との界面までの距離 d_1 が光学可干渉距離以上で、かつ、前記凸部の高さ d_2 、前記凸部の幅 d_3 、及び前記凸部と前記凹部を介して隣接する他の凸部との間隔 d_4 が $1 \mu m$ 以上である

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] 請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記透明電極の屈折率 n_1 、前記低屈折率層の屈折率 n_L 、前記高屈折率層の屈折率 n_H 、及び前記透光性基板の屈折率 n_2 が次の関係式(1)、(2)、(3)を満たす

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。なお、前記屈折率 n_1 、 n_L 、 n_H 、及び n_2 は、波長 $550 nm$ のときの値を示す。

[数1]

$$|n_1 - n_H| < 0.2 \quad (1)$$

$$|n_2 - n_L| < 0.2 \quad (2)$$

$$n_H > n_L \quad (3)$$

[請求項3] 請求項1または請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記凸部の高さ d_2 と、前記凸部の幅 d_3 とは、 $2.0 > d_2/d_3 > 0.2$ の関係を満たす

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4] 請求項1から請求項3まで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において、

前記凸部の高さ方向に沿った側縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に対して35度以下で傾斜している

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5] 請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記高屈折率層の凸部の側縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に沿った形状を有する

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6] 請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記高屈折率層の凸部の上縁は、前記有機発光層から発生した光の取り出し方向に直交する方向に沿った形状を有する

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7] 請求項1から請求項6まで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において、

前記光学可干渉距離が $3 \mu m$ 以上である

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8] 請求項1から請求項7まで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において、

前記凸部の高さ d_2 、前記凸部の幅 d_3 、及び前記凸部と前記凹部を介して隣接する他の凸部との間隔 d_4 が $5 \mu m$ 以上である

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

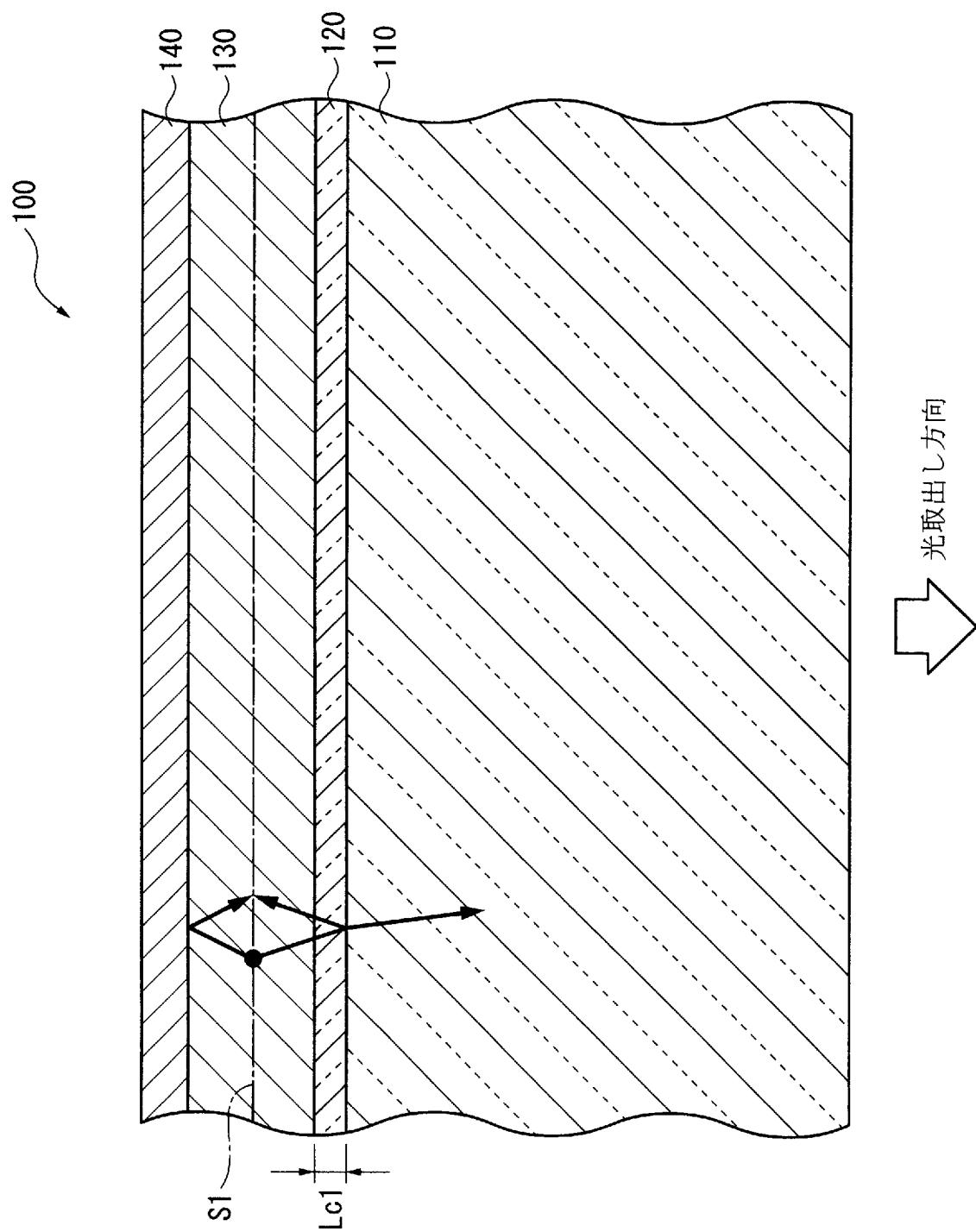
[請求項9] 請求項1から請求項8までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記対向電極と前記有機発光層との間には、膜厚が70nm以上の電子輸送帯域が設けられている

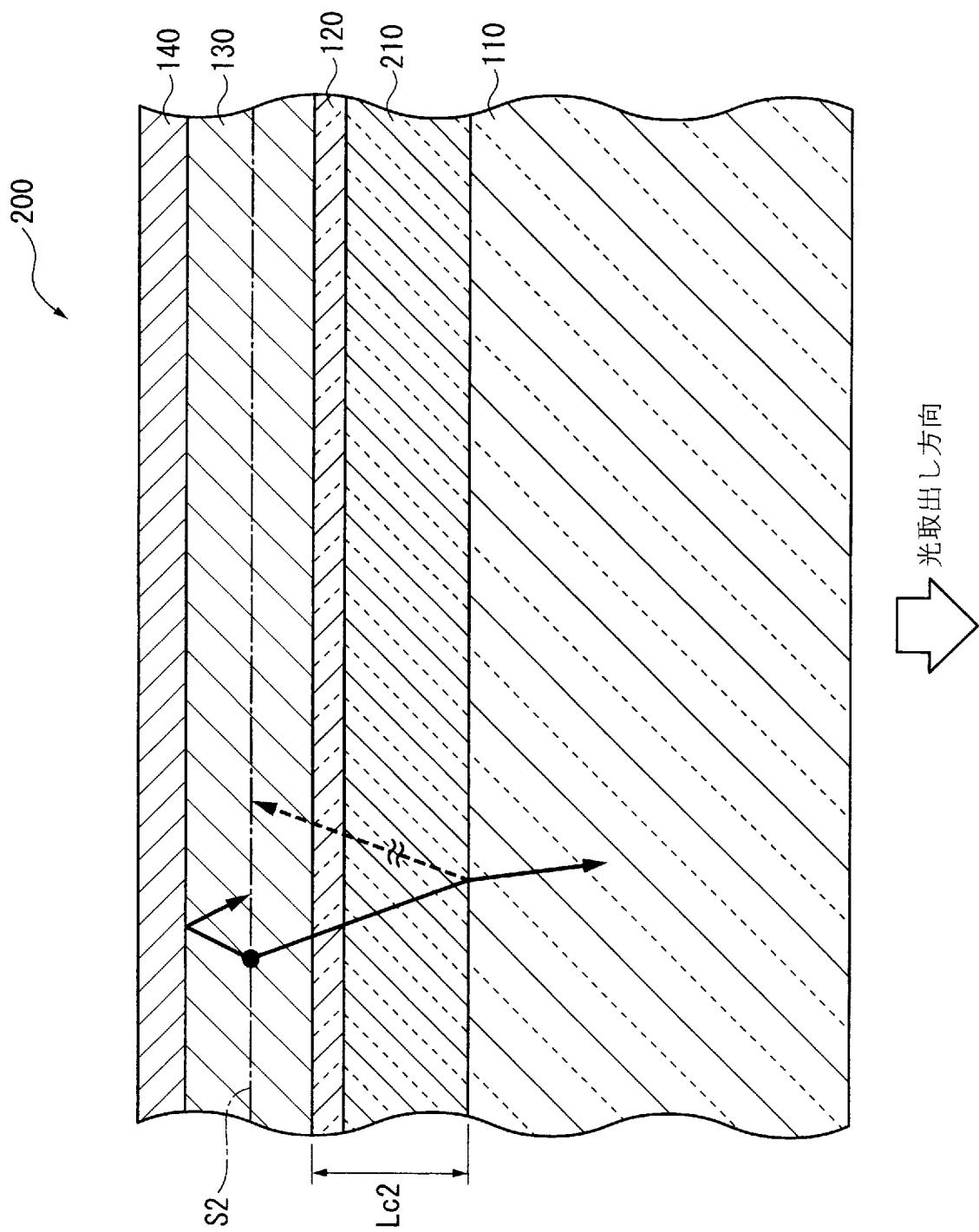
ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[請求項10] 請求項1から請求項9まで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を備える照明装置。

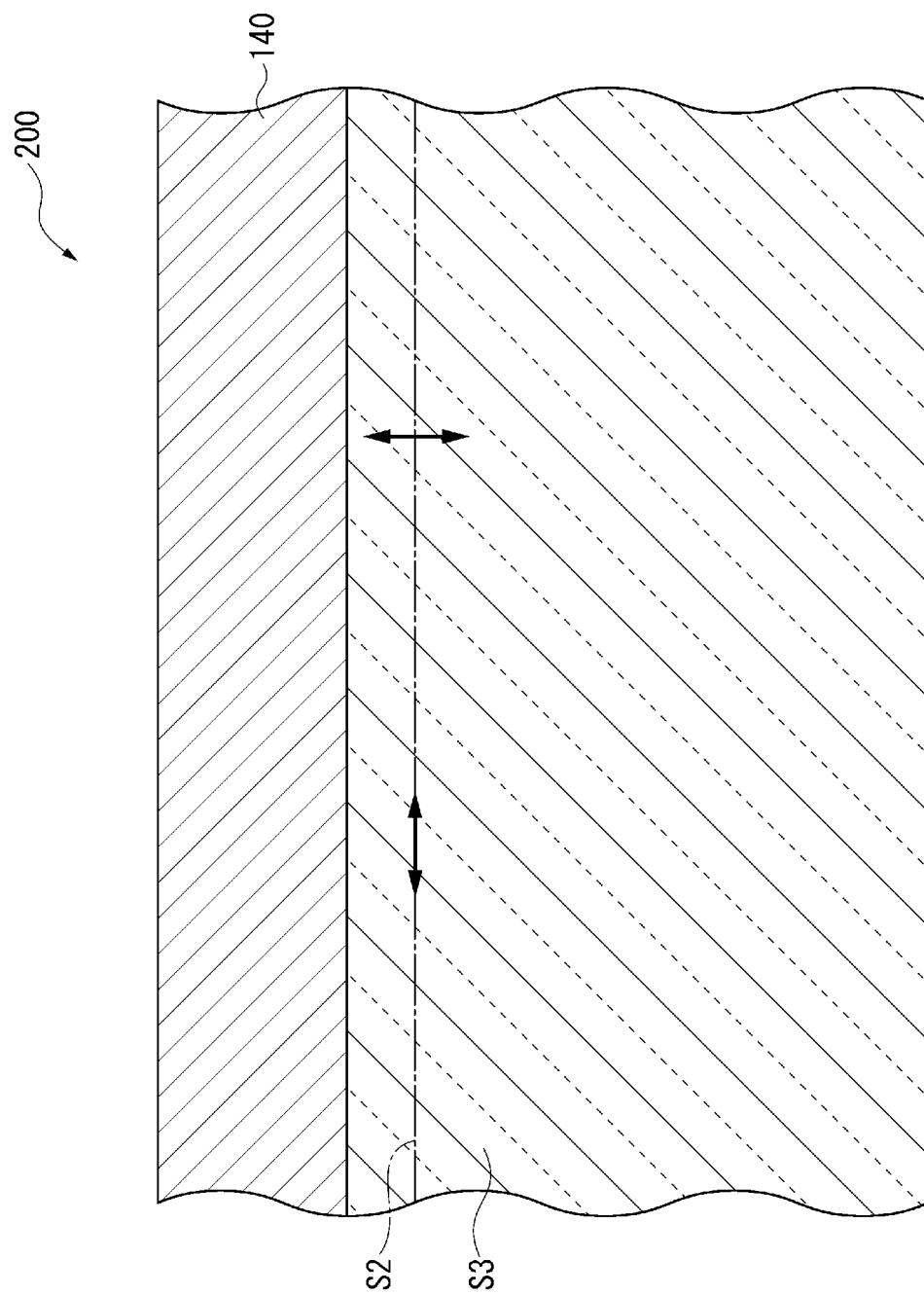
[図1]



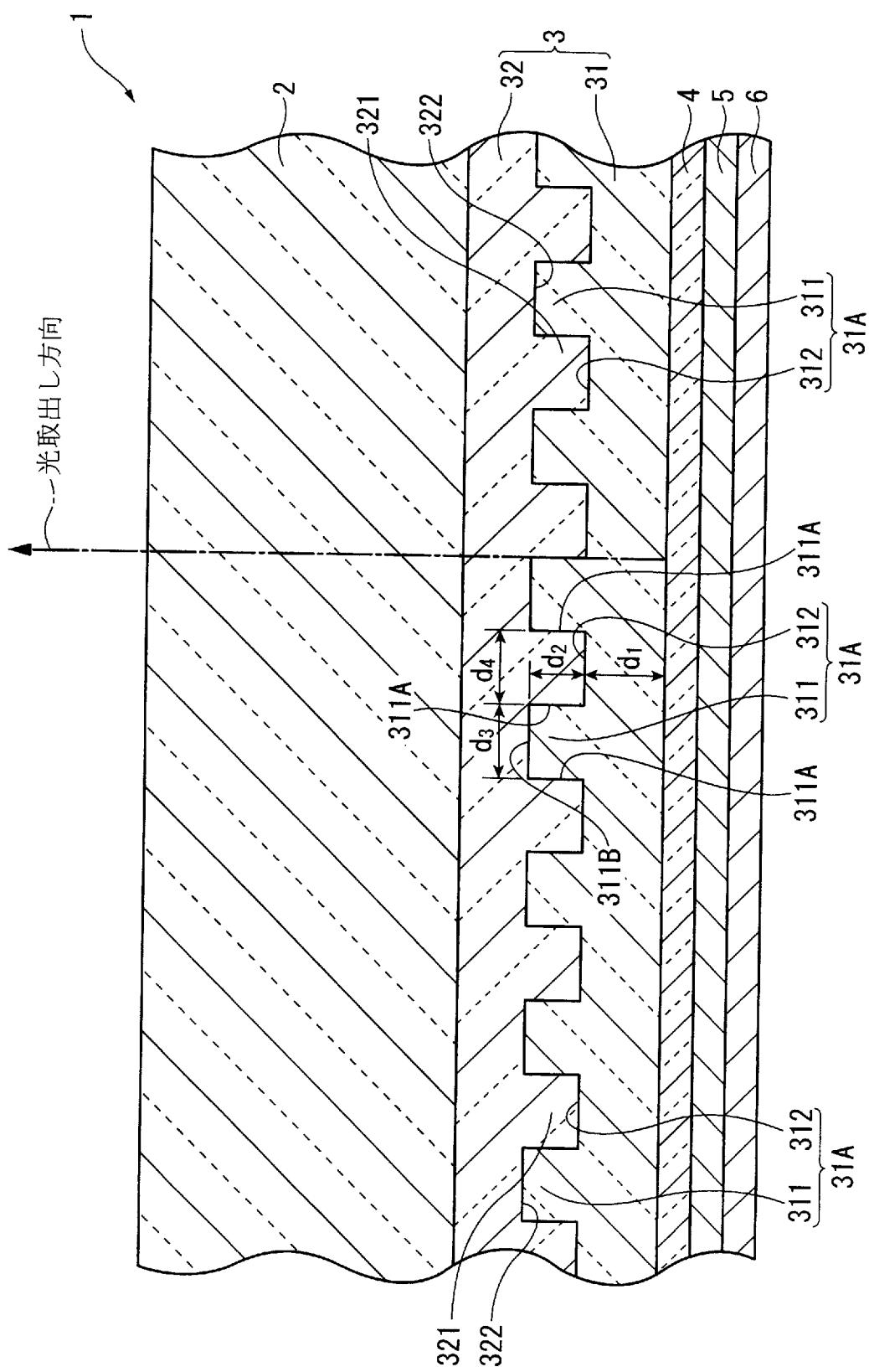
[図2]



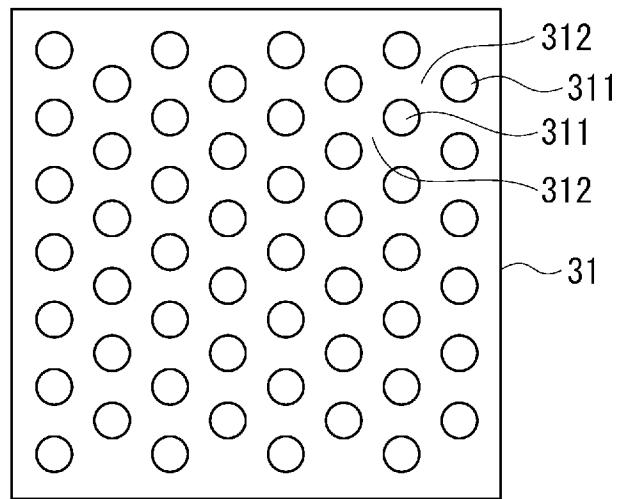
[図3]



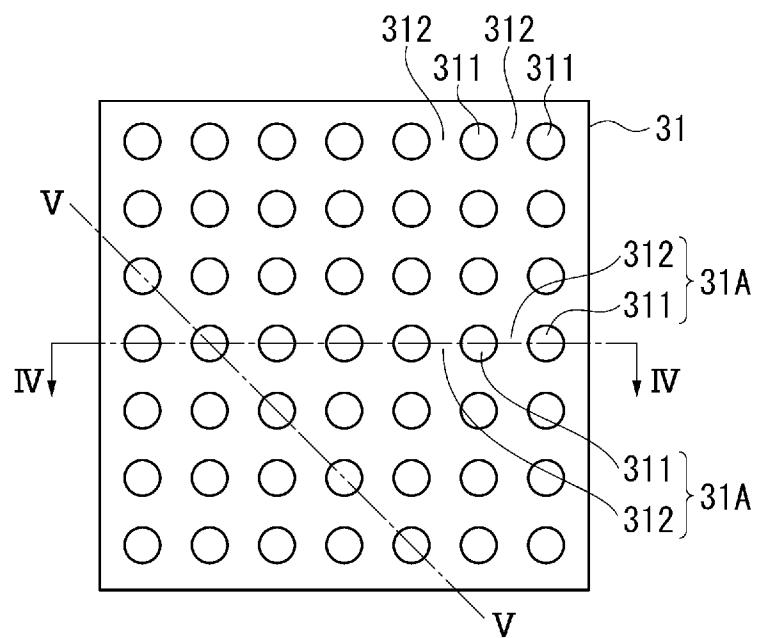
[図4]



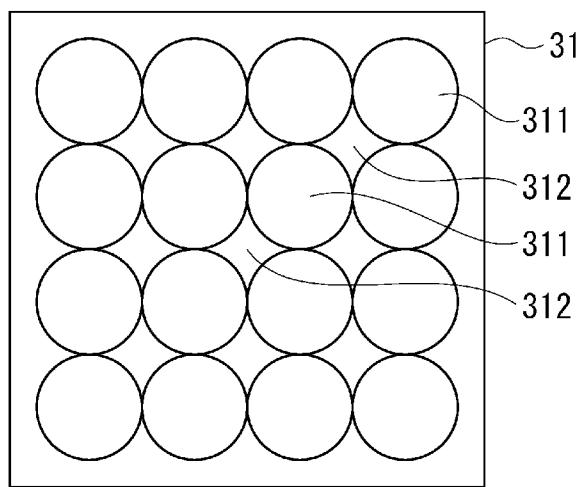
[図5A]



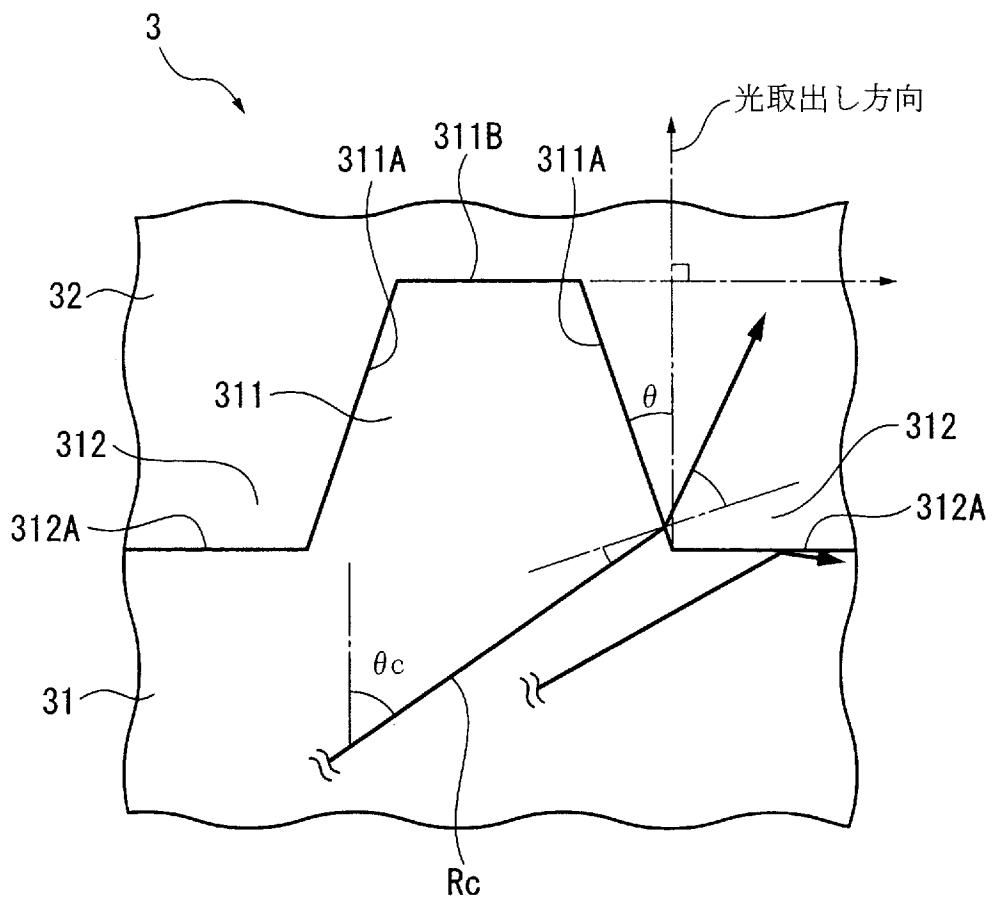
[図5B]



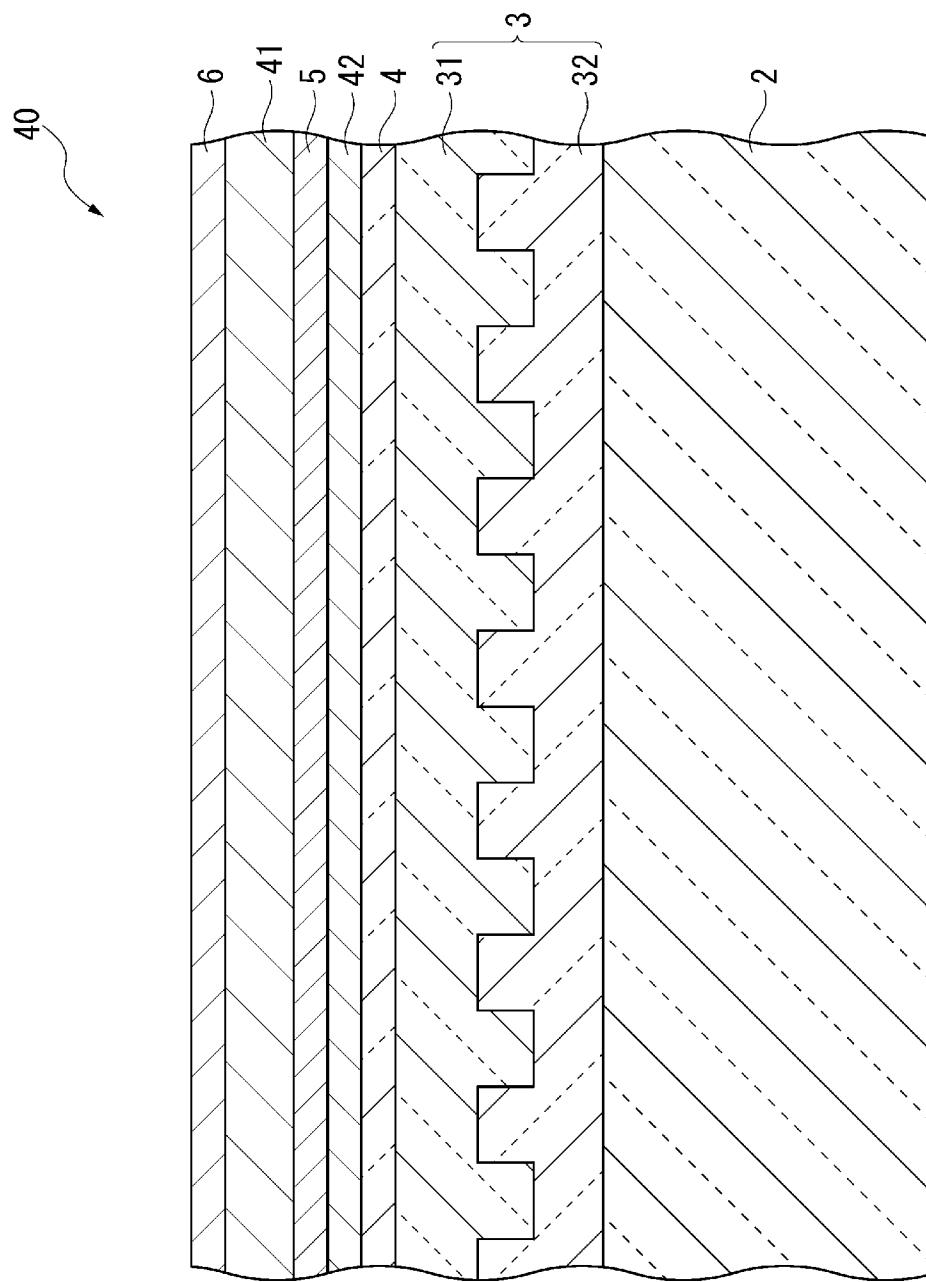
[図5C]



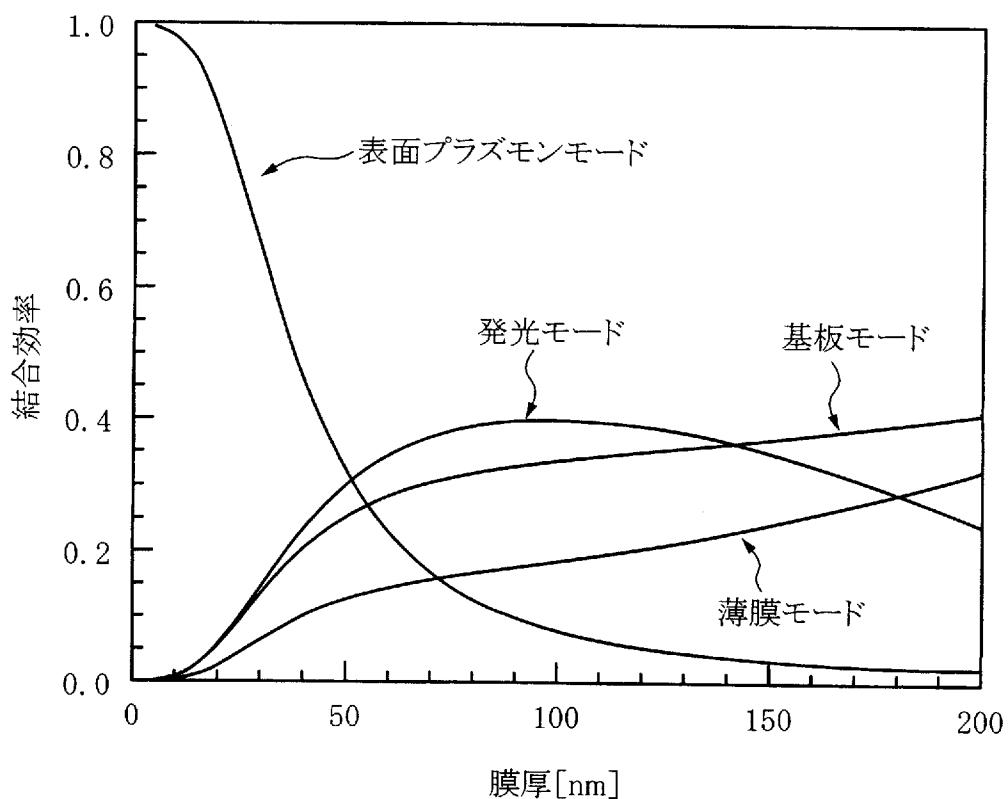
[図6]



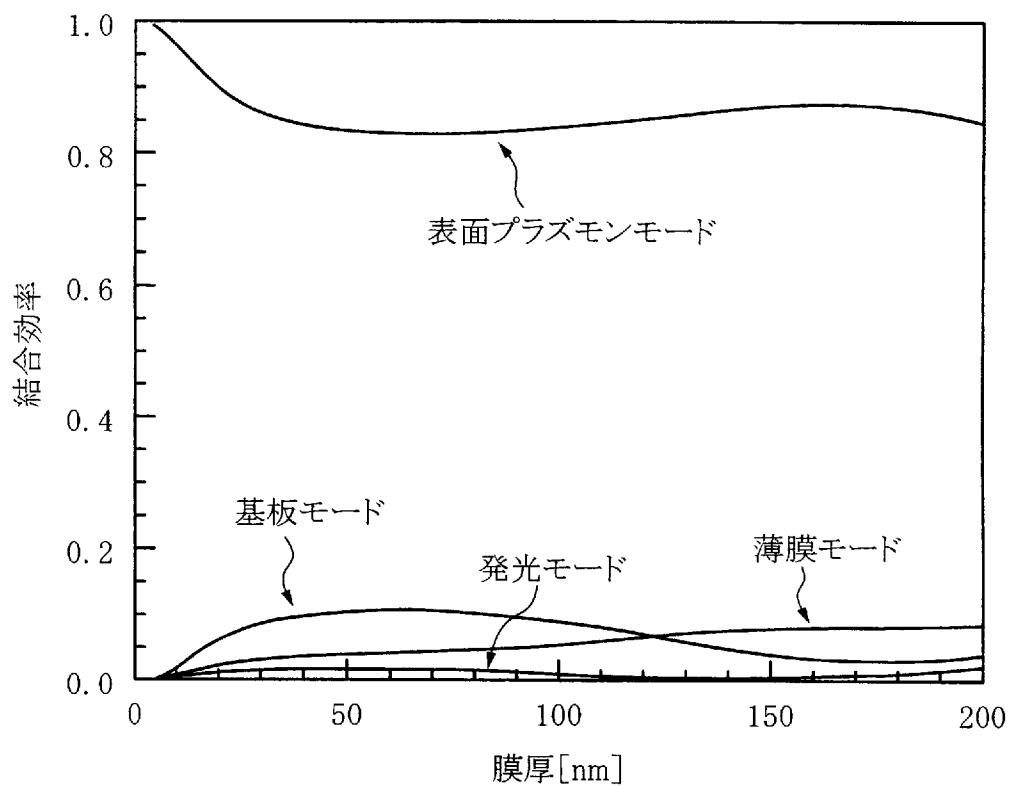
[図7]



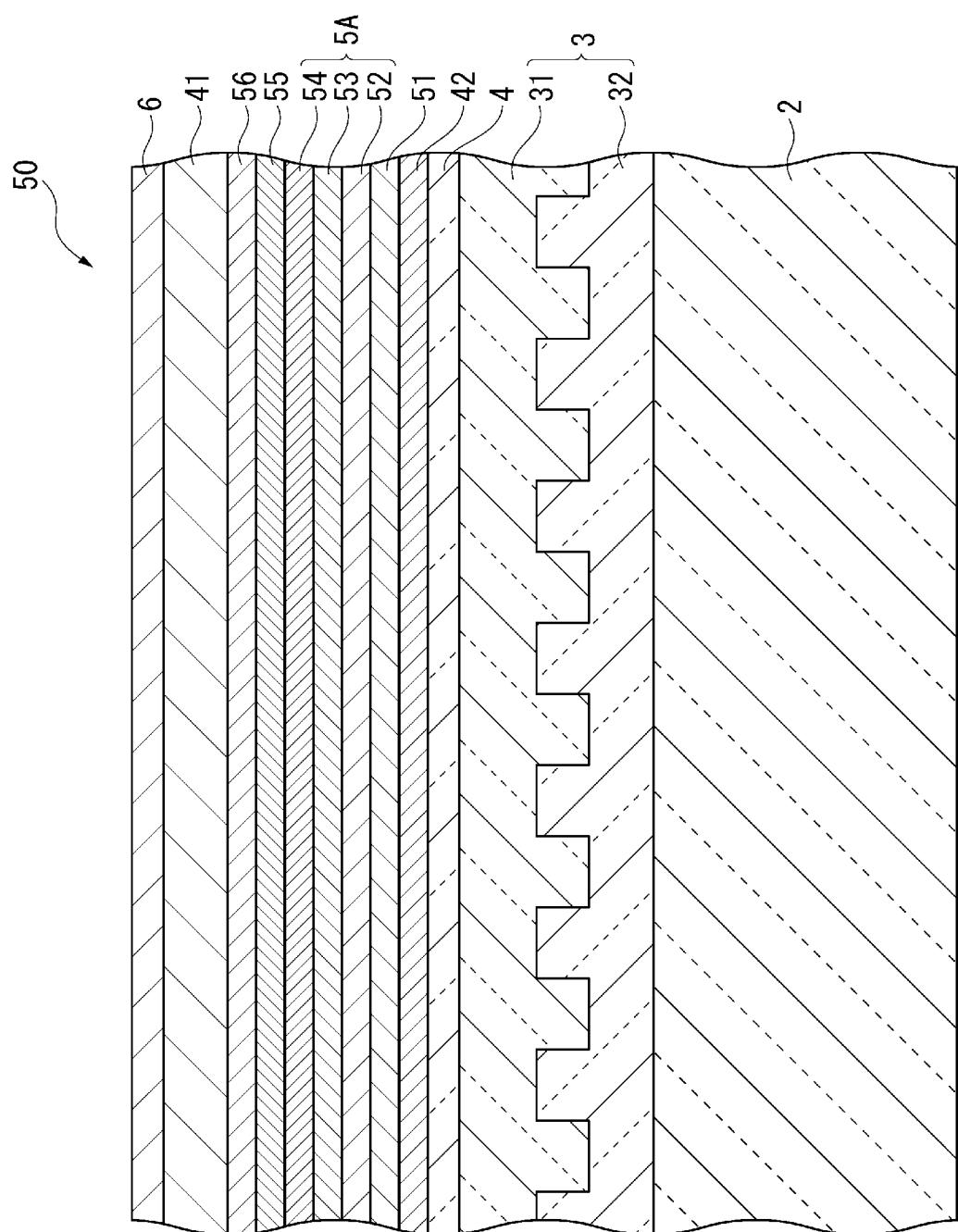
[図8]



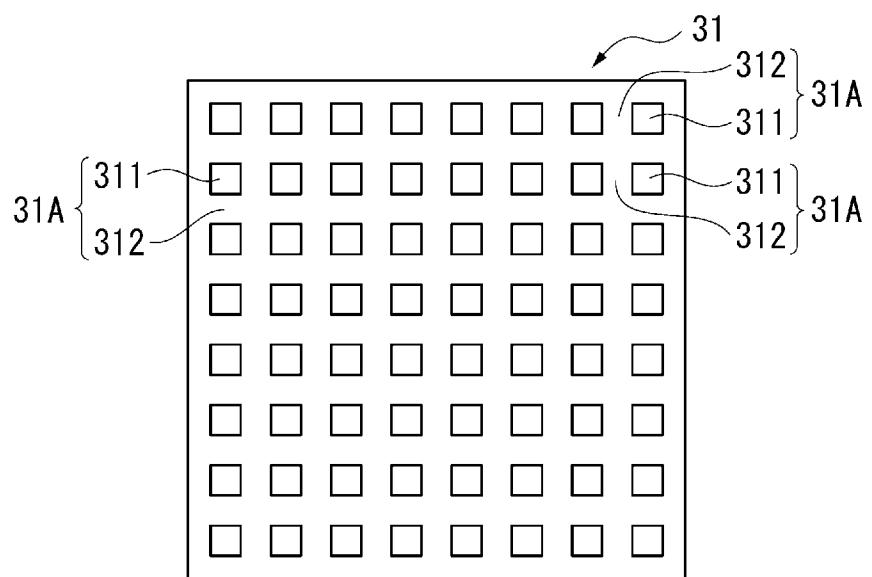
[図9]



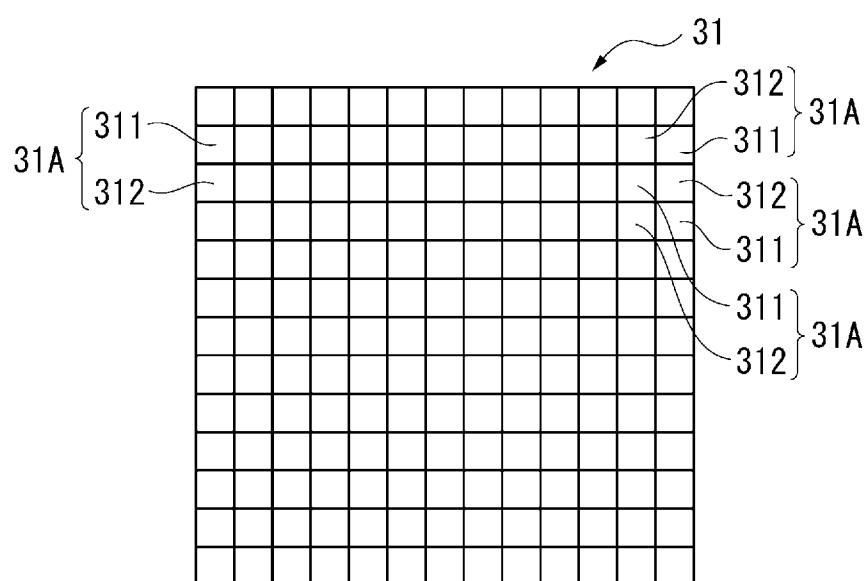
[図10]



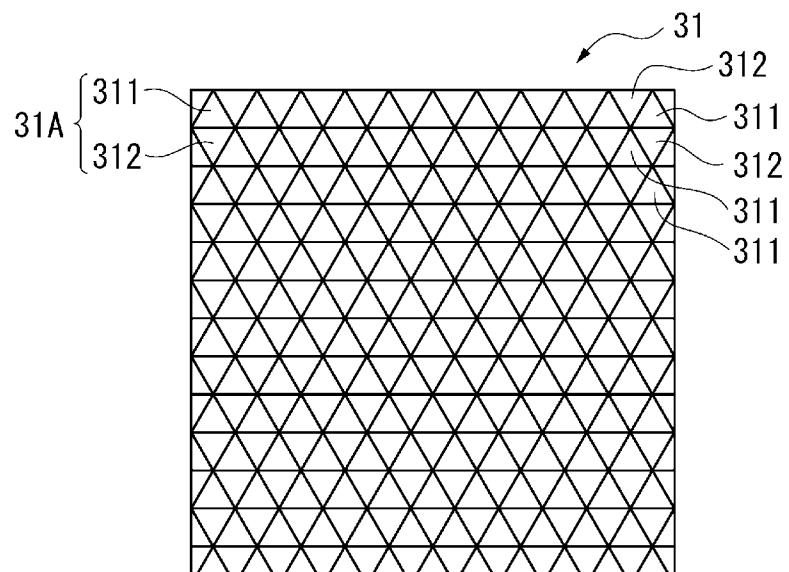
[図11A]



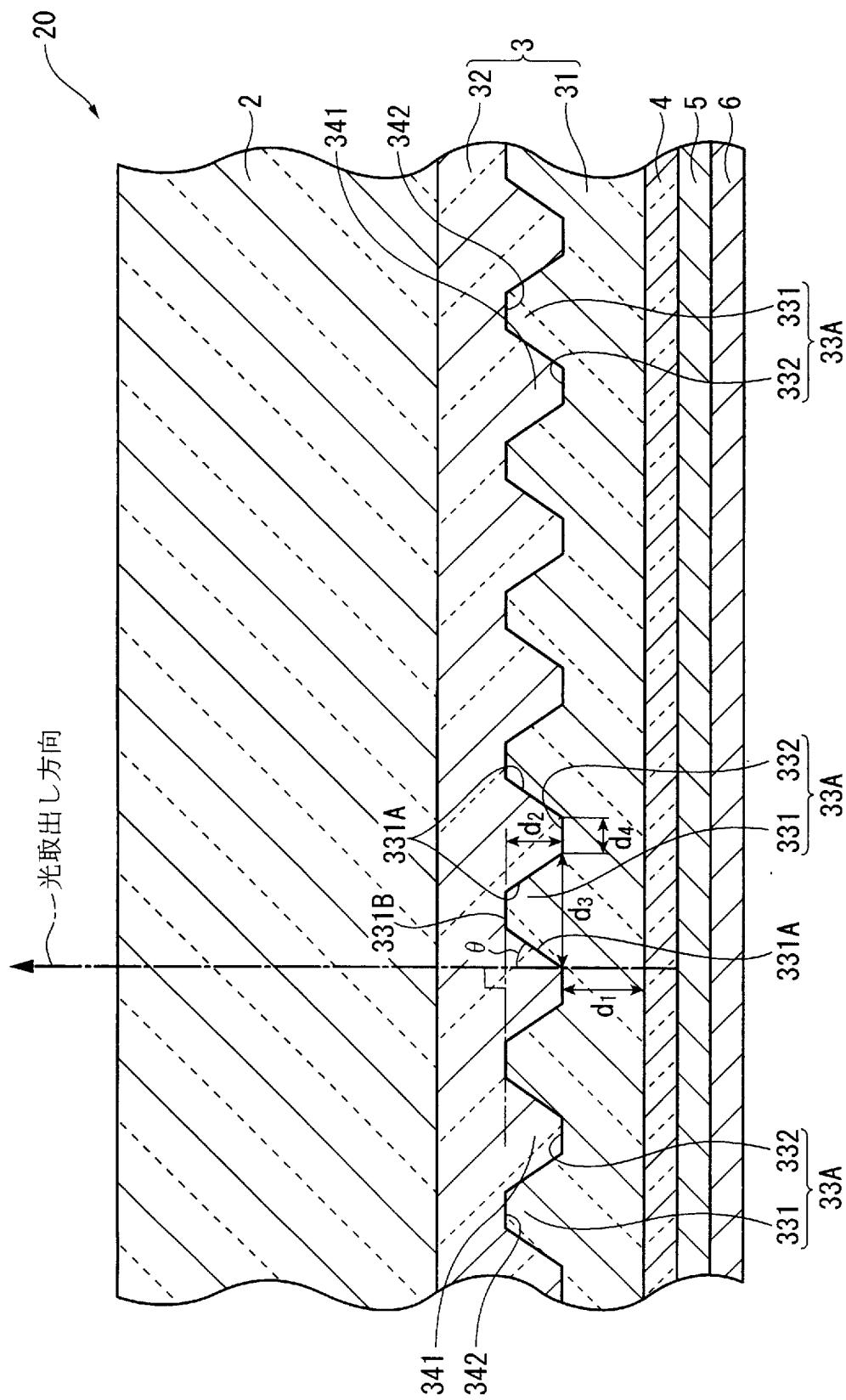
[図11B]



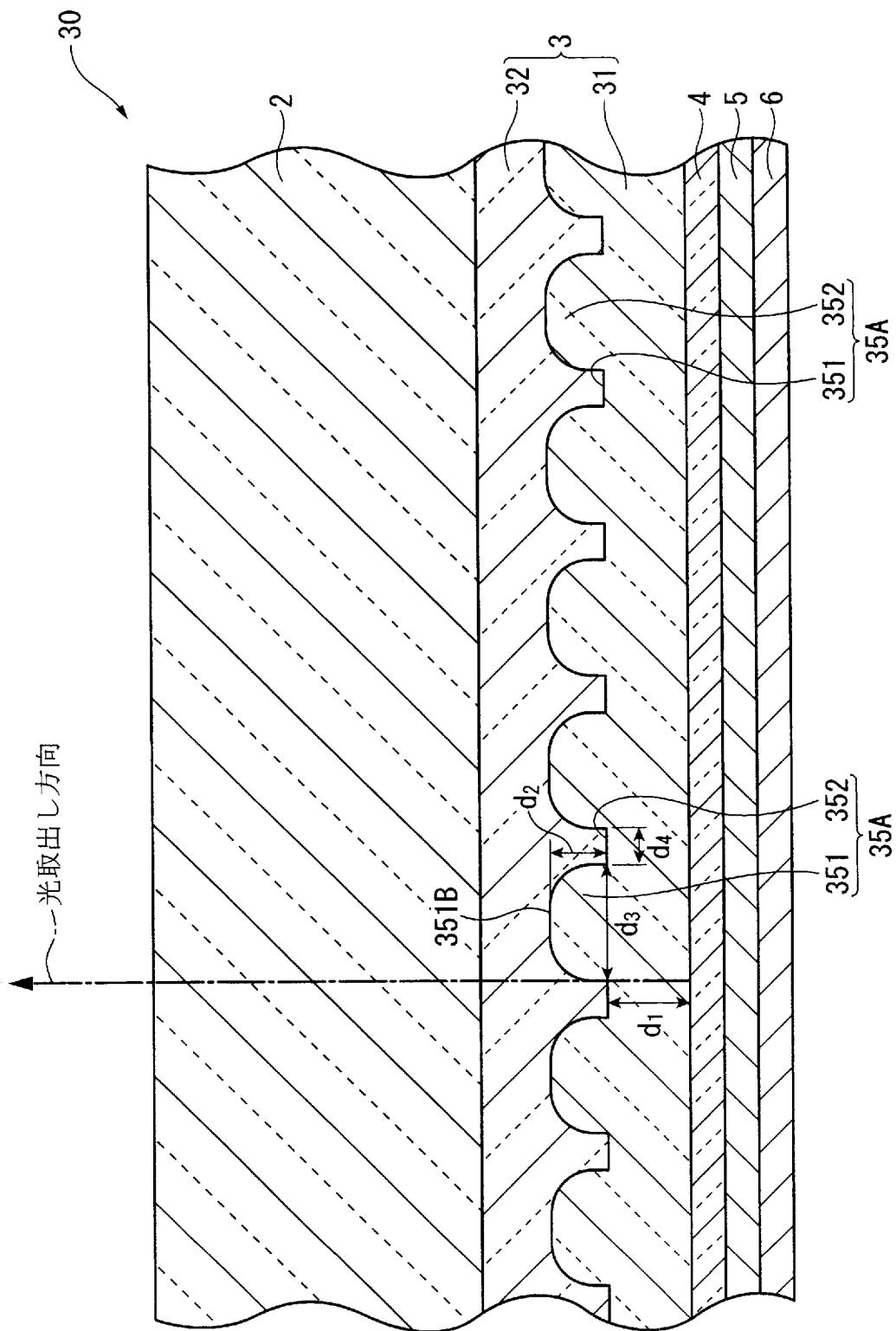
[図11C]



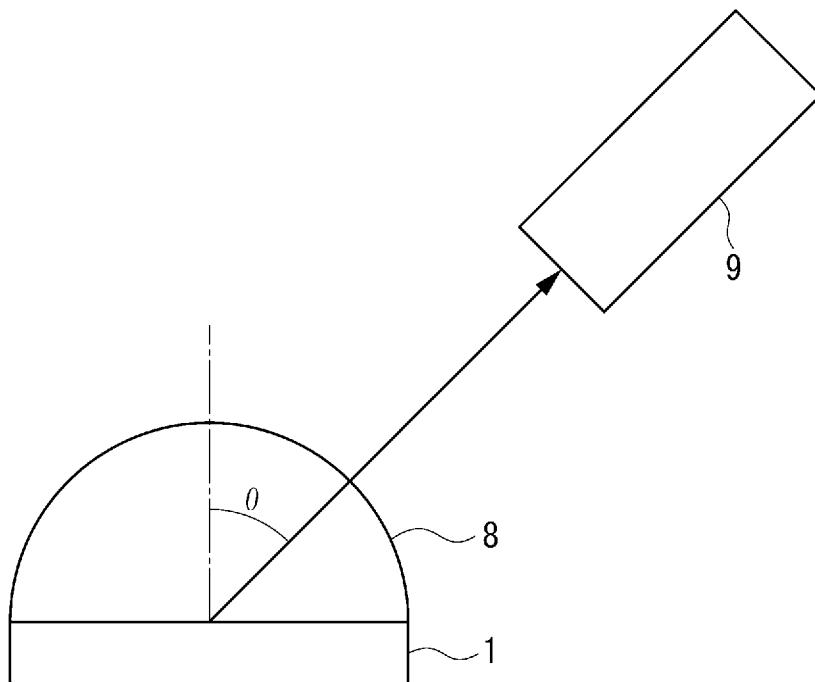
[図12]



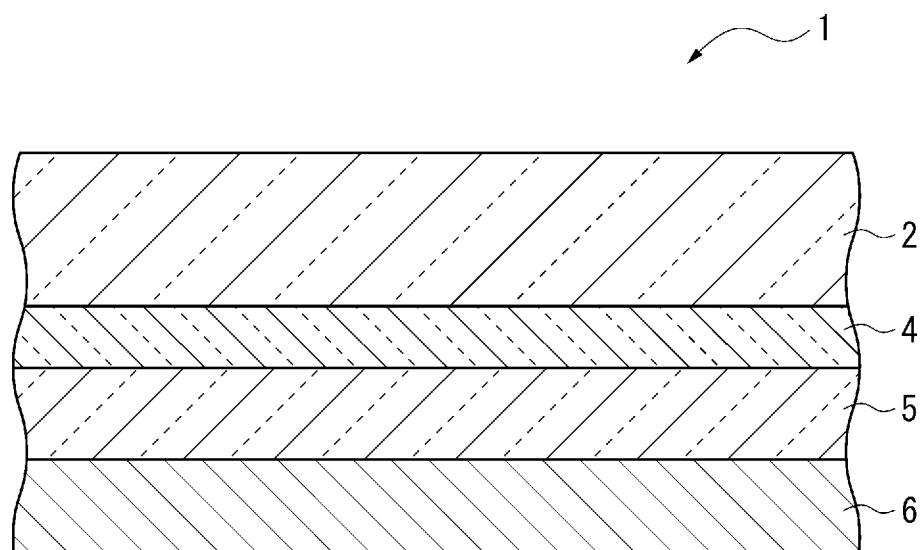
[図13]



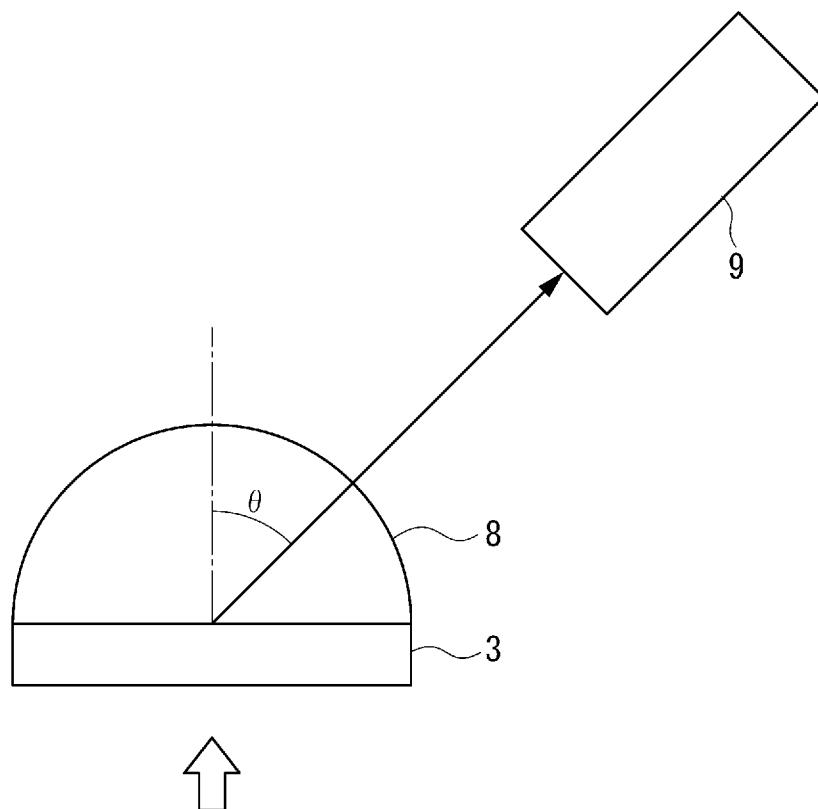
[図14A]



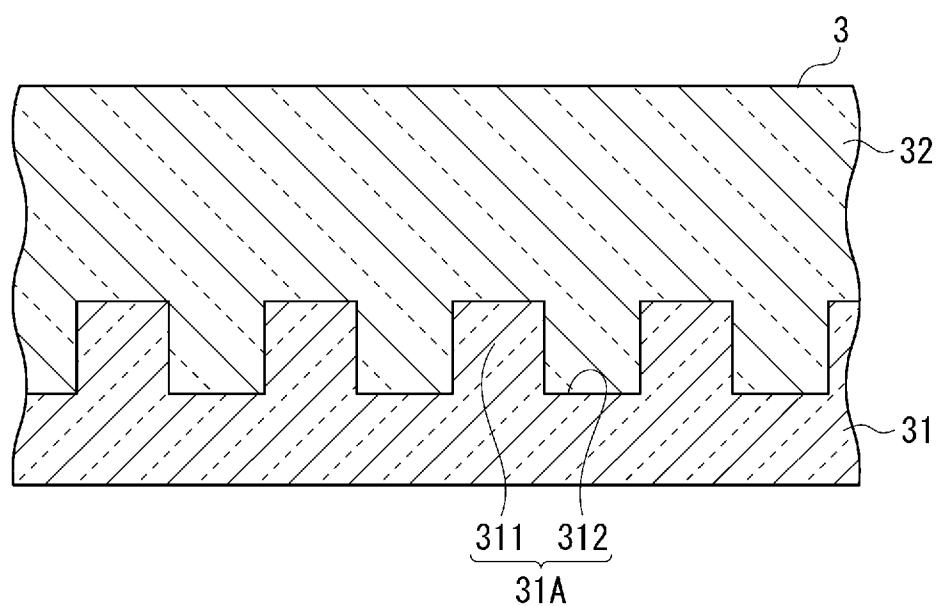
[図14B]



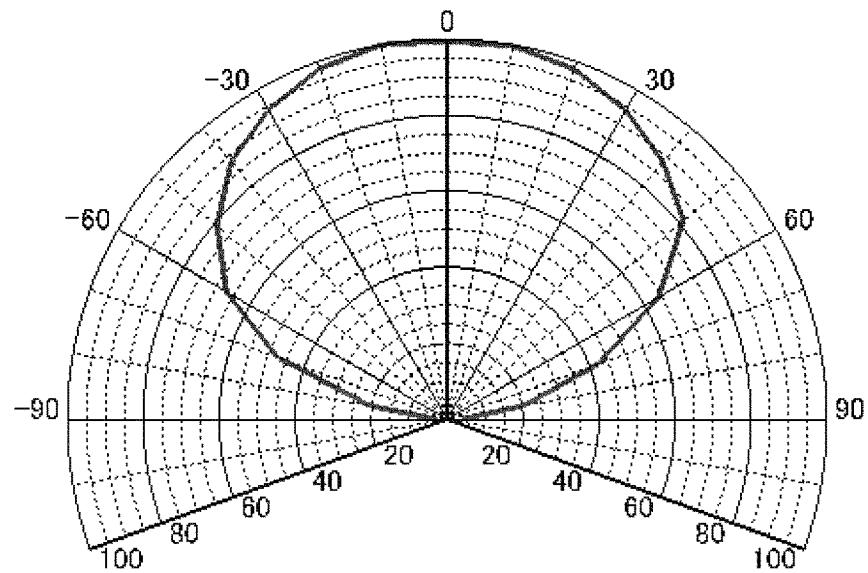
[図15A]



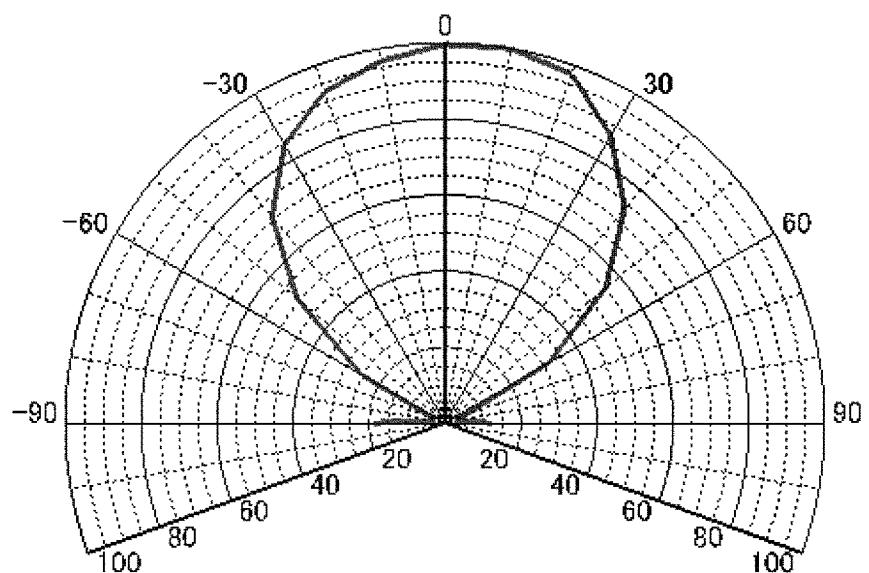
[図15B]



[図16A]



[図16B]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/059935

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/02 (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, 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	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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.
Y	JP 2004-296438 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 21 October 2004 (21.10.2004), paragraphs [0014] to [0100]; fig. 2 & US 2006/0049745 A1 & US 2009/0066219 A1 & US 2009/0066220 A1 & EP 1603367 A1 & WO 2004/089042 A1	1-10
Y	JP 2009-272059 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 19 November 2009 (19.11.2009), paragraphs [0039] to [0057]; fig. 3, 4 (Family: none)	1-10

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
19 July, 2011 (19.07.11)

Date of mailing of the international search report
02 August, 2011 (02.08.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/059935

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 2007-287486 A (International Test & Engineering Services Co., Ltd.), 01 November 2007 (01.11.2007), claims 1 to 17; fig. 1 & US 2007/0254162 A1 & EP 1848050 A2 & KR 10-2007-0102947 A & CN 101060165 A	1-10
Y	JP 2006-294491 A (Seiko Epson Corp.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraph [0022] (Family: none)	1-10
A	JP 2008-66027 A (Fuji Electric Holdings Co., Ltd.), 21 March 2008 (21.03.2008), claims 1 to 14 (Family: none)	1-10
A	JP 2007-335253 A (Toshiba Matsushita Display Technology Co., Ltd.), 27 December 2007 (27.12.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1-10
A	JP 2005-327689 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 24 November 2005 (24.11.2005), entire text; all drawings & WO 2005/112515 A1	1-10
A	JP 2005-317228 A (Nitto Denko Corp.), 10 November 2005 (10.11.2005), entire text; all drawings (Family: none)	1-10
A	JP 2005-274741 A (Shinshu University), 06 October 2005 (06.10.2005), entire text; all drawings (Family: none)	1-10
A	JP 2003-297572 A (NEC Corp.), 17 October 2003 (17.10.2003), entire text; all drawings & US 2005/0127832 A1 & WO 2003/084291 A1 & KR 10-2004-0094861 A & CN 1653856 A	1-10

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, 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, 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	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011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
Y	JP 2004-296438 A (三菱化学株式会社) 2004.10.21, 段落【0014】-【0100】，【図2】 & US 2006/0049745 A1 & US 2009/0066219 A1 & US 2009/0066220 A1 & EP 1603367 A1 & WO 2004/089042 A1	1-10
Y	JP 2009-272059 A (凸版印刷株式会社) 2009.11.19, 段落【0039】-【0057】，【図3】，【図4】 (ファミリーなし)	1-10

 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。

* 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 19.07.2011	国際調査報告の発送日 02.08.2011
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 郵便番号100-8915 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） 濱野 隆 電話番号 03-3581-1101 内線 3271 20 9108

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
Y	JP 2007-287486 A (株式会社アイテス) 2007.11.01, 【請求項1】 - 【請求項17】 , 【図1】 & US 2007/0254162 A1 & EP 1848050 A2 & KR 10-2007-0102947 A & CN 101060165 A	1-10
Y	JP 2006-294491 A (セイコーホームズ株式会社) 2006.10.26, 段落【0022】 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2008-66027 A (富士電機ホールディングス株式会社) 2008.03.21, 【請求項1】 - 【請求項14】 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2007-335253 A (東芝松下ディスプレイテクノロジー株式会社) 2007.12.27, 全文全図 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2005-327689 A (日本ゼオン株式会社) 2005.11.24, 全文全図 & WO 2005/112515 A1	1-10
A	JP 2005-317228 A (日東电工株式会社) 2005.11.10, 全文全図 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2005-274741 A (国立大学法人信州大学) 2005.10.06, 全文全図 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2003-297572 A (日本電気株式会社) 2003.10.17, 全文全図 & US 2005/0127832 A1 & WO 2003/084291 A1 & KR 10-2004-0094861 A & CN 1653856 A	1-10