(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014 年 7 月 31 日(31.07.2014)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2014/115639 A1

(51) 国際特許分類:
C09J 201/00 (2006.01) *C09J 11/08* (2006.01)
C09J 7/00 (2006.01) *G02B 5/02* (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01) *H05B 33/02* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) *H05B 33/14* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2014/050717

(22) 国際出願日: 2014 年 1 月 16 日(16.01.2014)

(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 2013-012259 2013 年 1 月 25 日(25.01.2013) JP
特願 2013-067095 2013 年 3 月 27 日(27.03.2013) JP

(71) 出願人: 日本ゼオン株式会社(ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 眞島 啓(MASHIMA, Hiromu); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 原井 謙一(HARAI, Kenichi); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 酒井 宏明(SAKAI, Hiroaki); 〒1006020 東京都千代田区霞が関三丁目２番５号 霞が関ビルディング 酒井国際特許事務所 Tokyo (JP).

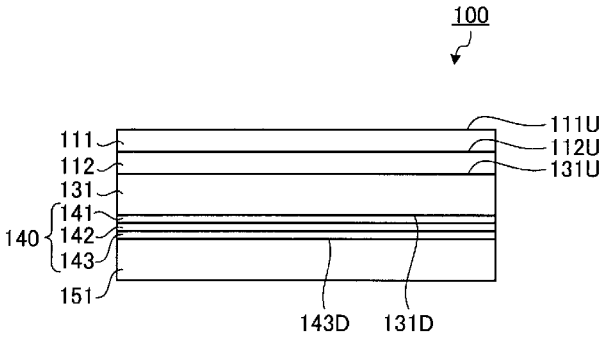
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG,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

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

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: OPTICAL-MEMBER ADHESIVE COMPOSITION, OPTICAL-MEMBER ADHESIVE LAYER, AND SURFACE LIGHT SOURCE DEVICE

(54) 発明の名称 : 光学部材用粘着剤組成物、光学部材用粘着層及び面光源装置



(57) **Abstract**: Provided are the following: an optical-member adhesive composition which contains an adhesive material, reactive modified metal oxide particles having a volume average particle diameter of 1-500 nm, and organic light-diffusing particles, and optionally contains a silane coupling agent and a plasticizer; an optical-member adhesive layer which is formed from the optical-member adhesive composition; and a surface light source device that contains a specific light-diffusing layer.

(57) 要約: 粘着性材料、体積平均粒子径１～５００ｎｍの反応性修飾金属酸化物粒子、及び有機系光拡散粒子を含有し、さらに、任意にシランカップリング剤及び可塑剤を含有する光学部材用粘着剤組成物；当該光学部材用粘着剤組成物により形成されてなる、光学部材用粘着層；並びに、特定の光拡散層を含む面光源装置。

WO 2014/115639 A1

明　細　書

発明の名称 ：

光学部材用粘着剤組成物、光学部材用粘着層及び面光源装置

技術分野

[0001] 本発明は、光学部材用粘着剤組成物及び光学部材用粘着層に関し、特に、高い屈折率が求められる用途に好適に用いうる光学部材用粘着剤組成物及び光学部材用粘着層に関する。さらに、有機エレクトロルミネッセンス（以下「有機ＥＬ」という。）素子を備える面光源装置に関する。

背景技術

[0002] 複数の光学部材を組み合わせて光学的な装置を構成するにあたり、これらの光学部材を粘着剤により結合させることが求められる場合がある。そして、そのような粘着剤の層は、高い光拡散能と、高い屈折率とを有することが求められる場合がある。

[0003] 例えば、光学部材として複数層の電極間に有機発光層を設け、電気的に発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、単に「有機ＥＬ素子」という場合がある）は、液晶セルに代わる表示素子としての利用が検討されている。加えて、その高発光効率、低電圧駆動、軽量、低コスト等の特徴を生かした、平面型照明、液晶表示装置用バックライト等の面光源装置としての利用が検討されている。

[0004] 有機ＥＬ素子を面光源装置の光源として利用する場合、有用な態様の光を高効率で素子から取り出すことが課題となる。例えば、有機ＥＬ素子の発光層自体は発光効率が高いものの、それが素子を構成する積層構造を透過して出光するまでの間に、層中における干渉等により光量が低減してしまうので、そのような光の損失を可能な限り低減することが求められる。

[0005] また、有機ＥＬ素子を含む面光源装置を構成する場合、有機ＥＬ素子を含む構造物と、光取出フィルム（光取出し効率を高めるための表面構造を有するフィルム）とを、粘着剤の層を介して結合させることが、しばしば行われ

る。このような面光源装置では、有機ＥＬ素子において発生した光は、粘着層及び光取出フィルムを通り、装置外に出る。このような面光源装置においては、粘着層が、高い光拡散能と高い屈折率とを有していると、光取出し効率を高める上で特に有利である。

高い屈折率を発現するため、粘着力を発現する粘着性組成物に加えて金属酸化物を含有する粘着剤組成物が知られている（例えば特許文献１～特許文献３）。

[0006] さらに、光取り出し効率を高めるための方法として、光源装置よりも光取り出し面側に、種々の構造を設けることが知られている。例えば特許文献４では、光源装置よりも光取り出し面側に、種々の構造を設けることを提案している。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開２０１０－２５４８８９号公報

特許文献2：特開２００８－１０６１２９号公報

特許文献3：特開２０１０－０９５３９２号公報

特許文献4：特開２００９－２６６４２９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、特許文献１～特許文献３に開示されている粘着剤組成物は、いずれも光拡散能が低い。

[0009] これらの粘着剤組成物の光拡散能を高めるための手段としては、光拡散粒子をさらに添加することが考えられる。しかしながら、その場合、粘着剤組成物の製造工程において光拡散粒子の沈降が発生しやすく、従って、均質で、粘着力を安定して発現しうる粘着剤組成物を製造することが困難である。

[0010] 従って、本発明の目的は、高い光拡散能と高い屈折率とを有し、且つ、均質で、粘着力を安定して発現しうるよう製造しうる粘着剤組成物及び粘着層

を提供することにある。

[0011] さらに、面光源装置においては、光取り出し効率に加え、観察角度による色味の変化を低減することも求められる。特許文献４のように光取り出し効率を高めるための構造を設けた場合、観察角度による色味の変化が大きくなることがある。したがって、これらの要件をいずれも満たす面光源装置を得ることは困難であった。

[0012] 本発明の他の目的は、光取り出し効率の高さ、及び観察角度による出光面の色味の変化の少なさの両方において優れた面光源装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明者らは上記課題を解決するため検討した結果、金属酸化物及び光拡散粒子として特定のものを採用することにより、上記課題を解決しうることを見出した。本発明者らはまた、有機ＥＬ素子の基材の面上に、光拡散粒子を含み且つ所定の散乱異方性係数ｇ及びその他の所定の特性を有する光拡散層を設けることにより上記課題を解決しうることを見出した。本発明者らは、これらの知見により、本発明を完成した。

[0014] 即ち、本発明によれば、下記〔１〕～〔８〕が提供される。

[0015] 〔１〕 粘着性材料、体積平均粒子径１～５００ｎｍの反応性修飾金属酸化物粒子、及び有機系光拡散粒子を含有する光学部材用粘着剤組成物。

〔２〕 シランカップリング剤をさらに含有する〔１〕に記載の光学部材用粘着剤組成物。

〔３〕 可塑剤をさらに含有する〔１〕又は〔２〕に記載の光学部材用粘着剤組成物。

〔４〕 〔１〕～〔３〕のいずれか１項に記載の光学部材用粘着剤組成物により形成されてなる光学部材用粘着層。

〔５〕 発光層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子と、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子よりも出光面に近い側に位置する透光性基材と、

前記透光性基材の、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と反対側の面に接して設けられた光拡散層と

を備える面光源装置であって、

前記光拡散層が透光性樹脂と光拡散粒子とを含み、前記光拡散層の散乱異方性係数ｇが０．８３以上０．９７以下であり、かつ、前記光拡散層の屈折率と、前記透光性基材との屈折率差が、０．１以下であることを特徴とする面光源装置。

〔６〕　前記光拡散層が拡散粘着層である、〔５〕に記載の面光源装置。

〔７〕　前記光拡散粒子の体積平均粒子径が、０．４～５μｍである、〔５〕又は〔６〕に記載の面光源装置。

〔８〕　前記光拡散層が、光学部材用粘着剤組成物により形成されてなり、

光学部材用粘着剤組成物が、前記透光性樹脂として粘着性材料を含み、前記光拡散粒子として有機系光拡散粒子を含み、且つ、体積平均粒子径１～５００ｎｍの反応性修飾金属酸化物粒子をさらに含む、〔５〕～〔７〕のいずれか１項に記載の面光源装置。

発明の効果

[0016] 本発明の光学部材用粘着剤組成物及び粘着層は、光拡散粒子による高い光拡散能と、反応性修飾金属酸化物粒子による高い屈折率とを有しながら、且つ、均質で、粘着力を安定して発現しうるよう製造しうる。また、本発明の面光源装置は、光取り出し効率の高さ、及び観察角度による出光面の色味の変化の少なさの両方において優れる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]図１は、本発明の面光源装置の一例としての第一実施形態を模式的に示す断面図である。

[図2]図２は、本発明の面光源装置の別の一例としての第二実施形態を模式的に示す斜視図である。

[図3]図３は、本願実施例におけるシミュレーションの条件として設定した、発光面における三刺激値（ＸＹＺ）の配光分布を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0018] 以下、本発明について実施形態及び例示物を示して詳細に説明する。ただし、本発明は以下に説明する実施形態及び例示物に限定されるものではなく、本発明の特許請求の範囲及びその均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施してもよい。

以下の説明において、構成要素が「平行」又は「垂直」であるとは、別に断らない限り、本発明の効果を損ねない範囲、例えば±５°の範囲内で誤差を含んでいてもよい。また、ある方向に「沿って」とは、別に断らない限り、ある方向に「平行に」という意味である。さらに、別に断らない限り、発光素子を構成する各層の厚み方向は発光素子の厚み方向に一致しており、単に「厚み方向」という場合は発光素子の厚み方向を表す。

なお、本願において、「溶媒」の文言は、記述の便宜上、その中に溶質が溶解される、溶液を構成する媒体のみならず、その中に分散物が分散される、懸濁液（スラリーを含む）を構成する媒体をも含むものとして用いられる。

[0019] ［１．粘着性組成物］

本発明の粘着剤組成物は、粘着性材料、所定の反応性修飾金属酸化物粒子、及び有機系光拡散粒子を含有する。

[0020] ［１．１．粘着性材料］

粘着性材料は、本発明の粘着剤組成物の粘着性を発現する材料である。粘着剤組成物において、粘着性材料は、通常液体の状態、又は他の成分に溶解した状態で存在する。

[0021] 粘着性材料としては、光学材料用に用いられる、各種の粘着性を有する材料を用いうる。かかる粘着性材料の例としては、各種の粘着剤の主成分として用いられている、ポリマー又はその他の高分子化合物が挙げられる。かかる粘着剤の例としては、ゴム系粘着剤、アクリル系粘着剤、シリコーン系粘着剤、ウレタン系粘着剤、ビニルアルキルエーテル系粘着剤、ポリビニルアルコール系粘着剤、ポリビニルピロリドン系粘着剤、ポリアクリルアミド系

粘着剤、及びセルロース系粘着剤が挙げられる。これらの中でも、透明性、耐候性、及び耐熱性等の特性に優れるアクリル系粘着剤の主成分であるアクリル系ポリマーが、粘着性材料として好ましい。

[0022] ［１．１．１．アクリル系ポリマー］

アクリル系ポリマーとは、アクリル系モノマーを重合してなるポリマー、又はアクリル系モノマー及びこれと共重合しうるモノマーとの混合物（モノマー混合物）を重合してなるポリマーであり、これらのモノマーに由来するユニットを含むポリマーである。

[0023] アクリル系モノマーの例としては、アルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。本願において、（メタ）アクリレートとは、アクリレート、メタクリレート又はこれらの混合物を意味する。アルキル（メタ）アクリレートのアルキル基の平均炭素数は１～１２程度であることが好ましく、３～８であることがより好ましい。アルキル（メタ）アクリレートの具体例としては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、及びイソオクチル（メタ）アクリレートが挙げられる。これらのアルキル（メタ）アクリレートは、１種類を単独で、又は２種類以上を組合せて使用しうる。

[0024] モノマー混合物が含有しうる、アクリル系モノマーと共重合しうるモノマーとしては、官能基を有するモノマー（以下、単に「官能基含有モノマー」ということがある。）、窒素原子含有モノマー、及び改質モノマーを好ましく挙げることができる。

[0025] 官能基含有モノマーの例としては、カルボキシル基を有するモノマー、水酸基を有するモノマー、及びエポキシ基を有するモノマーが挙げられる。カルボキシル基を有するモノマーの例としては、アクリル酸、メタクリル酸、フマル酸、マレイン酸、及びイタコン酸が挙げられる。水酸基を有するモノマーの例としては、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、及びＮ－メチロール（メタ）アクリルアミドが挙げられる。エポキシ基を

有するモノマーとの例としては、グリシジル（メタ）アクリレートが挙げられる。モノマー混合物が官能基含有モノマーを含有する場合、その割合は、モノマー混合物の合計を１００重量％としたときに、アクリル系モノマーが６０～９９．８重量％で、官能基含有モノマーが４０～０．２重量％であることが好ましい。

[0026] 窒素原子含有モノマーの例としては、（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチル（メタ）アクリルアミド、（メタ）アクリロイルモルホリン、（メタ）アセトニトリル、ビニルピロリドン、Ｎ－シクロヘキシルマレイミド、イタコンイミド、及びＮ，Ｎ－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。モノマー混合物が窒素原子含有モノマーを含有する場合、その割合は、モノマー混合物の合計を１００重量％としたときに、アクリル系モノマーが６０～９９．８重量％で、窒素原子含有モノマーが４０～０．２重量％であることが好ましい。

[0027] 改質モノマーの例としては、酢酸ビニル及びスチレンを挙げることができる。モノマー混合物が改質モノマーを含有する場合、その割合は、モノマー混合物の合計を１００重量％としたときに、アクリル系モノマーが６０～９９．８重量％で、改質モノマーが４０～０．２重量％であることが好ましい。

[0028] これらの、アクリル系モノマーと共重合しうるモノマーは、１種類を単独で、又は２種類以上を組合せて使用しうる。

[0029] 粘着性材料としては、市販の粘着剤をそのまま用いてもよい。当該市販の粘着剤には、溶媒及び添加剤などが含まれる場合もあるが、それをそのまま含んだ状態で、本発明の粘着剤組成物の材料として用いうる。アクリル系ポリマーを含む市販の接着剤の例としては、商品名「Ｘ－３１１０３３Ｓ」（サイデン化学株式会社製、溶媒：酢酸エチル、固形分含有割合３５％）を挙げることができる。

[0030] 本発明の粘着剤組成物における、粘着性材料の含有割合は、粘着剤組成物

全量に対する割合として、好ましくは１０重量％以上であり、より好ましくは２０重量％以上であり、一方好ましくは８０重量％以下であり、より好ましくは７０重量％以下である。

[0031] ［１．２．反応性修飾金属酸化物粒子］

反応性修飾金属酸化物粒子とは、金属酸化物と、その表面を修飾する、反応性官能基を有する有機物とを含む粒子をいう。より具体的には、反応性修飾金属酸化物は、金属酸化物の粒子と、当該粒子の表面を修飾する、反応性官能基を有する有機物とを含む被覆粒子である。

[0032] 反応性修飾金属酸化物において、反応性官能基は、金属酸化物と、水素結合等の相互作用を有した状態にあってもよいし、そのような状態になく別物質と相互作用できる状態にあってもよい。

[0033] 反応性官能基を有する有機物における反応性官能基の例としては、水酸基、リン酸基、カルボキシル基、アミノ基、アルコキシ基、イソシアネート基、酸ハライド、酸無水物、グリシジル基、クロロシラン基、及びアルコキシシラン基が挙げられる。反応性官能基を有する有機物としては特に、イソシアネート基を有する有機物が、金属酸化物と周囲の物質との安定性を向上させうるために好ましい。

イソシアネート基を有する有機物の例としては、アクリロキシメチルイソシアネート、メタクリロキシメチルイソシアネート、アクリロキシエチルイソシアネート、メタクリロキシエチルイソシアネート、アクリロキシプロピルイソシアネート、メタクリロキシプロピルイソシアネート、１，１－ビス（アクリロキシメチル）エチルイソシアネートが挙げられる。

[0034] 反応性修飾金属酸化物を構成する金属酸化物種の例としては、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム、酸化アンチモン、錫ドープ酸化インジウム（ＩＴＯ）、アンチモンドープ酸化錫（ＡＴＯ）、フッ素ドープ酸化錫（ＦＴＯ）、リンドープ酸化錫（ＰＴＯ）、アンチモン酸亜鉛（ＡＺＯ）、インジウムドープ酸化亜鉛（ＩＺＯ）、アルミニウムドープ酸化亜鉛、ガリウムドープ酸化亜鉛、酸化セリウム、酸化アルミニウム、及び酸化錫を挙げるこ

とができる。

[0035] 本発明に用いる反応性修飾金属酸化物粒子の粒子径は、体積平均粒子径として、１～５００ｎｍである。粒子径は、好ましくは３ｎｍ以上であり、より好ましくは５ｎｍ以上であり、一方好ましくは１００ｎｍ以下であり、より好ましくは５０ｎｍ以下である。粒子径を前記上限以下とすることにより、着色が少なく光透過率の高い粘着層を得ることができ、且つ、粒子の分散が容易となる。反応性修飾金属酸化物が凝集して二次粒子又はそれ以上の高次粒子を構成する場合、前記粒子径の範囲は、一次粒子径の範囲としうる。当該粒子径は、動的光散乱式粒度分布分析装置（日機装株式会社製 Ｎａｎｏｔｒａｃ Ｗａｖｅ－ＥＸ１５０）を用い、体積を粒子径基準にすることにより測定しうる。

[0036] 反応性修飾金属酸化物粒子において、反応性官能基を有する有機物の含有割合は、金属酸化物１００重量部に対して１～４０重量部としうる。

[0037] 本発明に係る反応性修飾金属酸化物粒子は、金属酸化物の粒子、反応性官能基を有する有機物、有機溶媒及び必要に応じて添加しうる任意の添加剤を、混合し、さらに得られた混合物に必要に応じて超音波処理等の処理を施すことにより、懸濁液として得うる。得られた懸濁液は、有機溶媒中に粒子が分散した状態のものとし得る。

有機溶媒の例としては、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、アセトン、シクロヘキサノン等のケトン類、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ｎ－ブタノール、ｉｓｏ－ブタノール等のアルコール類、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル等のエーテル類、酢酸エチル、酢酸ブチル、乳酸エチル、γ－ブチロラクトン、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート等のエステル類、ジメチルフォルムアミド、Ｎ，Ｎ

－ジメチルアセトアセトアミド、Ｎ－メチルピロリドン等のアミド類が挙げられる。有機溶剤としては、これらのうち１種類を単独でまたは２種類以上を混合して使用しうる。

当該混合物に添加しうる任意の添加剤の例としては、金属キレート剤を挙げることができる。

[0038] 反応性修飾金属酸化物粒子を、有機溶媒中に粒子が分散した懸濁液として得る場合、溶媒の量などの条件を調整し、当該懸濁液中に、反応性修飾金属酸化物粒子が１～５０重量％含まれる懸濁液を得ることが好ましい。このような懸濁液を、そのまま粘着剤組成物の製造に供することにより、簡便な製造を行いうる。

[0039] 前記混合物の調製に際し、ビーズミル等により、各成分を混合することが好ましい。かかる混合により、二次粒子又はそれ以上の高次粒子を一次粒子レベルに粉砕し、一次粒子の状態で表面を処理することができ、その結果均一な表面処理を行いうる。

[0040] 混合物に、必要に応じてさらに超音波処理を施すことができる。超音波処理は、超音波洗浄機、超音波ホモジナイザー、超音波分散機等の装置を用いて行いうる。かかる処理により、良好な懸濁液を得ることができる。

[0041] 反応性修飾金属酸化物粒子としては、市販の粒子をそのまま用いてもよい。当該市販の粒子は、溶媒及び添加剤等の成分を含むスラリーとして提供される場合もあるが、かかる成分をそのまま含んだスラリーの状態で、本発明の粘着剤組成物の材料として用いうる。金属酸化物としてZrO_2を含む反応性修飾金属酸化物粒子のスラリーの例としては、商品名「ＺＲ－０１０」（株式会社ソーラー製、溶媒：メチルエチルケトン、粒子含有割合３０％、表面を修飾する反応性官能基を有する有機物：重合性官能基を有するイソシアネート、体積平均粒子径１５ｎｍ）を挙げることができる。金属酸化物としてTiO_2を含む反応性修飾金属酸化物粒子のスラリーの例としては、商品名「ＮＯＤ－７４２ＧＴＦ」（ナガセケムテックス株式会社製、溶媒：ポリエチレングリコールモノメチルエーテル、粒子含有割合３０％、体積平均粒子

径４８ｎｍ）を挙げることができる。

[0042] 本発明の粘着剤組成物における、反応性修飾金属酸化物粒子の含有割合は、粘着剤組成物全量に対する割合として、好ましくは３０重量％以上であり、より好ましくは４０重量％以上であり、一方好ましくは８０重量％以下であり、より好ましくは７０重量％以下である。

[0043] ［１．３．有機系光拡散粒子］

有機系光拡散粒子を構成する有機系の材料の例としては、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、及びポリスチレン樹脂を挙げることができる。有機系光拡散粒子の体積平均粒子径は、好ましくは０．２μｍ以上であり、より好ましくは０．４μｍ以上であり、さらにより好ましくは０．５μｍ以上であり、一方好ましくは５μｍ以下であり、より好ましくは３μｍ以下である。

[0044] シリコーン樹脂を材料とする市販の有機系光拡散粒子の例としては、商品名「ＸＣ－９９」（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、体積平均粒子径０．７μｍ）を挙げることができる。アクリル樹脂を材料とする市販の有機系光拡散粒子の例としては、商品名「ＭＰシリーズ」（綜研化学株式会社製、体積平均粒子径０．８μｍ）を挙げることができる。ポリスチレン樹脂を材料とする市販の有機系光拡散粒子の例としては、商品名「ＳＸシリーズ」（綜研化学株式会社製、体積平均粒子径３．５μｍ）を挙げることができる。

[0045] 光拡散粒子としてこのような有機系光拡散粒子を用いることにより、本発明の粘着剤組成物は、高い光拡散能と高い屈折率とを有し、且つ、均質で、粘着力を安定して発現しうるよう製造しうるという顕著な効果を奏する。

即ち、反応性修飾金属酸化物粒子を多量に含有する粘着剤組成物は、高い屈折率を発現できるが、光拡散能が低い。そのため光拡散能を向上させるべく光拡散粒子を添加すると、粘着剤組成物の製造工程において光拡散粒子の沈降が発生しやすく、従って粘着力を安定して発現しうる粘着剤を製造することが困難となる。ここで、本発明者らの見出したところによれば、光拡散粒子として有機系のものを用いた場合、特に光拡散粒子の沈降を有効に抑制

しながら、高い光拡散能を得ることができる。従って、このような構成を採用することにより、高い光拡散能と高い屈折率とを有し、且つ、均質で、粘着力を安定して発現しうるよう製造しうるという顕著な効果を奏する。

[0046] 本発明の粘着剤組成物における、有機系光拡散粒子の含有割合は、粘着剤組成物全量に対する割合として、好ましくは０．５重量％以上であり、より好ましくは１重量％以上であり、一方好ましくは１５重量％以下であり、より好ましくは１０重量％以下である。

[0047] ［１．４．任意の成分］

本発明の粘着剤組成物は、粘着性材料、所定の反応性修飾金属酸化物粒子、及び有機系光拡散粒子に加えて、必要に応じて任意の成分を含有しうる。かかる任意の成分の例としては、シランカップリング剤、可塑剤、硬化剤、粘着付与剤、酸化防止剤、及び溶媒を挙げることができる。

[0048] ［１．４．１．シランカップリング剤］

シランカップリング剤の例としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ｐ－スチリルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－トリエトキシシリル－Ｎ－（１，３－ジメチル－ブチリデン）プロピルアミン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－ウレイドプロ

ピルトリエトキシシラン、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビス（トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィド、及び３－イソシアネートプロピルトリエトキシシランが挙げられる。シランカップリング剤としては、１種類を単独で使用しても良く、また２種類以上を混合して用いても良い。

市販のシランカップリング剤の例としては、商品名「ＫＢＭ－８０３」（信越化学工業株式会社製）を挙げることができる。

[0049] 本発明の粘着剤組成物がシランカップリング剤を含む場合、その含有割合は、粘着性材料１００重量部に対して、好ましくは０．０５重量部以上であり、より好ましくは０．２重量部以上であり、一方好ましくは５重量部以下であり、より好ましくは３重量部以下である。

[0050] ［１．４．２．可塑剤］

可塑剤は、粘着剤組成物の粘度を下げ、粘着性を保持するために用いうる。即ち、本発明の粘着剤組成物は、粒子、特に反応性修飾金属酸化物粒子を通常大量に含有することにより粘度が高くなり、その結果粘着性が低下しうる。このように粘着性が低下した場合、可塑剤を添加することにより、粘着性を保持することができる。その結果、高い屈折率と高い粘着性とを両立することが可能となる。

[0051] 可塑剤の例としては、ポリブテン、ビニルエーテル類、ポリエーテル（ポリアルキレンオキシドおよび官能化ポリアルキレンオキシドを含む）、エステル類、ポリオール（例えば、グリセリン）、石油樹脂、水添石油樹脂、及びスチレン系化合物（例えばα－メチルスチレン）が挙げられる。

中でも、粘着性材料との混和性が良好で且つ屈折率が比較的高いことから、エステル類、特に安息香酸系、フタル酸系などの芳香族環含有エステルを好適に用いることができる。

可塑剤に用いうる安息香酸エステルの例としては、ジエチレングリコールジベンゾエート、ジプロピレングリコールジベンゾエート、ベンジルベンゾエート、及び１，４－シクロヘキサンジメタノールジベンゾエートが挙げら

れ、特に好ましい安息香酸エステル系の可塑剤の例としては、ジプロピレングリコールジベンゾエート、及びベンジルベンゾエートが挙げられる。

可塑剤に用いうるフタル酸エステルの例としては、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ジシクロヘキシルフタレート、及びエチルフタリルエチルグリコレートが挙げらる。

市販の可塑剤の例としては、商品名「ＢＥＮＺＯＦＬＥＸ　９－８８ＳＧ」（イーストマン社製）を挙げることができる。

[0052] 本発明の粘着剤組成物が可塑剤を含む場合、その含有割合は、粘着性材料１００重量部に対して、好ましくは１重量部以上であり、より好ましくは５重量部以上であり、一方好ましくは３５重量部以下であり、より好ましくは３０重量部以下である。

[0053] ［１．４．３．硬化剤］

硬化剤の例としては、イソシアネート系の化合物を挙げることができ、より具体的には、ジイソシアン酸イソホロンを含むイソシアネートの付加重合体（例えば、商品名「ＮＹ－２６０Ａ」、三菱化学株式会社製）を挙げることができる。

[0054] 本発明の粘着剤組成物が硬化剤を含む場合、その含有割合は、粘着性材料１００重量部に対して、好ましくは０．０１重量部以上であり、より好ましくは０．０５重量部以上であり、一方好ましくは５重量部以下であり、より好ましくは１重量部以下である。

[0055] ［１．４．４．粘着付与剤］

粘着付与剤としては、例えば、石油系樹脂（例えば、流動パラフィン、脂環族飽和炭化水素樹脂）、テルペン樹脂、ロジン樹脂、クマロンインデン樹脂、スチレン系樹脂（例えば、スチレン樹脂、α－メチルスチレン）等が例示される。

[0056] 本発明の粘着剤組成物が、粘着付与剤を含む場合、その含有割合は、不揮発分（固形分）換算として、粘着性材料１００重量部に対して５０重量部以

下が好ましく、３０重量部以下とすることがより好ましい。粘着付与剤の下限量は特に限定されないが、通常は粘着性材料１００重量部に対して１重量部以上使用することが好ましい。

[0057] ［１．４．５．酸化防止剤］

酸化防止剤として、例えば、ヒンダードフェノール系、ホスファイト系等の酸化防止剤が例示される。本発明の粘着剤組成物が、酸化防止剤を含む場合、その含有量は、粘着性材料１００重量部に対して１０重量部以下であることが好ましく、０．１～１重量部であることが更に好ましい。

[0058] ［１．４．６．溶媒］

溶媒の例としては、反応性修飾金属酸化物粒子の製造に用いる有機溶媒の例と同様のものを挙げることができる。

[0059] 本発明の粘着剤組成物が溶媒を含む場合、その含有割合は、固形分全量１００重量部に対して、好ましくは５０重量部以上であり、より好ましくは１００重量部以上であり、一方好ましくは３００重量部以下であり、より好ましくは２５０重量部以下である。

[0060] 溶媒を用いる製造方法により製造した結果、又は市販のものを購入した結果、上に述べた粘着性材料、反応性修飾金属酸化物粒子、有機系光拡散粒子、及び任意の成分を、それらが溶媒中に溶解又は分散した溶液又は懸濁液として得ることがある。その場合、それらに含まれる溶媒もそのまま配合し、本発明の粘着剤組成物の成分としての溶媒の一部又は全部として用いてもよい。

[0061] ［１．５．製造方法］

本発明の粘着剤組成物の製造方法は、特に限定されず、上に述べた成分を適宜混合することにより得ることができる。

但し、混合の順序として、

（ｉ）反応性修飾金属酸化物粒子を含む懸濁液と、有機系光拡散粒子を含む懸濁液とをまず混合してこれらを含む懸濁液を調製し、

（ｉｉ）当該懸濁液にさらに粘着性材料、及び必要に応じて可塑剤を添加

して混練して混合物を得、

（ｉｉｉ）当該混合物にさらに反応性の任意成分（シランカップリング剤、硬化剤等）を添加して、粘着剤組成物を得る

ことが好ましい。当該順序で混合を行うことにより、反応性修飾金属酸化物粒子と有機系光拡散粒子とが良好に混和した粘着剤組成物を、容易に製造することができる。また、当該順序で行う混合の任意の段階で、必要に応じてさらに溶媒を添加して、粘度の調整等の操作を行うことができる。

[0062] 前記工程（ｉ）における混合の操作は、ボールミルを用いて行い、これにより反応性修飾金属酸化物粒子及び有機系光拡散粒子を分散させることが好ましい。具体的には、適切な容器に、反応性修飾金属酸化物粒子を含む懸濁液、有機系光拡散粒子を含む懸濁液、及び分散用のボールを入れ、これをボールミル架台に載せ、回転させることにより行うことができる。

[0063] ［２．粘着層］

本発明の粘着層は、前記本発明の光学部材用粘着剤組成物により形成されてなる。例えば、ある光学部材の表面に粘着剤組成物を塗布し、必要に応じて硬化のための操作（乾燥など）を行うことにより形成することができる。さらに必要に応じてエージングを行い、粘着層中の成分を安定化させ、粘着力の安定化、均一化を行うこともできる。エージングは３５℃以上に加熱した条件下で１日以上行うことが好ましい。エージングの温度の上限は、例えば８０℃以下としうる。エージングの日数の上限は、例えば１５日以下としうる。かかる硬化の操作の前又は後に、粘着剤組成物の層に、別の光学部材を接触させ、２つの光学部材間の層として本発明の粘着層を設け、これにより、かかる２つの光学部材の結合を達成することができる。

[0064] 本発明の粘着層は、前記本発明の光学部材用粘着剤組成物中に含まれていた成分を含みうるが、成分の一部が反応により変化していてもよく、また、成分の一部が揮発して消失していてもよい。例えば、乾燥の工程により、シランカップリング剤、硬化剤等の反応性の成分が反応して他の物質となっていてもよく、また溶媒が揮発して消失していてもよい。

[0065] 本発明の粘着層の形状は、特に限定されず、光学部材の結合を達成するのに適切な任意の形状としうる。典型的な例において、本発明の粘着層は、平坦な２つの光学部材面間に存在する平坦な層としうる。または、光学部材面に凹凸構造が存在する場合は、かかる凹凸構造に対応した凹凸構造を有する層であってもよい。

[0066] 本発明の粘着層の厚さは、特に限定されないが、好ましくは３μｍ以上であり、より好ましくは５μｍ以上であり、一方好ましくは５０μｍ以下であり、より好ましくは３０μｍ以下である。

[0067] 本発明の粘着層は、高い屈折率を有するものとしうる。例えば、好ましくは１．５５以上、より好ましくは１．６０以上の屈折率を有し得る。屈折率の上限は、例えば１．７５以下としうる。屈折率の測定は、エリプソメーター（ジェー・エー・ウーラム・ジャパン株式会社製　Ｍ－２０００）により行いうる。

[0068] 本発明の粘着層は、高い光拡散能を有するため、その屈折率の測定が困難である場合がある。そのときは、有機系光拡散粒子を添加しない他は測定対象の粘着層と同様にして、屈折率測定用のサンプルを作製し、当該サンプルの屈折率を測定することにより、屈折率を測定しうる。一般的に、光拡散粒子は、少量添加するだけで光拡散能を大きく変化させるが、当該少量の添加では、屈折率は殆ど変化しないので、光拡散粒子を添加しないサンプルによって、本発明の粘着層とほぼ同じ屈折率の値を測定することができる。

[0069] 本発明の粘着層はまた、高い光拡散能を有するものとしうる。例えば、ヘイズが、好ましくは３０％以上、より好ましくは５０％以上とし得る。以上のような高い屈折率及び光拡散能を有することにより、光学部材に、高い光取出し効率等の所望の性能を付与することが可能となる。ヘイズの上限は、例えば９８％以下としうる。

[0070] ［３．用途］

本発明の粘着組成物は、光学部材用の粘着組成物であり、本発明の粘着層は、光学部材用の粘着層である。かかる光学部材の好ましい例としては、光

取出しフィルムを挙げることができる。光取出しフィルムとは、有機ＥＬ素子を含む面光源装置の構成要素として、有機ＥＬ素子の出光面に設けられるフィルムである。かかる光取出しフィルムを、本発明の粘着層を介して、面光源装置の他の部材と結合させることにより、光取出し効率を有利に高めることができる。

[0071] ［４．面光源装置］

本発明の面光源装置は、発光層を含む有機ＥＬ素子と、有機ＥＬ素子よりも出光面に近い側に位置する透光性基材と、透光性基材の、有機ＥＬ素子と反対側の面に接して設けられた光拡散層とを備える。

[0072] ［４．１．第一実施形態］

図１は、本発明の面光源装置の一例としての第一実施形態を模式的に示す断面図である。図１において、面光源装置１００は、その出光面１１１Ｕを水平に上側に向けて載置した状態で図示される。出光面１１１Ｕは、面光源装置全体としての出光面であり、即ち、装置内部で発生した光は、当該面１１１Ｕから、装置外部に出光する。以下においては、面光源装置全体としての出光面を、単に「装置出光面」ということがある。

[0073] 面光源装置１００は、透光性基材１３１と、透光性基材１３１の下側の面１３１Ｄ上に設けられた有機ＥＬ素子１４０と、有機ＥＬ素子１４０の下側の面１４３Ｄ上に設けられた封止基板１５１とを備える。面光源装置１００はさらに、透光性基材１３１の、有機ＥＬ素子１４０と反対側の面、即ち上側の面１３１Ｕ上に設けられた光拡散層１１２と、光拡散層１１２の上側の面１１２Ｕ上に設けられたフィルム１１１とを備える。この例においては、フィルム１１１が、装置の最上面、即ち装置出光面に最も近く位置し、フィルム１１１の上面１１１Ｕが装置出光面を構成している。

[0074] 有機ＥＬ素子１４０は、第一の電極層１４１、第二の電極層１４３、及びこれらの間に位置する発光層１４２を含んでいる。第一実施形態においては、第一の電極層１４１として透明電極層を用い、第二の電極層１４３として反射電極層を用いることにより、出光面側への出光を達成しうる。

[0075] ［４．１．１．光拡散層］

本発明において、光拡散層は、透光性樹脂と光拡散粒子とを含む。

[0076] ［４．１．１．１．透光性樹脂］

透光性樹脂は、透光性を有する層を形成しうる任意の樹脂としうるが、透光性に加えて、粘着性のある樹脂（以下において、「粘着性材料」ということがある。）を用い、光拡散層を拡散粘着層とすることが、面光源装置の製造の容易さの観点から好ましい。また、光拡散層を拡散粘着層とすることにより、別途粘着層を形成する必要が無く、その結果装置の薄型化や光取り出し効率の向上を達成し得る。

[0077] 拡散粘着層とは、光拡散層としての機能を有し、且つ隣接する層を粘着しうる層である。粘着性材料としては、光学材料用の粘着剤として用いられる樹脂を適宜用いうる。ここでいう粘着剤としては、狭義の粘着剤（２３℃における剪断貯蔵弾性率が１ＭＰａ未満であり、常温で粘着性を示す粘着剤）のみならず、２３℃における剪断貯蔵弾性率が１～５００ＭＰａであり、常温で粘着性を示さない、いわゆるホットメルト型の接着剤をも包含する。拡散粘着層を形成する好適な材料として、前記の粘着性材料を例示することができる。

[0078] ［４．１．１．２．光拡散粒子］

光拡散粒子は、光拡散層に入射した光を散乱させうる粒子であり、光拡散層に、所望の散乱異方性係数ｇ等の性質を付与しうる粒子を適宜選択することができる。

[0079] 光拡散粒子の粒径は、光拡散層に所望の散乱異方性係数ｇ等の性質を付与しうる範囲で選択し得るが、具体的には例えば、体積平均粒子径として、好ましくは０．２μｍ以上であり、より好ましくは０．４μｍ以上であり、さらにより好ましくは０．５μｍ以上であり、一方好ましくは５μｍ以下であり、より好ましくは３μｍ以下である。

[0080] 光拡散粒子の屈折率は、光拡散層に所望の散乱異方性係数ｇ等の性質を付与しうる範囲で選択し得るが、具体的には例えば、１．４～１．５５である

ことが好ましい。光拡散粒子の好適な例として、前記の有機系光拡散粒子を例示することができる。

[0081] ［４．１．１．３．光拡散層のその他の成分］

光拡散層は、透光性樹脂と光拡散粒子に加えて、任意の材料を含みうる。かかる任意の材料としては、反応性修飾金属酸化物粒子、可塑剤、シランカップリング剤、硬化剤、粘着付与剤、酸化防止剤等の材料が挙げられ、具体例としては前記のものが例示できる。

[0082] ［４．１．１．４．光拡散層の性質］

光拡散層は、その散乱異方性係数ｇが０．８３以上０．９７以下である。ｇ値の上限は、好ましくは０．９６７５以下、より好ましくは０．９６５以下である。ｇ値の下限は、好ましくは０．８３２５以上、より好ましくは０．８３５以上である。

ｇ値を前記上限以下の小さい値とすることにより、観察角度による色味の変化を低減することができる。但し、ｇ値が過度に小さいと光取り出し効率は低下するため、ｇ値を前記範囲の値とすることにより、光取り出し効率を高めることができ、且つ色味の変化を低減することができる。散乱異方性係数ｇの値は、Ｍｉｅ散乱理論から導かれる散乱位相関数を用いて算出しうる。このような散乱異方性係数ｇを有する光拡散層は、光拡散粒子の屈折率、光拡散層の光拡散粒子以外の部分の屈折率、光拡散粒子の粒径、及び光拡散粒子の含有量を適宜選択することにより所望の範囲に調節しうる。

[0083] 光拡散層の屈折率と、透光性基材との屈折率差は、０．１以下であり、好ましくは０．０８以下である。屈折率差の下限は、理想的にはゼロである。屈折率差をかかる範囲とすることにより、光取り出し効率を高めることができ、特に光拡散層として上記所定の範囲のｇ値を有する層を用いることにより、光取り出し効率の高さと、観察角度による出光面の色味の変化の低さとを両立しうる。

[0084] 光拡散層の屈折率は、特に限定されないが、透光性基材と近い屈折率の構成を容易に構成する観点から、１．４２～１．６５であることが好ましく、

１．４８～１．６２であることがより好ましい。光拡散層の屈折率は、エリプソメーター（例えばジェー・エー・ウーラム・ジャパン株式会社製　Ｍ－２０００）によって測定しうる。光拡散層の屈折率は、光拡散粒子を含有することにより測定することが困難である場合がある。通常光拡散層に添加する光拡散粒子の量はわずかであり、従って光拡散粒子を含有する場合と含有しない場合とでの光拡散層の屈折率の変化はごくわずかである。従って、光拡散層の屈折率を測定することが困難である場合は、光拡散粒子を添加しない他は光拡散層の調製方法と同一の操作により、測定用の層を別途調製し、その屈折率を測定して光拡散層の屈折率としうる。

[0085] 光拡散層の厚さは、３～２５μｍの範囲であることが拡散層の形成し易さと性能の点から好ましい。これよりも薄いと、拡散粒子含有量が極端に多くする必要があり、拡散層を形成するのが難しくなりうる。また厚すぎると、取り出し効率が低下しうる。

[0086] ［４．１．１．５．光拡散層の形成方法］

光拡散層の形成方法は、特に限定されないが、光拡散層形成用の溶液を調製し、これを適切な部材の上に塗布して塗膜を形成し、さらにこれを必要に応じて乾燥させることにより、光拡散層を形成しうる。光拡散層形成用の溶液は、上に述べた透光性樹脂及び光拡散粒子、必要に応じて反応性修飾金属酸化物粒子等の任意の材料、並びに必要に応じて溶媒を混合して調製しうる。当該溶媒は、特に限定されず、任意の水及び有機溶媒を適宜選択して用いうる。また、透光性樹脂、光拡散粒子、反応性修飾金属酸化物粒子等の材料として、固形分及び溶媒を含む市販の材料を用いた場合、当該材料に含まれる溶媒をそのまま、光拡散層形成用の溶液の溶媒として用いうる。

光拡散層形成用の溶液の好適な例として、前記の光学部材用粘着剤組成物を例示することができる。

[0087] ［４．１．２．透光性基材］

透光性基材は、有機ＥＬ素子を支持する層である。また、透光性基材として、有機ＥＬ素子を封止する性能に優れて、且つ、製造工程において有機Ｅ

Ｌ素子を構成する層をその上に順次形成することを容易に行い得る基板を備えることにより、面光源装置の耐久性を向上させ、且つ製造を容易にすることができる。

[0088] 透光性基材を構成する材料としては、透光性のある材料を適宜選択しうる。かかる材料の例としては、ガラス及び樹脂が挙げられる。なお、透光性基材の材料は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

透光性基材を構成する材料の屈折率は、特に制限されないが、１．４～２．０とすることが好ましい。透光性基材の厚さは、特に限定されないが、０．０２ｍｍ～５ｍｍであることが好ましい。

[0089] 本発明において、透光性基材が「透光性」であるとは、面光源装置の材料に用いるのに適した程度の光線透過率を有する意味である。本発明においては、面光源装置を構成する各層のうち、光を透過するよう設計される層が、光学部材に用いるのに適した光線透過率を有するものとすることができ、例えば基材から装置出光面までの全体（透光性基材及び光拡散層を含む）として５０％以上の全光線透過率を有するものとすることができる。

[0090] ［４．１．３．有機ＥＬ素子］

有機ＥＬ素子は、発光層を含む。有機ＥＬ素子は、例えば有機ＥＬ素子１４０として例示するように、通常、２層以上の電極層と、これらの電極層間に設けられ、電極層から電圧を印加されることにより発光する発光層とを備える。

[0091] 有機ＥＬ素子は、透光性基材上に有機ＥＬ素子を構成する電極層、発光層等の層を、スパッタリング等の既知の方法で順次形成することにより形成しうる。さらには、それらの層を覆う封止部材を設け、透光性基材と封止部材で発光層等の層を封止した構成とされるのが一般的である。

[0092] 前記発光層としては、特に限定されず既知のものを適宜選択してもよい。発光層中の発光材料は１種類に限らず、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。また、発光層は１層に限らず、光源としての用途に適合

すべく、一種の層単独又は複数種類の層の組み合わせとしてもよい。これにより、白色又はそれに近い色の光を発光するものとし得る。

[0093] 有機ＥＬ素子を構成する電極層は、その少なくとも一方が、透光性の材料により形成されている透明電極層である。透明電極層の材料は１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。さらに透明電極層は１層のみを備える単層構造の層であってもよく、２層以上の層を備える複層構造の層であってもよい。図１に示す第一実施形態においては、第一の電極層１４１は透明電極層であり、第二の電極層１４３は反射電極層である。

[0094] 有機ＥＬ素子１４０は、第一の電極層１４１と第二の電極層１４３との間に、発光層１４２に加えて、例えばホール注入層、ホール輸送層、電子輸送層及び電子注入層等の他の層（図示せず。）をさらに有していてもよい。また、有機ＥＬ素子１４０はさらに、第一の電極層１４１及び第二の電極層１４３に通電するための配線、発光層１４２の封止のための周辺構造等の任意の構成要素を備えていてもよい。

[0095] 電極層及びその間に設ける層を構成する材料としては、特に限定されないが、具体例として下記のものを挙げることができる。

電極層の材料としてはＩＴＯ（酸化インジウムスズ）、アルミニウム、銀等の層を挙げることができる。

正孔注入層の材料としてはスターバースト系芳香族ジアミン化合物等を挙げることができる。

正孔輸送層の材料としてはトリフェニルジアミン誘導体等を挙げることができる。

黄色発光層のホスト材料としてはトリフェニルジアミン誘導体等を挙げることができ、黄色発光層のドーパント材料としてはテトラセン誘導体等を挙げることができる。

緑色発光層の材料としてはピラゾリン誘導体等を挙げることができる。

青色発光層のホスト材料としてはアントラセン誘導体等を挙げることがで

き、青色発光層のドーパント材料としてはペリレン誘導体等を挙げることができる。

赤色発光層の材料としてはユーロピウム錯体等を挙げることができる。

電子輸送層の材料としてはアルミニウムキノリン錯体（Ａｌｑ）等を挙げることができる。

[0096] 上記のもの又はその他の発光層を適宜組み合わせて積層型又はタンデム型と呼ばれる、補色関係にある色の光を発生する発光層としてもよい。補色関係の組み合わせは、例えば、黄／青、又は緑／青／赤等としてもよい。

[0097] ［４．１．４．その他の構成要素］

本発明の面光源装置は、有機ＥＬ素子、透光性基材及び光拡散層に加えて、任意の構成要素を含みうる。例えば、第一実施形態の面光源装置１００のフィルム１１１のように、光拡散層よりも装置出光面に近い位置に、装置出光面を構成する層を備えうる。また例えば、第一実施形態の封止基板１５１のように、有機ＥＬ素子の、透光性基材とは反対側の面を封止する基板を有していてもよい。

[0098] ［４．１．５．面光源装置の製造方法］

本発明の面光源装置の製造方法は、特に限定されず、装置を構成する各層を適切な順序で形成することにより製造を行いうる。例えば、透光性基材と有機ＥＬ素子とを含む複層体、及び装置出光面を規定する部材（例えば図１のフィルム１１１）と拡散粘着層の材料の層とを含む複層体とを形成し、これらを、拡散粘着層の粘着性を利用して貼合し、（有機ＥＬ素子）／（透光性基材）／（光拡散層）／（フィルム）といった層構成を有する複層体を形成し、これに必要に応じてさらに封止部材等の任意の構成要素を設け、面光源装置を製造することができる。

[0099] ［４．１．６．面光源装置の性能］

本発明の面光源装置は、光取り出し効率が高く且つ観察角度の変化による色味の変化が少ないという効果を奏する。

[0100] 光取り出し効率は、光拡散層を有する本発明の面光源装置と、光拡散層を

有しない他は同様の構造を有する対照の面光源装置とを対比し、式Ｑ＝（本発明の面光源装置の光取り出し量）／（対照の面光源装置の光取り出し量）で得られる光取り出し効率Ｑを求め、当該値を元に評価しうる。対照の面光源装置は、光拡散層の有無のみにおいて本発明の面光源装置と異なっているものを用いうるが、光取り出し効率に大きく影響しない他の構成においても異なっているものであってもよい。例えば、図１に示す第一実施形態の面光源装置の光取り出し効率Ｑを求めるための対照の面光源装置は、光拡散層１１２に加えてフィルム１１１を有しない装置であってもよい。

[0101] 観察角度の変化による色味の変化は、例えば、極角０°～６０°までの各角度θにおける色度座標（ｘ，ｙ）の値ｘθ及びｙθ、並びに極角０°における色度座標（ｘ，ｙ）の値ｘ０及びｙ０から、（ｘθ－ｘ０）２＋（ｙθ－ｙ０）２の平方根を算出し、さらにその最大値を求めた値Δｘｙにより評価しうる。

[0102] さらに、光取り出し効率Ｑ及びΔｘｙの値を元に、式Ｑ×（１－Δｘｙ）により求められる値を、光取り出し効率が高く且つ観察角度の変化による色味の変化が少ないという本発明の効果の指標としうる。特に、この数値が１以上であれば、取り出し効率が高く且つ色味の変化が少ない、バランスのとれた面光源装置と評価し得る。

[0103] ［４．２．第二実施形態］

本発明の面光源装置の装置出光面の形状は、特に限定されず、上に述べた第一実施形態に示されるような平坦な面の形状であってもよいが、以下に述べる第二実施形態に示されるような凹凸構造を有する面の形状であってもよい。

[0104] 図２は、本発明の面光源装置の別の一例としての第二実施形態を模式的に示す斜視図である。図２において、面光源装置２００は、図１の面光源装置１００と同様、その装置出光面を水平に上側に向けて載置した状態で図示される。

[0105] 面光源装置２００は、光拡散層１１２の上側の面１１２Ｕ上に、フィルム

１１１ではなく、出光面構造層１２０を有する点において面光源装置１００と異なっており、その他の構成要素は面光源装置１００と共通している。

[0106] ［４．２．１．出光面構造層］

第二実施形態の面光源装置２００が有する出光面構造層１２０は、出光面基材１２１及び凹凸構造層１２２を含む。本発明の面光源装置が出光面構造層を有する場合、かかる層は一つの層からなっていてもよく、本実施形態における出光面構造層１２０のように複数の層からなっていてもよい。製造の容易さの観点からは、出光面構造層は複数の層からなることが好ましい。

[0107] ［４．２．１．１．出光面基材］

出光面基材１２１を構成する材料は、上に述べた透光性基材の材料と同一であってもよく異なっていてもよい。かかる材料の例としては、ガラス及び各種の樹脂が挙げられる。樹脂の例としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、紫外線硬化性樹脂、および電子線硬化性樹脂を挙げることができ、この中でも加工が容易である点で熱可塑性樹脂が好ましい。熱可塑性樹脂としては、ポリエステル系、ポリアクリレート系、およびシクロオレフィンポリマー系の樹脂を挙げることができる。出光面基材は、単層のものに限らず、複数の層を積層したものでもよい。

[0108] 出光面基材の厚さは、例えば樹脂からなるものであれば２０～３００μｍであることが好ましい。出光面基材がガラスの場合、その厚さは１０～１１００μｍであることが好ましい。

[0109] ［４．２．１．２．凹凸構造層］

凹凸構造層１２２は、その上面即ち装置出光面１２２Ｕに、複数の凹部１２３と、凹部１２３の周囲に位置する平坦部１２４とを含む凹凸構造を有する。当該凹凸構造により、面光源装置２００の装置出光面１２２Ｕが規定される。装置出光面１２２Ｕは、凹部１２３を無視して巨視的に見ると、平坦部１２４、及び面光源装置中の他の層と平行な平面であるが、微視的には凹部１２３により規定される斜面を含む凹凸面である。なお、本願において、図面は模式的な図示であるため、装置出光面１２２Ｕ上には僅かな個数の凹

部のみを示しているが、実際の装置においては、一枚の出光面構造層表面上に、これよりも遥かに多い数の凹部を設けることができる。

[0110] 凹凸構造層の材料の例としては、各種の樹脂が挙げられる。かかる樹脂としては、例えば、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、並びに紫外線硬化性樹脂及び電子線硬化性樹脂等のエネルギー線硬化性樹脂を挙げることができる。なかでも熱可塑性樹脂は熱による変形が容易であるため、また紫外線硬化性樹脂は硬化性が高く効率が良いため、凹凸構造を有する光拡散層層の効率的な形成が可能となり、それぞれ好ましい。熱可塑性樹脂としては、ポリエステル系、ポリアクリレート系、シクロオレフィンポリマー系の樹脂を挙げることができる。また紫外線硬化性樹脂としては、エポキシ系、アクリル系、ウレタン系、エン／チオール系、イソシアネート系の樹脂を挙げることができる。これらの樹脂としては、複数個の重合性官能基を有するものを好ましく用いることができる。

[0111] 凹凸構造層の材料としては、凹凸構造を形成しやすく且つ凹凸構造の耐擦傷性を得やすいという観点から、硬化時の硬度が高い材料が好ましい。具体的には、７μｍの膜厚の層を基材上に凹凸構造が無い状態で形成した際に、鉛筆硬度でＨＢ以上になるような材料が好ましく、Ｈ以上になる材料がさらに好ましく、２Ｈ以上になる材料がより好ましい。一方、出光面基材の材料としては、凹凸構造層の形成に際しての、及び／又は出光面構造層を成形した後の取り扱いを容易とするために、ある程度の柔軟性があるものが好ましい。このような材料を組み合わせることにより、取り扱いが容易で且つ耐久性に優れる出光面構造層を得ることができる。このような材料の組み合わせは、それぞれの材料を構成する樹脂として、上に例示した樹脂を適宜選択することにより得ることができる。具体的には、凹凸構造層の材料を構成する樹脂として、アクリレート等の紫外線硬化性樹脂を用い、一方出光面基材の材料を構成する樹脂として、脂環式オレフィンポリマー製のフィルムや、ポリエステルフィルムを用いることができ、これにより、好ましい材料の組み合わせを得ることができる。

[0112] 凹凸構造層は、凹凸構造による光拡散性に加えて、その材料自体による光拡散性を有していてもよい。そのような凹凸構造層は、光拡散性のある樹脂組成物を材料として形成しうる。光拡散性のある樹脂組成物は、具体的には、各種樹脂と、拡散子とを含む組成物としうる。

凹凸構造層が含有しうる拡散子としては、各種の粒子を挙げることができる。当該粒子は、透明であっても、不透明であってもよい。粒子の材料としては、金属及び金属化合物、並びに樹脂等を用いることができる。金属化合物としては、金属の酸化物及び窒化物を挙げることができる。金属及び金属化合物としては、具体的には例えば銀、アルミのような反射率が高い金属、酸化ケイ素、酸化アルミ、酸化ジルコニウム、窒化珪素、錫添加酸化インジウム、酸化チタンなどの金属化合物を挙げることができる。一方光拡散性のある樹脂組成物が含有する樹脂の例としては、上に述べたものと同様のものを挙げうるが、特に、メタクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコーン樹脂等を好ましく挙げうる。

[0113] 粒子の形状は、球状、円柱状、立方体状、直方体状、角錐状、円錐状、星型状等の形状とすることができる。

粒子の粒径は好ましくは０．１μｍ以上１０μｍ以下であり、より好ましくは５μｍ以下である。ここで粒径とは、体積基準の粒子量を、粒子径を横軸にして積算した積算分布における５０％粒子径のことである。粒径が大きいほど、所望の効果を得るために必要な粒子の含有割合は多くなり、粒径が小さいほど、含有量は少なくてすむ。従って、粒径が小さいほど、観察角度による色味の変化の低減、及び光取り出し効率の向上等の所望の効果を、少ない粒子で得ることができる。なお、粒径は、粒子の形状が球状以外である場合には、その同等体積の球の直径を粒径とする。

[0114] 粒子が透明な粒子であり、且つ粒子が樹脂中に含まれる場合において、粒子の屈折率と、樹脂の屈折率は、それらの差が０．０５～０．５であることが好ましく、０．０７～０．５であることがより好ましい。ここで、粒子及び樹脂の屈折率は、どちらがより大きくても良い。粒子と樹脂の屈折率が近

すぎると拡散効果が得られず色味ムラは抑制されず、逆に差が大きすぎると拡散が大きくなり色味ムラは抑制されるが光取出効果が低減することになる。

[0115] 凹凸構造層が樹脂と拡散子とを含む場合における、樹脂組成物中の拡散子の配合割合は、３～５０％であることが好ましい。

[0116] 凹凸構造層の厚さは、その下限が１μｍ以上であることが好ましく、５μｍ以上であることがより好ましく、また、１０μｍ以上とすることができ、一方、その上限が５０μｍ以下であることが好ましく、２５μｍ以下であることがより好ましく、また、１５μｍ以下とすることができる。特に、前記上限以下の厚さであることにより、硬化収縮による凹凸構造層のカール等の変形を防ぎ、良好な形状の凹凸構造層とすることができる。

[0117] 凹凸構造層の規定する装置出光面の具体的な構造の好ましい例としては、図２に示す第二実施形態に係る凹凸構造層１２２の上面１２２Ｕのように、四角錐型の窪みである凹部１２３と、凹部１２３の周囲に位置する平坦部１２４とを含む構造が挙げられる。

[0118] 凹凸構造を、出光面構造層に垂直な方向から観察した場合における、平坦部が占める面積と凹部が占める面積との合計に対する、平坦部が占める面積の割合（以下、「平坦部割合」という。）を適宜調節することにより、面光源装置の光取り出し効率を向上させることができる。具体的には、平坦部割合を１０～７５％とすることにより、良好な光取り出し効率を得ることができ、且つ装置出光面の機械的強度を高めることができる。

[0119] 凹凸構造層がその表面に凹凸構造を有する場合において、凹部は、例えば、上に述べた角錐形状に加え、円錐形状、球面の一部の形状、溝状の形状、及びこれらを組み合わせた形状を有しうる。角錐形状は、前記凹部１２３として例示した底面が正方形である四角錐としうるが、これに限られず、三角錐、五角錐、六角錐、底面が正方形でない四角錐などの角錐形状とすることもできる。さらに、本願でいう円錐及び角錐は、その頂部が尖った通常の円錐及び角錐のみならず、先端が丸みを帯びた形状、又は平らに面取りされた

形状（錐台状の形状等）をも包含しうる。

[0120] 凹凸構造における凹部の深さは、特に限定されないが、凹凸構造が形成された表面を様々な方向（出光面と平行な面内の様々な方向）に沿って測定した中心線平均粗さの最大値（Ｒａ（ｍａｘ））として、１～５０μｍの範囲内とすることができる。凹凸構造を凹凸構造層上に形成する場合は、凹凸構造層の厚さに対して相対的に、好ましい凹部の深さを定めることができる。例えば、凹凸構造層の材料として、凹凸構造層の耐久性の維持に有利な硬質の材料を用いた場合、凹凸構造層の厚さを薄くしたほうが、出光面構造層の可撓性を高めることが可能となり、面光源装置の製造工程における出光面構造層の取り扱いが容易となる。

[0121] 凹部の斜面と、出光面とがなす角は４０～７０°であることが好ましく、４５～６０°であることがより好ましい。凹凸構造層の表面において、複数の凹部は、任意の態様で配列することができる。例えば、複数の凹部を、表面上の２以上の方向に沿って配列することができる。より具体的には、図１に示した凹部１２３のように、出光面上の直交する２方向に沿って配列することができる。２以上の方向に凹部を配列した場合において、それらのうち１方向以上の方向に、隣り合う凹部間の隙間を設け、かかる隙間により平坦部を構成することができる。このような構成を採用することにより、良好な光取り出し効率と、シート表面の機械的強度とを両立させることができる。

[0122] ［４．２．１．３．出光面構造層の形成方法］

出光面構造層の形成方法は、特に限定されず、既知の方法により行いうる。例えば、出光面基材の一方の面上に、上に述べた凹凸構造層の材料を用いて、フォトポリマー法（２Ｐ法）により凹凸構造層を設けることにより、出光面構造層を形成し得る。

[0123] ［４．３．面光源装置の用途］

本発明の面光源装置は、照明器具及びバックライト装置等の用途に用いうる。

前記照明器具は、本発明の面光源装置を光源として有し、さらに、光源を

保持する部材、電力を供給する回路等の任意の構成要素を含むことができる。前記バックライト装置は、本発明の面光源装置を光源として有し、さらに、筐体、電力を供給する回路、出光する光をさらに均一にするための拡散板、拡散シート、プリズムシート等の任意の構成要素を含むことができる。前記バックライト装置の用途は、液晶表示装置等、画素を制御して画像を表示させる表示装置、並びに看板等の固定された画像を表示させる表示装置のバックライトとして用いることができる。

[0124] ［４．４．その他］

本発明は、前記具体例には限定されず、本願の特許請求の範囲及びその均等の範囲内で、任意の変更を施すことができる。

例えば、本発明の面光源装置に関して、上記具体例中の反射電極層を、透明電極層と反射層に置き換えても、反射電極層と同様の効果を有する装置を構成することができる。

また例えば、上記具体例中の反射電極層を透明電極層に置き換え、さらに、封止基板として透光性基材と同様の材料を用いることにより、両面発光し、装置を通して向こう側を見通せるシースルー型の面光源装置を構成することができる。その場合、光拡散層を、封止基板よりも下側に設けて、両面において光取り出し効率の向上及び出光面の色味の変化の低減を達成しうる。

実施例

[0125] 以下、実施例及び比較例を参照して、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は下記実施例に限定されるものではない。以下において、成分の量比に関する「部」及び「％」は、別に断らない限り重量部を表す。

[0126] （実施例１）

（１－１：粘着剤組成物の調製）

プラスチック容器に、反応性修飾ジルコニア酸化物スラリー（株式会社ソーラー製、商品名「ＺＲ－０１０」、溶媒：メチルエチルケトン、粒子含有割合３０％、表面を修飾する反応性官能基を有する有機物：重合性官能基を有するイソシアネート、体積平均粒子径１５ｎｍ）１８８重量部、シリコー

ン粒子（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「ＸＣ－９９」）３．３重量部、及び分散用のジルコニアボール（ニッカトー製、商品名「ＹＴＺ－０．５」）５６４重量部を入れてボールミル架台に載せ、毎秒２回転の速度で３０分間ボールミル分散を行った。ジルコニアボールを、ボールミル分散後ふるいを通して取り除き、混合物１を得た。

[0127] 得られた混合物１を、ガラス瓶に入れて２時間静置した後、拡散粒子の沈殿物があるか否かを、目視にて評価した。その結果、沈殿物は観察されなかった。

[0128] 混合物１に、アクリル系粘着剤（サイデン化学株式会社製、商品名「Ｘ－３１１０３３Ｓ」、固形分３５％）１００重量部、及び可塑剤（イーストマン社製、商品名「ＢＥＮＺＯＦＬＥＸ　９－８８ＳＧ」、ジエチレングリコールジベンゾアート）５重量部を加え１５分攪拌した。続いてシランカップリング剤（信越化学工業株式会社製、商品名「ＫＢＭ－８０３」、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン）１重量部、及び硬化剤（三菱化学株式会社製、商品名「ＮＹ－２６０Ａ」）０．６重量部を加えて１５分攪拌し、粘着剤組成物を得た。

[0129] （１－２：粘着層の形成）

工程（１－１）で得られた粘着剤組成物を、１００μｍ厚みのポリエチレンテレフタラートフィルム（東レ製、商品名「Ｕ３４」）の片面に、乾燥後の厚みが２０μｍとなるように塗布し、８０℃で５分乾燥させて粘着層を形成し、粘着層を有する粘着シートを作製した。

[0130] （１－３：ピール強度の測定）

工程（１－２）で得られた粘着シートを幅１０ｍｍ、長さ１００ｍｍに切り出し、ローラを用いてガラス板に貼合した。貼合から２４時間経過後、ピール試験機を用いて、速度２０ｍｍ／分、９０°の条件で、長さ方向のピール強度を測定した。結果を表２に示す。

[0131] （１－４：屈折率の測定）

シリコーン粒子を加えなかった他は、（１－１）と同様に操作して、シリ

コーン粒子非含有粘着剤組成物を得た。

ガラス板の片面に、乾燥後の厚みが１０μｍとなるように、このシリコーン粒子非含有粘着剤組成物を塗布し、８０℃で５分乾燥させて、粘着層を形成した。この粘着層の屈折率を、エリプソメーター（ジェー・エー・ウーラム・ジャパン株式会社製　Ｍ－２０００）にて測定した。結果を表２に示す。

[0132] （実施例２～１０）

使用した材料の種類及び量を、表１に示す通り変更した他は、実施例１と同様に操作し、混合物１、粘着剤組成物、粘着層を有する粘着シート、及び粒子非含有粘着剤組成物を得て評価した。結果を表２に示す。混合物１の目視での評価においては、実施例２～１０のいずれにおいても、沈殿物は観察されなかった。

[0133] （比較例１～３）

使用した材料の種類及び量を、表１に示す通り変更した他は、実施例１と同様に操作し、混合物１、粘着剤組成物、及び粘着層を有する粘着シートを作製し評価することを試みた。混合物１の目視での評価においては、比較例１～３のいずれにおいても、拡散剤粒子の沈降が観察された。混合物１を用いて粘着剤組成物及び粘着シートを作製しようとしたが、均一な混合を達成することができず、ピール強度が有効に測定し得る組成物を得ることができなかった。

[0134]

[表1]

表１

	Zr02スラリー	Ti02スラリー	シリコーン粒子	アクリル粒子	ポリスチレン粒子	シリカ粒子	タルク粒子	粘着剤	可塑剤	カップリング剤	硬化剤
実施例1	188	-	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例2	250	-	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例3	150	-	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例4	100	-	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例5	-	150	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例6	-	100	3.3	-	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例7	188	-	-	3.3	-	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例8	188	-	-	-	3.3	-	-	100	5.0	1.0	0.6
実施例9	188	-	3.3	-	-	-	-	100	2.5	1.0	0.6
実施例10	188	-	3.3	-	-	-	-	100	0.0	1.0	0.6
比較例1	188	-	-	-	-	3.3	-	100	5.0	1.0	0.6
比較例2	188	-	-	-	-	-	3.3	100	5.0	1.0	0.6
比較例3	-	188	-	-	-	3.3	-	100	5.0	1.0	0.6

[0135] [表2]

表２

	沈降	屈折率(550nm)	ピール強度20μm厚N/10mm
実施例1	無	1.65	4.6
実施例2	無	1.70	4.5
実施例3	無	1.61	4.8
実施例4	無	1.58	5.0
実施例5	無	1.70	2.9
実施例6	無	1.60	3.7
実施例7	無	1.63	4.2
実施例8	無	1.64	4.3
実施例9	無	1.65	2.5
実施例10	無	1.65	1.2
比較例1	有	-	-
比較例2	有	-	-
比較例3	有	-	-

[0136] 材料に関する数値は全て重量部である。表中の略語は、それぞれ以下のものを示す。

ＺｒＯ２スラリー：株式会社ソーラー製、商品名「ＺＲ－０１０」、溶媒：メチルエチルケトン、粒子含有割合３０％、表面を修飾する反応性官能基

を有する有機物：重合性官能基を有するイソシアネート、体積平均粒子径１５ｎｍ

ＴｉＯ２スラリー：ナガセケムテックス株式会社製、商品名「ＮＯＤ－７４２ＧＴＦ」、溶媒：ポリエチレングリコールモノメチルエーテル、粒子含有割合３０％、体積平均粒子径４８ｎｍ

シリコーン粒子：モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「ＸＣ－９９」、体積平均粒子径０．７μｍ

アクリル粒子：綜研化学株式会社製、商品名「ＭＰシリーズ」、体積平均粒子径０．８μｍ

ポリスチレン粒子：綜研化学株式会社製、商品名「ＳＸシリーズ」、体積平均粒子径３．５μｍ

シリカ粒子：エムテック化学株式会社製、商品名「ＳＲシリーズ」、体積平均粒子径０．４μｍ

タルク粒子：日本タルク株式会社製、商品名「Ｄ－８００」、体積平均粒子径０．８μｍ

粘着剤：サイデン化学株式会社製、商品名「Ｘ－３１１０３３Ｓ」、溶媒：酢酸エチル、固形分含有割合３５％

可塑剤：イーストマン社製、商品名「ＢＥＮＺＯＦＬＥＸ　９－８８ＳＧ」

カップリング剤：信越化学工業株式会社製、商品名「ＫＢＭ－８０３」

硬化剤：三菱化学株式会社製、商品名「ＮＹ－２６０Ａ」

沈降：混合物１における拡散粒子の沈降の有無

[0137] 表２に示す結果から明らかな通り、本発明の要件を満たす実施例１～１０においては、製造途中の粒子の沈降が発生せず、良好な粘着剤組成物及び粘着層が得られた。これに対して、光拡散粒子として無機系の粒子を用いた比較例１～３においては、沈降が発生し、良好な粘着剤組成物及び粘着層を得ることができなかった。

[0138] ＜実施例１１＞

（１１－１．有機ＥＬ素子１の製造）

厚み０．７ｍｍ、屈折率１．５２のガラス基板の一方の面に、透明電極層１００ｎｍ、ホール輸送層１０ｎｍ、黄色発光層２０ｎｍ、青色発光層１５ｎｍ、電子輸送層１５ｎｍ、電子注入層１ｎｍ、および反射電極層１００ｎｍを、この順に形成した。ホール輸送層から電子輸送層までは全て有機材料により形成した。黄色発光層および青色発光層はそれぞれ異なる発光スペクトルを有している。

[0139] 透明電極層から反射電極層までの各層を形成した材料は、それぞれ下記の通りである：

・透明電極層；錫添加酸化インジウム（ＩＴＯ）

・ホール輸送層；４，４’－ビス［Ｎ－（ナフチル）－Ｎ－フェニルアミノ］ビフェニル（α－ＮＰＤ）

・黄色発光層；ルブレン１．５重量％添加　α－ＮＰＤ

・青色発光層；イリジウム錯体１０重量％添加　４，４’－ジカルバゾリル－１，１’－ビフェニル（ＣＢＰ）

・電子輸送層；フェナンスロリン誘導体（ＢＣＰ）

・電子注入層；フッ化リチウム（ＬｉＦ）

・反射電極層；Ａｌ

[0140] 透明電極層の形成方法は、ＩＴＯターゲットとした反応性スパッタリング法にて行い、表面抵抗を１０Ω／□以下とした。また、ホール注入層から反射電極層までの形成は、真空蒸着装置内に透明電極層を既に形成したガラス基板を設置し、上記のホール輸送層から反射電極層までの材料を抵抗加熱式により順次蒸着させることにより行なった。系内圧は５ｘ１０$^{-3}$　Ｐａで、蒸発速度は０．１～０．２ｎｍ／ｓで行った。

[0141] さらに、電極層に通電のための配線を取り付け、さらにホール輸送層から反射電極層までを封止基板により封止した。これにより、（ガラス基板）／（透明電極層）／（ホール輸送層）／（黄色発光層）／（青色発光層）／（電子輸送層）／（電子注入層）／（反射電極層）／（封止基板）の層構成を

有する、有機ＥＬ素子１を作製した。

[0142] （１１－２：粘着剤組成物の調製）

プラスチック容器に、反応性修飾ジルコニア酸化物スラリー（株式会社ソーラー製、商品名「ＺＲ－０１０」、溶媒：メチルエチルケトン、粒子含有割合３０％、表面を修飾する反応性官能基を有する有機物：重合性官能基を有するイソシアネート、体積平均粒子径１５ｎｍ）７５重量部、光散乱粒子（体積平均粒子径を０．４μｍとしたシリコーン粒子、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「ＸＣ－９９」）３．３重量部、及び分散用のジルコニアボール（ニッカトー製、商品名「ＹＴＺ－０．５」）５６４重量部を入れてボールミル架台に載せ、毎秒２回転の速度で３０分間ボールミル分散を行った。ジルコニアボールを、ボールミル分散後ふるいを通して取り除き、混合物１を得た。

[0143] 混合物１に、アクリル系粘着剤（サイデン化学株式会社製、商品名「Ｘ－３１１０３３Ｓ」、固形分３５％）１００重量部、及び可塑剤（イーストマン社製、商品名「ＢＥＮＺＯＦＬＥＸ　９－８８ＳＧ」、ジエチレングリコールジベンゾアート）５重量部を加え１５分攪拌した。続いてシランカップリング剤（信越化学工業株式会社製、商品名「ＫＢＭ－８０３」、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン）１重量部、及び硬化剤（三菱化学株式会社製、商品名「ＮＹ－２６０Ａ」）０．６重量部を加えて１５分攪拌し、粘着剤組成物を得た。

[0144] （１１－３：拡散粘着層の形成）

（１１－２）で得られた粘着剤組成物を、１００μｍ厚みのフィルム（商品名「ゼオノアフィルムＺＦ１４－１００」、日本ゼオン株式会社製、屈折率１．５１）の片面に、乾燥後の厚みが１０μｍとなるように塗布し、８０℃で５分乾燥させて拡散粘着層を形成し、拡散粘着層を有する拡散粘着シート２を作製した。

[0145] （１１－４：屈折率の測定）

シリコーン粒子を加えなかった他は、（１１－２）と同様に操作して、シ

リコーン粒子非含有粘着剤組成物を得た。

ガラス板の片面に、乾燥後の厚みが１０μｍとなるように、このシリコーン粒子非含有粘着剤組成物を塗布し、８０℃で５分乾燥させて、粘着層を形成した。この粘着層の屈折率を、エリプソメーター（ジェー・エー・ウーラム・ジャパン株式会社製　Ｍ－２０００）にて測定した。結果を表３に示す。

[0146] （１１－５：面光源装置の製造）

（１１－３）で得られた拡散粘着シート２を、（１１－１）で得られた有機ＥＬ発光装置１のガラス基板側の表面に貼り付けた。これにより、（フィルム）／（拡散粘着層）／（ガラス基板）／（透明電極層）／（ホール輸送層）／（黄色発光層）／（青色発光層）／（電子輸送層）／（電子注入層）／（反射電極層）／（封止基板）の層構成を有する、面光源装置１を得た。

[0147] ＜実施例１２～１３及び比較例４～７＞

（１１－２）の粘着剤組成物の調製において用いた反応性修飾ジルコニア酸化物スラリー及び光拡散粒子の種類及び量、（１１－３）の拡散粘着層の形成で用いたフィルムの種類、並びに（１１－３）で形成した拡散粘着層の厚みを、表１に示す通りに変更した他は、実施例１１と同一の操作を行い、拡散粘着シート２～７、及び面光源装置２～７を作成した。比較例４では、拡散粘着層の厚みを５μｍに変更したので、（１１－４）の屈折率の測定においても、粘着層の乾燥後の厚みが５μｍになるよう、層の形成を行った。

[0148]

[表3]

表３

	実施例11	実施例12	実施例13	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
ガラス屈折率	1.52	1.66	1.66	1.52	1.66	1.52	1.52
ZrO_2スラリー添加量（部）	75	188	150	188	188	150	75
粘着層屈折率	1.55	1.65	1.6	1.65	1.65	1.6	1.55
光拡散粒子	シリコーン粒子A	シリコーン粒子B	シリコーン粒子A	シリコーン粒子C	アクリル粒子A	チタニア粒子	アクリル粒子B
粒子屈折率	1.43	1.43	1.43	1.43	1.45	2.6	1.45
体積平均粒子径（μm）	0.4	0.7	0.4	1	20	5	10
拡散粘着層厚み（μm）	１０	１０	１０	５	１０	１０	１０
基材	ゼオノア	PET	ゼオノア	ゼオノア	PET	PET	PET

[0149] 表中の略語は以下を示す。

ZrO_2スラリー：反応性修飾ジルコニア酸化物スラリー（株式会社ソーラー製、商品名「ＺＲ－０１０」、溶媒：メチルエチルケトン、粒子含有割合３０％）

シリコーン粒子Ａ：体積平均粒子径を０．４μｍとしたシリコーン粒子（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「ＸＣ－９９」から所望の体積平均粒子径のものを選択）

シリコーン粒子Ｂ：体積平均粒子径を０．７μｍとしたシリコーン粒子（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「ＸＣ－９９」から所望の体積平均粒子径のものを選択）

シリコーン粒子Ｃ：体積平均粒子径を１．０μｍとしたシリコーン粒子（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ社製、商品名「トスパール１２０」）

アクリル粒子Ａ：体積平均粒子径を２０．０μｍとしたアクリル粒子（綜研化学社製、商品名「ＭＸ」）

チタニア粒子：体積平均粒子径が５μｍの二酸化チタン粒子（和光純薬工業社製、商品名「酸化チタン」）

アクリル粒子Ｂ：体積平均粒子径を１０．０ｕｍとしたアクリル粒子（綜研化学社製、商品名「ＭＸ」）

ゼオノア：商品名「ゼオノアフィルムＺＦ１４－１００」、日本ゼオン株式会社製、厚み１００μｍ、屈折率１．５１

ＰＥＴ：ポリエチレンテレフタレートフィルム（東レ製、商品名「Ｕ３４」、厚み１００μｍ、屈折率　１．６６）

[0150] ［シミュレーションによる評価］

実施例１１～１３並びに比較例４～７で得られた面光源装置１～７をモデル化したものについて、プログラム（プログラム名：ＡＳＡＰ，Ｂｒｅａｌｔ　Ｒｅｓｅｒｃｈ社製）を用いた光学シミュレーションで、光取り出し量及び色度Δｘｙを求めた。

[0151] シミュレーションの条件は、以下の通りとした。

モデル化した積層構造は、装置出光面側から、フィルム（厚み１００μｍ）、拡散粘着層、ガラス基板（厚み０．７ｍｍ、屈折率１．５２）、透明電極（厚み１００ｎｍ、屈折率１．９）、発光層（厚み２０ｎｍ、屈折率１．７）、反射電極（厚み１００ｎｍ、屈折率１．５、反射率８５％）、封止基板（厚み０．７ｍｍ、屈折率１．５２）とした。

フィルム及び拡散粘着層の屈折率並びに拡散粘着層の厚みは、各実施例及び比較例に応じて設定した。

透明電極の装置出光面側の面を発光面とし、発光面の光度は１ルーメンとし、図３に示す三刺激値（ＸＹＺ）の配光分布をそれぞれ設定した。

拡散粘着層のｇ値は、Ｍｉｅ散乱理論から導かれる散乱位相関数を用いて算出した表４中の値を用いた。

拡散粘着層内の散乱の平均自由行程は、粒子濃度と粒子断面積との積の逆

数から求めた表２中の値を用いた。

[0152] 同様の条件のモデル化により、実施例１１の（１１－１）で得られた有機ＥＬ素子のみを発光させた場合の光取り出し量を求め、この値と、各実施例及び比較例の面光源装置の光取り出し量の値から、光取り出し効率Ｑ＝（面光源装置の光取り出し量）／（有機ＥＬ素子の光取り出し量）を求めた。この値が大きいほど、光取り出し効率が良い。

[0153] Δｘｙとしては、極角０°～６０°までの各角度θにおける色度座標（ｘ，ｙ）の値ｘθ及びｙθ、並びに極角０°における色度座標（ｘ，ｙ）の値ｘ０及びｙ０から、$(x\theta - x0)^2 + (y\theta - y0)^2$の平方根を算出し、その最大値を求めた。この値が小さいほど観察角度による出光面の色味の変化が少ないことを示す。

[0154] シミュレーションの結果得られた光取り出し効率Ｑ及びΔｘｙの値、並びにＱ×（１－Δｘｙ）の値を、表４に示す。

[0155] [表4]

表４

	実施例11	実施例12	実施例13	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
g値	0.8341	0.9356	0.8397	0.957	0.9943	0.7847	0.9938
平均自由行程（μm）	23.1	4.4	12	3.65	67.7	16.2	30.4
光取り出し効率Q	1.027	1.045	1.058	1.007	1.008	0.995	0.993
Δxy	0.020	0.019	0.018	0.022	0.022	0.022	0.022
Q×(1-Δxy)	1.007	1.025	1.038	0.985	0.986	0.973	0.971

[0156] ［検討］

表４に示される結果から明らかな通り、光拡散層の散乱異方性係数ｇ、及び光拡散層と透光性基材との屈折率差が本願の規定の範囲内である実施例１１～１３においては、Ｑ×（１－Δｘｙ）の値が１以上となり、良好な面光源装置であることが確認された。これに対して、屈折率差が本願規定の範囲外である比較例４及びｇ値が本願規定の範囲外である比較例５～７において

は、Ｑ×（１－Δｘｙ）の値が１未満となり、面光源装置の性能が不十分であった。

符号の説明

[0157] １００：面光源装置

１１１：フィルム

１１１Ｕ：出光面

１１２：光拡散層

１２２Ｕ：出光面

１２０：出光面構造層

１２１：出光面基材

１２２：凹凸構造層

１２３：凹部

１２４：平坦部

１３１：透光性基材

１４０：有機ＥＬ素子

１４１：第一の電極層

１４３：第二の電極層

１４２：発光層

１５１：封止基板

２００：面光源装置

請求の範囲

[請求項1] 粘着性材料、体積平均粒子径１～５００ｎｍの反応性修飾金属酸化物粒子、及び有機系光拡散粒子を含有する光学部材用粘着剤組成物。

[請求項2] シランカップリング剤をさらに含有する請求項１に記載の光学部材用粘着剤組成物。

[請求項3] 可塑剤をさらに含有する請求項１又は２に記載の光学部材用粘着剤組成物。

[請求項4] 請求項１～３のいずれか１項に記載の光学部材用粘着剤組成物により形成されてなる光学部材用粘着層。

[請求項5] 発光層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子と、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子よりも出光面に近い側に位置する透光性基材と、

前記透光性基材の、前記有機エレクトロルミネッセンス素子と反対側の面に接して設けられた光拡散層と

を備える面光源装置であって、

前記光拡散層が透光性樹脂と光拡散粒子とを含み、前記光拡散層の散乱異方性係数ｇが０．８３以上０．９７以下であり、かつ、前記光拡散層の屈折率と、前記透光性基材との屈折率差が、０．１以下であることを特徴とする面光源装置。

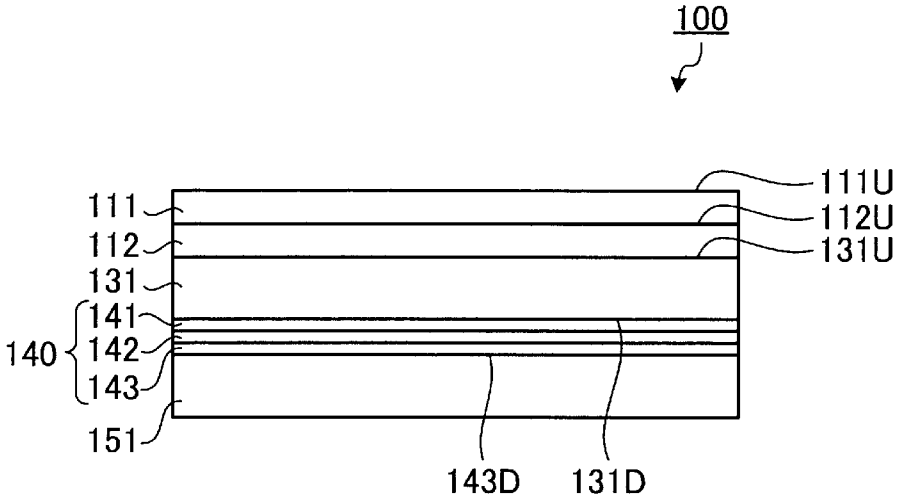
[請求項6] 前記光拡散層が拡散粘着層である、請求項５に記載の面光源装置。

[請求項7] 前記光拡散粒子の体積平均粒子径が、０．４～５μｍである、請求項５又は６に記載の面光源装置。

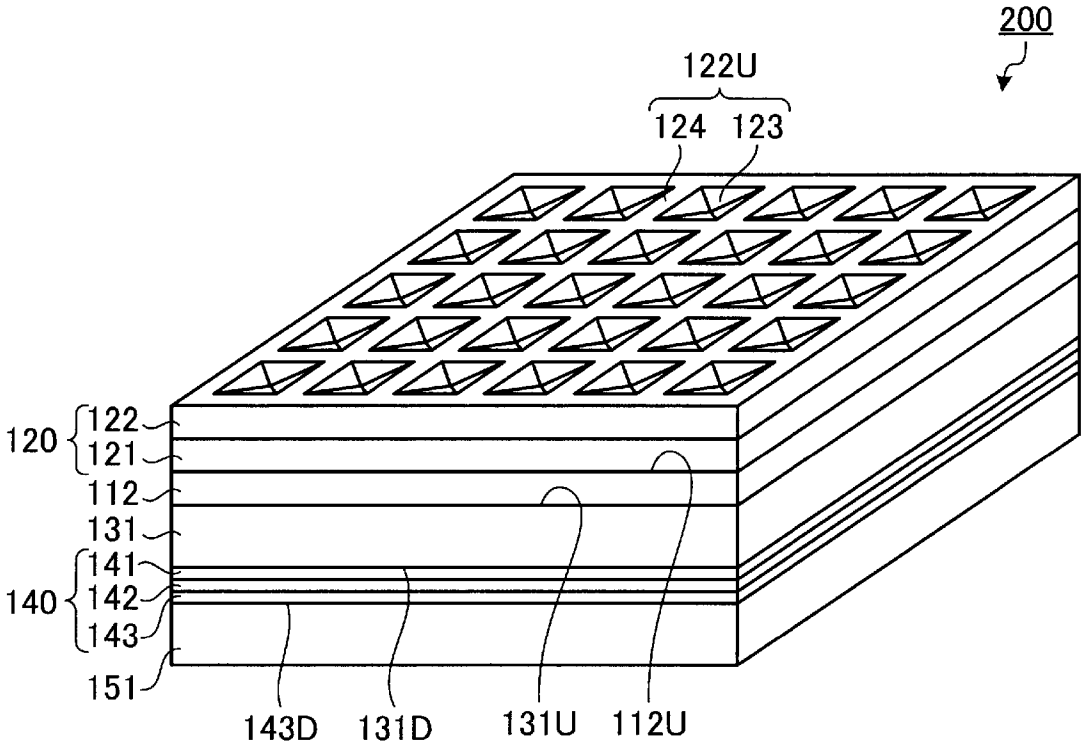
[請求項8] 前記光拡散層が、光学部材用粘着剤組成物により形成されてなり、

光学部材用粘着剤組成物が、前記透光性樹脂として粘着性材料を含み、前記光拡散粒子として有機系光拡散粒子を含み、且つ、体積平均粒子径１～５００ｎｍの反応性修飾金属酸化物粒子をさらに含む、請求項５～７のいずれか１項に記載の面光源装置。

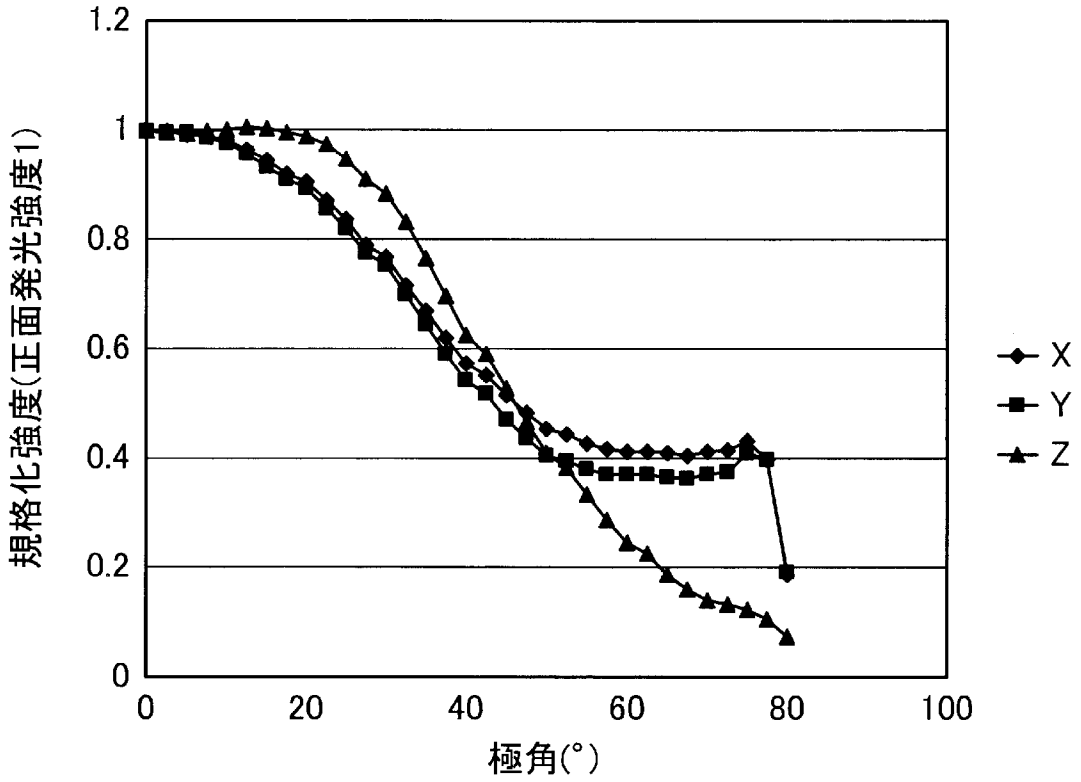
[図1]


100
111U
112U
131U
111
112
131
140
141
142
143
151
143D
131D

[図2]


200
122U
124
123
120
122
121
112
131
140
141
142
143
151
143D
131D
131U
112U

[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/050717

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C09J201/00(2006.01)i, *C09J7/00*(2006.01)i, *C09J11/04*(2006.01)i, *C09J11/06*(2006.01)i, *C09J11/08*(2006.01)i, *G02B5/02*(2006.01)i, *H05B33/02*(2006.01)i, *H05B33/14*(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)
C09J201/00, C09J7/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J11/08, G02B5/02, H05B33/02, H05B33/14

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 1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014

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 A	JP 2012-190647 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 04 October 2012 (04.10.2012), claims; paragraphs [0040], [0046] to [0047], [0073], [0101] to [0120], table 1; paragraph [0121], table 2; paragraph [0122]; fig. 1 (Family: none)	1-4 5-8
Y A	JP 2009-120726 A (Sumitomo Osaka Cement Co., Ltd.), 04 June 2009 (04.06.2009), claims; paragraphs [0009], [0061] to [0086] (Family: none)	1-4 5-8

☒ 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	Date of mailing of the international search report
17 April, 2014 (17.04.14)	28 April, 2014 (28.04.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/050717

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 2009-70814 A (Fujifilm Corp.), 02 April 2009 (02.04.2009), claims; paragraphs [0118], [0123], [0152] to [0153]; fig. 5, 6 & US 2009/0051278 A1 & KR 10-2009-0019753 A	1-8
Y A	JP 2010-049210 A (Fujifilm Corp.), 04 March 2010 (04.03.2010), claims; paragraphs [0031] to [0037] (Family: none)	1-4,7-8 5-6
Y A	JP 2006-528825 A (General Electric Co.), 21 December 2006 (21.12.2006), claims; paragraphs [0025] to [0027], [0123] to [0124]; paragraph [0138], table 1; fig. 3, 9, 12A, 12B, 14 & US 2005/0018431 A1 & EP 1652242 A2 & WO 2005/018010 A2 & CN 1823433 A & KR 10-1124753 B & KR 10-2006-0056343 A	5-8 1-4
A	JP 2012-92314 A (Nitto Denko Corp.), 17 May 2012 (17.05.2012), claims 2, 8; paragraph [0110], table 1, example 7 & US 2013/0194221 A1 & WO 2012/043652 A1 & TW 201221362 A & KR 10-2013-0031910 A & CN 103153610 A	1-8
A	JP 2009-42628 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 26 February 2009 (26.02.2009), claims; entire text (Family: none)	1-8
A	JP 2009-86361 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 23 April 2009 (23.04.2009), claims; entire text (Family: none)	1-8

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１４／０５０７１７

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09J201/00(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J11/08(2006.01)i, G02B5/02(2006.01)i, H05B33/02(2006.01)i, H05B33/14(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.　C09J201/00, C09J7/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J11/08, G02B5/02, H05B33/02, H05B33/14

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　１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報　１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報　１９９４－２０１４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 A	JP 2012-190647 A(日本ゼオン株式会社)2012.10.04, 【特許請求の範囲】，【0040】，【0046】～【0047】，【0073】，【0101】～【0120】【表１】，【0121】【表２】，【0122】，【図１】 (ファミリーなし)	1-4 5-8
Y A	JP 2009-120726 A(住友大阪セメント株式会社)2009.06.04, 【特許請求の範囲】，【0009】，【0061】～【0086】 (ファミリーなし)	1-4 5-8
Y	JP 2009-70814 A(富士フイルム株式会社)2009.04.02,	1-8

☑　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	国際調査報告の発送日
１７．０４．２０１４	２８．０４．２０１４

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）　４Ｚ　９６０７
磯貝　香苗
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８０

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
	【特許請求の範囲】，【0118】，【0123】，【0152】～【0153】，【図５】，【図６】 & US 2009/0051278 A1 & KR 10-2009-0019753 A	
Y A	JP 2010-049210 A(富士フイルム株式会社)2010.03.04, 【特許請求の範囲】，【0031】～【0037】 (ファミリーなし)	1-4,7-8 5-6
Y A	JP 2006-528825 A(ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ)2006.12.21, 【特許請求の範囲】，【0025】～【0027】，【0123】～【0124】，【0138】【表１】，【図３】，【図９】，【図１２Ａ】，【図１２Ｂ】，【図１４】 & US 2005/0018431 A1 & EP 1652242 A2 & WO 2005/018010 A2 & CN 1823433 A & KR 10-1124753 B & KR 10-2006-0056343 A	5-8 1-4
A	JP 2012-92314 A(日東電工株式会社)2012.05.17, 【請求項２】，【請求項８】，【0110】【表１】実施例７ & US 2013/0194221 A1 & WO 2012/043652 A1 & TW 201221362 A & KR 10-2013-0031910 A & CN 103153610 A	1-8
A	JP 2009-42628　A(大日本印刷株式会社)2009.02.26, 【特許請求の範囲】他全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2009-86361 A(大日本印刷株式会社)2009.04.23, 【特許請求の範囲】他全文 (ファミリーなし)	1-8