

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-259802

(P2009-259802A)

(43) 公開日 平成21年11月5日(2009.11.5)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H05B 33/02 (2006.01)</b>	H05B 33/02	2H042
<b>H01L 51/50 (2006.01)</b>	H05B 33/14	3K107
<b>G02B 5/02 (2006.01)</b>	G02B 5/02	A B

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願2009-69817 (P2009-69817)  
 (22) 出願日 平成21年3月23日 (2009. 3. 23)  
 (31) 優先権主張番号 特願2008-81809 (P2008-81809)  
 (32) 優先日 平成20年3月26日 (2008. 3. 26)  
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 306037311  
 富士フイルム株式会社  
 東京都港区西麻布2丁目26番30号  
 (74) 代理人 100107515  
 弁理士 廣田 浩一  
 (74) 代理人 100107733  
 弁理士 流 良広  
 (74) 代理人 100115347  
 弁理士 松田 奈緒子  
 (72) 発明者 実藤 竜二  
 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士フイルム株式会社内  
 Fターム(参考) 2H042 BA02 BA12 BA15 BA20  
 3K107 AA01 BB01 BB02 CC05 CC33  
 CC45 EE28 FF14 FF15 GG09

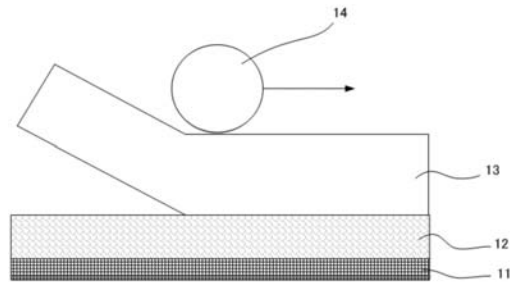
(54) 【発明の名称】 光散乱層転写材料、並びに有機EL表示装置及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 水及び溶剤を含まないので、有機EL表示装置にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができる光散乱層転写材料、及び該光散乱層転写材料を用いた、光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない有機EL表示装置の提供。

【解決手段】 正極と負極との間に少なくとも発光層を有する有機EL表示装置における前記負極上に光散乱層を形成するための光散乱層転写材料であって、仮支持体と、該仮支持体上に少なくとも光散乱層を有し、前記光散乱層が、少なくとも透光性樹脂及び光散乱粒子を含有し、前記光散乱粒子の平均粒径が、50nm~300nmである光散乱層転写材料である。該仮支持体と発光層の間に、光熱変換層を有する態様が好ましい。

【選択図】 図3



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

正極と負極との間に少なくとも発光層を有する有機 E L 表示装置における前記負極上に光散乱層を形成するための光散乱層転写材料であって、

仮支持体と、該仮支持体上に少なくとも光散乱層を有し、

前記光散乱層が、少なくとも透光性樹脂及び光散乱粒子を含有し、

前記光散乱粒子の平均粒径が、50nm～300nmであることを特徴とする光散乱層転写材料。

**【請求項 2】**

仮支持体と光散乱層の間に、光熱変換層を有する請求項 1 に記載の光散乱層転写材料。

10

**【請求項 3】**

光熱変換層が、モリブデン、クロム、金、銀、銅、アルミニウム、及びこれらの合金、並びにカーボンブラックから選択される少なくとも 1 種の光熱変換材料を含有する請求項 2 に記載の光散乱層転写材料。

**【請求項 4】**

光散乱層の厚みが、0.5μm～5.0μmである請求項 1 から 3 のいずれかに記載の光散乱層転写材料。

**【請求項 5】**

光散乱層における光散乱粒子の体積充填率が 10%以下である請求項 1 から 4 のいずれかに記載の光散乱層転写材料。

20

**【請求項 6】**

ガラス基板上に、正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置であって、

前記バリア層上に、請求項 1 から 5 のいずれかに記載の光散乱層転写材料を用いて形成された光散乱層を有することを特徴とする有機 E L 表示装置。

**【請求項 7】**

ガラス基板上に正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置の製造方法であって、

請求項 1 から 5 のいずれかに記載の光散乱層転写材料を、ラミネーターにより光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付けることを特徴とする有機 E L 表示装置の製造方法。

30

**【請求項 8】**

ガラス基板上に正極、少なくとも発光層を含む有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置の製造方法であって、

請求項 2 から 5 のいずれかに記載の光散乱層転写材料を、光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付け、仮支持体側から光熱変換層位置に光を照射することを特徴とする有機 E L 表示装置の製造方法。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

40

本発明は、水及び溶剤を含まないので、有機エレクトロルミネッセンス表示装置（有機 E L 表示装置）の発光材料にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができる光散乱層転写材料、並びに光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない有機 E L 表示装置及び該有機 E L 表示装置の製造方法に関する。

**【背景技術】****【0002】**

有機 E L 表示装置は、自発光型の表示装置であり、ディスプレイや照明の用途に用いられている。この有機 E L 表示装置は、従来の CRT や LCD と比較して視認性が高い、視野角依存性がないという表示性能の利点を有する。また、ディスプレイを軽量化、薄層化できるといった利点もある。一方、有機 E L 照明は軽量化、薄層化といった利点に加え、

50

フレキシブル基板を用いることで、これまで実現できなかった形状の照明を実現できる可能性を持っている。

#### 【0003】

前記有機EL表示装置は、上記のように優れた特徴を有するが、一般に、発光層を含め表示装置を構成する各層の屈折率は空気より高い。例えば、有機EL表示装置では、発光層など有機薄膜層の屈折率は1.6~2.1である。このため、発光した光は界面で全反射しやすく、その光取り出し効率は20%に満たさず、大部分の光を損失している。

#### 【0004】

前記有機EL表示装置における光損失に関して、図1を参照にして説明する。

有機EL表示装置は、基本的には、図1に示すように、TFT基板1の上に、背面電極2、発光層を含み2層又は3層からなる有機層3、及び透明電極4、透明基板5が積層された構成を有し、背面電極2から注入された正孔と透明電極4から注入された電子が有機層3で再結合し、蛍光性物質などを励起することにより発光するものである。そして、有機層3から発光した光は、直接、又はアルミニウムなどで形成される背面電極2で反射して、透明基板5から出射する。

しかし、図1に示すように、表示装置内部で発生した光は、屈折率の異なる隣接層界面に入射する角度によっては全反射を起こし、表示装置内部を導波してしまい外部に取り出すことができない(図1のLb、Lcの光)。この導波する光の割合は、隣接層との相対屈折率で決まり、一般的な有機EL表示装置〔空気( $n=1.0$ ) / 透明基板( $n=1.5$ ) / 透明電極( $n=2.0$ ) / 有機層( $n=1.7$ ) / 背面電極〕の場合には、大気(空気)に放出されず表示装置内部を導波する光の割合は81%となる。即ち、発光量全体の約19%しか有効に利用できないこととなる。

#### 【0005】

このため、光取り出し効率を向上させるには、(1)透明基板と空気界面で全反射し「有機層+透明電極+透明基板」を導波する光(図1のLb)を取り出す、(2)透明電極と透明基板界面で全反射し「有機層及び透明電極」を導波する光(図1のLc)を取り出す方法が必要となる。これらのうち、前記(1)に関しては、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法が提案されている(特許文献1参照)。

また、前記(2)に関しては、透明電極と透明基板との界面や発光層と隣接層との界面を回折格子状に加工する方法が提案されている(特許文献2及び特許文献3参照)。

更に、積層された有機層間の界面を凹凸に加工して発光効率を増加させる方法が提案されている(特許文献4参照)。そのうち、前記発光層と隣接層との界面に回折格子を形成する方法は、隣接層が導電性媒体からなり、回折格子の凹凸の深さは発光層の厚みに対して40%程度であり、凹凸のピッチと深さを特定の関係にすることで、導波光を取り出すものである。また、有機層間の界面に凹凸を形成する方法は、凹凸を挟んで隣接する層は導電性媒体からなり、発光層の厚みに対する深さが20%程度、界面の傾斜角が30°程度の凹凸を有機層間の界面に形成し、有機層同士の接合界面を大きくすることで発光効率を増大させるものである。

しかし、上記方法は加工が難しく、また、通電時に絶縁破壊を起こし易い等の問題があり、有用な光の取り出し方法の更なる開発が有機EL表示装置の高効率化のために望まれている。

#### 【0006】

これらの問題を解決する一つ的手段として、例えば有機EL面発光体の表面に光散乱層を付与することで、取り出し効率を改善する手段が提案されている(特許文献5及び特許文献6参照)。しかし、表面で光散乱を起こすと、光の滲みが大きくなり、解像度が劣化するという問題があった。

これに対し、負極の直上に光散乱層を配置することで、光取り出し効率を改善しつつ、画像のボケを低減させる方法が提案されている(特許文献7参照)。

しかし、この提案の方法は、光散乱層のベース材料として屈折率が1.5~1.6の材料を用いており、有機層及び透明電極を導波する光を効率的に取り出すための屈折率とし

10

20

30

40

50

ては不適當なものであった。

【0007】

上記のような光散乱層を形成する方法としては、塗布法が知られているが、有機EL表示装置の発光材料は水及び溶剤に弱いいため、材料面での制約があり、光散乱層を効率よく形成するのは実用化が困難であるという問題がある。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】米国特許第4774435号明細書

【特許文献2】特開平11-283751号公報

【特許文献3】特開2002-313554号公報

【特許文献4】特開2002-313567号公報

【特許文献5】特開2003-109747号公報

【特許文献6】特開2003-173877号公報

【特許文献7】特開2006-107744号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、従来における前記諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。即ち、本発明は、水及び溶剤を含まないので、有機EL表示装置の発光材料にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができる光散乱層転写材料、並びに該光散乱層転写材料を用いた、光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない有機EL表示装置及び該有機EL表示装置の製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

前記課題を解決するため本発明者らが鋭意検討を重ねた結果、仮支持体と、該仮支持体上に少なくとも光散乱層、必要に応じて光熱変換層を有する光散乱層転写材料を用いることにより、有機EL表示装置の発光層上に溶剤を含まない光散乱層を形成できるため、溶剤による発光材料へのダメージが無く、高い輝度を得ることができる。また、光散乱層を形成する場所が、有機EL素子上ではなく、光散乱層を形成しやすい仮支持体上であるため、光散乱粒子の偏在によるムラや、光散乱層の厚み変動によるムラが発生しにくいことを知見した。

【0011】

本発明は、本発明者による前記知見に基づくものであり、前記課題を解決するための手段はとしては以下の通りである。即ち、

<1> 正極と負極との間に少なくとも発光層を有する有機EL表示装置における前記負極上に光散乱層を形成するための光散乱層転写材料であって、

仮支持体と、該仮支持体上に少なくとも光散乱層を有し、

前記光散乱層が、少なくとも透光性樹脂及び光散乱粒子を含有し、

前記光散乱粒子の平均粒径が、50nm～300nmであることを特徴とする光散乱層転写材料である。

<2> 仮支持体と光散乱層の間に、光熱変換層を有する前記<1>に記載の光散乱層転写材料である。

<3> 光熱変換層が、モリブデン、クロム、金、銀、銅、アルミニウム、及びこれらの合金、並びにカーボンブラックから選択される少なくとも1種の光熱変換材料を含有する前記<2>に記載の光散乱層転写材料である。

<4> 光散乱層の厚みが、0.5μm～5.0μmである前記<1>から<3>のいずれかに記載の光散乱層転写材料である。

<5> 光散乱層における光散乱粒子の体積充填率が10%以下である前記<1>から<4>のいずれかに記載の光散乱層転写材料である。

< 6 > ガラス基板上に、正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置であって、

前記バリア層上に、前記< 1 >から< 5 >のいずれかに記載の光散乱層転写材料を用いて形成された光散乱層を有することを特徴とする有機 E L 表示装置である。

< 7 > ガラス基板上に、正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置の製造方法であって、

前記< 1 >から< 5 >のいずれかに記載の光散乱層転写材料を、ラミネーターにより光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付けることを特徴とする有機 E L 表示装置の製造方法である。

< 8 > ガラス基板上に、正極、少なくとも発光層を含む有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置の製造方法であって、

前記< 2 >から< 5 >のいずれかに記載の光散乱層転写材料を、光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付け、仮支持体側から光熱変換層位置に光を照射することを特徴とする有機 E L 表示装置の製造方法である。

【発明の効果】

【0012】

本発明によると、従来における問題を解決することができ、水及び溶剤を含まないので、有機 E L 表示装置にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができる光散乱層転写材料、並びに該光散乱層転写材料を用いた、光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない有機 E L 表示装置及び該有機 E L 表示装置の製造方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0013】

【図1】図1は、自発光表示装置における光取り出し効率低下の原因を説明する説明する図である。

【図2】図2は、本発明の有機 E L 表示装置の構成の一例を示す図である。

【図3】図3は、本発明の光散乱層転写材料を用いた転写の一例を説明するための図である。

【図4】図4は、本発明の光散乱層転写材料を用いたレーザー転写の一例を説明するための図である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

以下、本発明の光散乱層転写材料について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施態様に限定されるものではない。

なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

【0015】

(光散乱層転写材料)

本発明の光散乱層転写材料は、正極と負極との間に少なくとも発光層を有する有機 E L 素子における前記負極上に光散乱層を形成するための光散乱層転写材料であって、

仮支持体と、該仮支持体上に少なくとも光散乱層を有し、光熱変換層、熱可塑性樹脂層、分離層、被覆シート、更に必要に応じてその他の層を有してなる。

【0016】

前記光散乱層転写材料は、熱転写の形態として、例えば、仮支持体と、該仮支持体上に熱可塑性樹脂層、分離層、光散乱層、被覆シートをこの順に有してなる。

また、レーザー転写の形態として、例えば、仮支持体と、該仮支持体上に光熱変換層、熱可塑性樹脂層、分離層、光散乱層、被覆シートをこの順に有してなる。

【0017】

< 仮支持体 >

10

20

30

40

50

前記仮支持体としては、化学的及び熱的に安定であって、可撓性物質で構成されていてもよく、帯電防止のために導電性を有していてもよい。

前記仮支持体としては、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリエチレン、ポリプロピレン、トリアセチルセルロース等のシート、又はこれらの積層物が好ましい。

前記仮支持体の厚みは、 $5\ \mu\text{m} \sim 300\ \mu\text{m}$ が好ましく、 $20\ \mu\text{m} \sim 150\ \mu\text{m}$ がより好ましい。

#### 【0018】

ここで、被転写体上に光散乱層転写材料の光散乱層を密着させた後で仮支持体を剥そうとすると、フィルムと人体が帯電して不快な電撃ショックを受けることがある。この帯電のために周囲からゴミを吸い寄せて引き続く露光工程で未露光部が生じ、ピンホールの原因となることがある。本発明の光散乱層転写材料においては、帯電を防止するため、仮支持体の少なくとも一方の面に導電性層を設けてその表面電気抵抗を $10^{13}$ 以下としたか、あるいは仮支持体自体に導電性を付与してその表面電気抵抗を $10^{13}$ 以下としたものを用いることが好ましい。

10

#### 【0019】

前記仮支持体に導電性を付与するには、仮支持体中に導電性物質を含有させればよい。例えば、金属酸化物の微粒子や帯電防止剤を練り込んでおく方法が好適である。前記金属酸化物としては、例えば酸化亜鉛、酸化チタン、酸化錫、酸化アルミニウム、酸化インジウム、酸化珪素、酸化マグネシウム、酸化バリウム、及び酸化モリブデンから選択される少なくとも1種の結晶性金属酸化物、及び/又はその複合酸化物の微粒子などが挙げられる。

20

前記帯電防止剤としては、例えば、アニオン界面活性剤として、アルキル燐酸塩系（例えば、花王石鹼株式会社製のエレクトロストリッパーA、第一工業製薬株式会社製のエレノンNo. 19等）などが挙げられる。

両性界面活性剤として、ベタイン系（例えば、第一工業製薬株式会社製のアモーゲンK、等）などが挙げられる。

非イオン界面活性剤として、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル系（例えば、日本油脂株式会社製のニツサンノニオンL等）、ポリオキシエチレンアルキルエーテル系（例えば、花王石鹼株式会社製のエマルゲン106、120、147、420、220、905、910、日本油脂株式会社製のニツサンノニオンE等）、ポリオキシエチレンアルキルフェノールエーテル系、多価アルコール脂肪酸エステル系、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル系、ポリオキシエチレンアルキルアミン系などが挙げられる。

30

#### 【0020】

前記仮支持体上に、導電性物質を含有する導電性層を設ける場合には、該導電性物質としては、特に制限はなく、公知のものの中から適宜選択して用いることができ、例えば $\text{ZnO}$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{BaO}$ 、及び $\text{MoO}_3$ から選ばれる少なくとも1種の結晶性金属酸化物及び/又はその複合酸化物の微粒子が、湿度に影響されない導電性を示す点で好ましい。

前記結晶性金属酸化物又はその複合酸化物の微粒子は、その体積抵抗が $10^7 \cdot \text{cm}$ 以下であることが好ましく、 $10^5 \cdot \text{cm}$ 以下であることが好ましい。また、前記粒子サイズは、 $0.01\ \mu\text{m} \sim 0.7\ \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.02\ \mu\text{m} \sim 0.5\ \mu\text{m}$ がより好ましい。

40

#### 【0021】

前記導電性の結晶性金属酸化物及びその複合酸化物の微粒子の製造方法については、特開昭56-143430号公報に詳細に記載されているが、例えば、(1)金属酸化物微粒子を焼成により作製し、導電性を向上させる異種原子の存在下で熱処理する方法、(2)焼成により金属酸化物微粒子を製造するときに導電性を向上させる為の異種原子を共存させる方法、(3)焼成により金属酸化物微粒子を製造する際に雰囲気中の酸素濃度を下げて、酸素欠陥を導入する方法、などが挙げられる。

50

前記異種原子を含む例としては、ZnOに対してはAl、In等、TiO<sub>2</sub>に対してはNb、Ta等、SnO<sub>2</sub>に対してはSb、Nb、ハロゲン原子等が挙げられる。

前記異種原子の添加量は、0.01mol%~30mol%が好ましく、0.1mol%~10mol%がより好ましい。前記導電性粒子の使用量は、0.05g/m<sup>2</sup>~20g/m<sup>2</sup>が好ましく、0.1g/m<sup>2</sup>~10g/m<sup>2</sup>がより好ましい。

#### 【0022】

前記導電性層には、バインダーとして、例えばゼラチン、セルロースナイトレート、セルローストリアセテート、セルロースジアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート等のセルロースエステル；塩化ビニリデン、塩化ビニル、スチレン、アクリロニトリル、酢酸ビニル、アルキル（炭素数1~4）アクリレート、ビニルピロリドン等を含むホモポリマー又は共重合体、可溶性ポリエステル、ポリカーボネート、可溶性ポリアミド、などが挙げられる。これらのバインダー中への導電性粒子の分散に際しては、チタン系分散剤或いはシラン系分散剤のような分散液を添加してもよい。また、バインダー架橋剤等を加えても構わない。

10

前記チタン系分散剤としては、例えば米国特許第4,069,192号明細書、米国特許第4,080,353号明細書等に記載されているチタネート系カップリング剤、プレナクト（商品名：味の素株式会社製）、などを挙げることができる。

前記シラン系分散剤としては、例えばビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（-メトキシエトキシ）シラン、-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等が知られており、「シランカップリング剤」として信越化学工業株式会社等から市販されている。

20

前記バインダー架橋剤としては、例えば、エポキシ系架橋剤、イソシアネート系架橋剤、アジリジン系架橋剤、エポキシ系架橋剤等を挙げることができる。

前記導電性層は、導電性微粒子をバインダーに分散させ、仮支持体上に塗布することにより、又は仮支持体の下引処理を施し、その上に導電性微粒子を被着させることにより設けることができる。

#### 【0023】

前記導電性層が、仮支持体の光散乱層とは反対側の面に設けられる場合には、耐傷性を良好なものとするために、前記導電性層の上に、疎水性重合体を含む疎水性重合体層を設けることが好ましい。

30

前記疎水性重合体としては、例えばセルロースエステル（例えばニトロセルロース、セルロースアセテート）、塩化ビニル、塩化ビニリデン、ビニルアクリレート等を含むビニル系ポリマーや有機溶剤可溶性ポリアミド、ポリエステル等のポリマー、などが挙げられる。

前記疎水性重合体層は、有機溶剤に溶解した溶液又は水性ラテックスの状態に塗布すればよく、塗布量は乾燥質量にして0.05g/m<sup>2</sup>~1g/m<sup>2</sup>程度が好ましい。

前記疎水性重合体層には、すべり性を付与するためのすべり剤として、例えば特開昭55-79435号公報に記載があるような有機カルボン酸アミド等を使用しても差しつかえないし、またマツト剤等を加えることも何ら支障はない。

このような疎水性重合体層を設けても導電性層の効果は実質的に影響を受けない。下塗層を設ける場合には、特開昭51-135526号公報、米国特許第3,143,421号明細書、米国特許第3,586,508号明細書、米国特許第2,698,235号明細書、米国特許第3,567,452号明細書等に記載されているような塩化ビニリデン系共重合体、特開昭51-114120号公報、米国特許第3,615,556号明細書等に記載されているようなブタジエン等のジオレフィン系共重合体、特開昭51-58469号公報等に記載されているようなグリシジルアクリレート又はグリシジルメタアクリレート含有共重合体、特開昭48-24923号公報等に記載されているようなポリアミド・エピクロルヒドリン樹脂、特開昭50-39536号公報に記載されているような無水マレイン酸含有共重合体等を用いることができる。また、特開昭56-82504号公報、特開昭56-143443号公報、特開昭57-104931号公報、特開昭57-

40

50

118242号公報、特開昭58-62647号公報、特開昭60-258541号公報などに示されている導電性層も適宜用いることができる。

【0024】

前記導電性層を、基材フィルムと同一又は異なったプラスチック原料に含有させ、基材フィルムを押し出す際に同時に共押し出した場合には、接着性、耐傷性に優れた導電性層を容易に得ることができる。この場合には、前記疎水性重合体層や下塗層を設ける必要がなく、導電性層の特に好ましい実施態様である。

前記導電性層を塗布する場合には、例えばローラーコート、エアナイフコート、グラビアコート、パーコート、カーテンコート等の通常の方法が採用できる。

【0025】

前記光散乱層転写材料を使用して帯電による静電ショックを防止するためには、導電性層又は導電性を付与した支持体の表面電気抵抗値を $10^{13}$ 以下とすることが好ましく、 $10^{12}$ 以下とすることがより好ましい。滑り性を良化するため、又は該光散乱層の仮支持体裏面との不都合な接着を防止するため、仮支持体の裏面に公知の微粒子含有滑り性組成物や、シリコン化合物を含有する離型剤組成物等を塗布することも有用である。

【0026】

前記仮支持体の、熱可塑性樹脂層を設けない側の面に導電性層を設ける場合には、該熱可塑性樹脂層と仮支持体の接着力を上げるため、仮支持体に、例えばグロー放電処理、コロナ処理、紫外線照射処理などの表面処理を行ったり、熱可塑性樹脂層中にクレゾールノボラック樹脂やレゾルシン等のフェノール性物質を添加したり、基材にポリ塩化ビニリデン樹脂、スチレンブタジエンゴム、ゼラチン等の下塗り処理を行ったり、更にこれらの処理を組み合わせた処理を行うことができる。熱可塑性樹脂がアルカリ可溶性である場合には、これらの中で、コロナ処理後にゼラチンを下塗りしたポリエチレンテレフタレートフィルムが特に優れた密着を与えるので好ましい。前記ゼラチン層の厚みは、 $0.01\mu\text{m}$  ~  $2\mu\text{m}$ が好ましい。

【0027】

また、熱可塑性樹脂層との密着力を向上する目的で、これらのシートに、グロー放電処理、コロナ処理、紫外線照射処理などの表面処理、ポリ塩化ビニリデン樹脂、スチレンブタジエンゴム、ゼラチン等の下塗り処理、熱可塑性樹脂層中にクレゾールノボラック樹脂やレゾルシン等のフェノール性物質の添加を行うこと、更にこれらの処理を組み合わせた処理を行うことができる。これらの中で、ゼラチン下塗り処理したポリエチレンテレフタレートフィルムが、密着性が優れている点で好ましく、コロナ処理後にゼラチンを下塗りしたポリエチレンテレフタレートフィルムが更に優れた密着を与えるので特に好ましい。前記ゼラチン層の厚みは、 $0.01\mu\text{m}$  ~  $2\mu\text{m}$ が好ましい。

【0028】

< 熱可塑性樹脂層 >

前記熱可塑性樹脂層として用いる有機高分子物質としては、ヴィカーVicatt法（具体的にはアメリカ材料試験法エーエステーエムデーASTM D1235によるポリマー軟化点測定法）による軟化点が約80以下の有機高分子物質より選ばれることが好ましい。この理由は軟化点の低いポリマーを用いることにより、光散乱層転写材料を凹凸のある基板上に熱と圧力で転写する際に下地の凹凸を完全に吸収し、気泡残りが全く無い状態で転写することが可能となるためである。軟化点が高いポリマーを用いた場合は、高い温度で転写する必要があり、実作業上不利である。このような点から、熱可塑性樹脂層に用いられる有機高分子物質としてはVicatt法による軟化点が80以下であることが好ましく、60以下がより好ましく、50以下が更に好ましい。

前記軟化点が80以下のものとしては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン；エチレンと酢酸ビニル又はそのケン化物のようなエチレン共重合体、エチレンとアクリル酸エステル又はそのケン化物、ポリ塩化ビニル、塩化ビニルと酢酸ビニル又はそのケン化物のような塩化ビニル共重合体、ポリ塩化ビニリデン、塩化ビニリデン共重合体、ポリスチレン、スチレンと（メタ）アクリル酸エステル又はそのケン化物のよう

10

20

30

40

50

なスチレン共重合体、ポリビニルトルエン、ビニルトルエンと(メタ)アクリル酸エステル又はそのケン化物のようなビニルトルエン共重合体、ポリ(メタ)アクリル酸エステル、(メタ)アクリル酸ブチルと酢酸ビニル等の(メタ)アクリル酸エステル共重合体、酢酸ビニル共重合体ナイロン、共重合ナイロン、N-アルコキシメチル化ナイロン、N-ジメチルアミノ化ナイロンのようなポリアミド樹脂等の有機高分子などが挙げられる。更に、「プラスチック性能便覧」(日本プラスチック工業連盟、全日本プラスチック成形工業連合会編著、工業調査会発行、1968年10月25日発行)による軟化点が約80以下の有機高分子を使用することができる。

#### 【0029】

これらの有機高分子物質中に該高分子物質と相溶性のある各種の可塑剤を添加して、実質的な軟化点を下げることが可能であり、例えば、軟化点が80以上の有機高分子物質中に該高分子物質と相溶性のある各種の可塑剤を添加して実質的な軟化点を80以下に下げることができる。

#### 【0030】

これら有機高分子物質の溶解特性は光散乱層の溶解特性に十分に一致させてもよいし、光散乱層が全く溶解しない溶剤に可溶性の溶解特性を持っていてもよい。またこれらの有機高分子物質中に基材との接着力を調節するために実質的な軟化点が80を超えない範囲で各種のポリマー、過冷却物質、密着改良剤、界面活性剤、離型剤などを加えることが可能である。

#### 【0031】

前記熱可塑性樹脂層の厚みは、6 $\mu$ m以上が好ましい。これは、熱可塑性樹脂層の厚みが5 $\mu$ m以下であると、1 $\mu$ m以上の下地の凹凸を完全に吸収することが不可能となるためである。また、上限については、性能的には特に限界は無いが、製造適性から100 $\mu$ m以下が好ましく、50 $\mu$ m以下がより好ましい。

#### 【0032】

前記熱可塑性樹脂層の材料としては、アルカリ可溶性光重合性樹脂が好適に用いられる。該アルカリ可溶性光重合性樹脂としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば(メタ)アクリル酸と(メタ)アクリル酸アルキルエステル(アルキル基としては、メチル基、エチル基、ブチル基など)との共重合体、ポリ(メタ)アクリル酸、スチレンと無水マレイン酸等の不飽和二塩基酸無水物との共重合体、該ポリマーとアルコール類との反応物、セルロースの多塩基酸無水物との反応物などが挙げられる。

上記ポリマーのうちでも、スチレン/無水マレイン酸共重合体、特開昭60-258539号公報記載のメタクリル酸メチル/メタクリル酸/メタクリル酸2-エチルヘキシル/メタクリル酸ベンジル四元共重合体、特公昭55-38961号公報記載のスチレン/マレイン酸モノ-n-ブチルエステル共重合体、特公昭54-25957号公報記載のスチレン/メタクリル酸メチル/アクリル酸エチル/メタクリル酸の四元共重合体、特開昭52-99810号公報記載のメタクリル酸ベンジル/メタクリル酸共重合体、特公昭58-12577号公報記載のアクリロニトリル/メタクリル酸2-エチルヘキシル/メタクリル酸の三元共重合体、特公昭55-6210号公報記載のメタクリル酸メチル/アクリル酸エチル/アクリル酸の三元共重合体とイソプロパノールで一部分エステル化したスチレン/無水マレイン酸共重合体などが好ましい。

#### 【0033】

前記熱可塑性樹脂は、分離層との間で離型性を示す必要があるが、このためにアルカリ可溶性熱可塑性樹脂中へ離型剤を添加することが好ましい。前記離型剤としては、シリコン化合物やフッ素化アルキル基含有化合物が好適である。これらの中でも、シリコン化合物としてはダイセルUCB株式会社製エベクリル1360、エベクリル350；東芝シリコン株式会社製ジメチルシリコンオイルTSF400、メチルフェニルシリコンオイルTSF4300、シリコンポリエーテル共重合体TSF4445、TSF4446、TSF4460、TSF4452、などが挙げられる。フッ素化アルキル基含有化合物としては、フッ素系界面活性剤、フッ素系グラフトポリマーが挙げられる。

10

20

30

40

50

前記フッ素系界面活性剤としては、例えば大日本インキ化学工業株式会社製パーフルオロアルキル基・親水性基含有オリゴマーF-171、パーフルオロアルキル基・親油性基含有オリゴマーF-173、パーフルオロアルキル基・親水性基・親油性基含有オリゴマーF-177、パーフルオロアルキル基・親油性基含有ウレタンF-183、F-184である。前記フッ素系グラフトポリマーとしては、例えば東亜合成化学株式会社製アロンGF-300、GF-150、などが挙げられる。

#### 【0034】

##### <光熱変換層>

光散乱層転写材料にレーザー光を用いてレーザー転写する場合には、仮支持体と熱可塑性樹脂層の間に、光熱変換層を設けることが好ましい。

前記光熱変換層は、光熱変換材料、及びバインダーを含有してなり、更に必要に応じてその他の成分を含有してなる。

#### 【0035】

前記光熱変換材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば酸性カーボンブラック、塩基性カーボンブラック、中性カーボンブラックなど各種カーボンブラック、分散性改良等のために表面修飾もしくは表面コートされた各種カーボンブラック、ニグロシン類、アニリンブラック、シアニンブラック等の黒色顔料、フタロシアニン、ナフトロシアニン系の緑色顔料、カーボングラファイト、アルミニウム、鉄粉、ジアミン系金属錯体、ジチオール系金属錯体、フェノールチオール系金属錯体、メルカプトフェノール系金属錯体、アリールアルミニウム金属塩類、結晶水含有無機化合物、硫酸銅、硫化クロム、珪酸塩化合物、酸化チタン、酸化バナジウム、酸化マンガン、酸化鉄、酸化コバルト、酸化タングステン、インジウムスズ酸化物等の金属酸化物等、又はこれらの金属の水酸化物、硫酸塩、更にビスマス、スズ、テルル、鉄、アルミニウムの金属粉、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、モリブデン、クロム、金、銀、銅、アルミニウム、及びこれらの合金、並びにカーボンブラックから選択される少なくとも1種が特に好ましい。

#### 【0036】

前記バインダーとしては、特に制限はなく、光熱変換剤を溶解乃至分散する公知のバインダーの中から適宜選択することができ、例えばセルロース、ニトロセルロース、エチルセルロース等のセルロース誘導体類；アクリル酸エステルの単独重合体又は共重合体、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート等のメタクリル酸エステルの単独重合体又は共重合体、アクリル酸エステル-メタクリル酸エステル共重合体、ポリスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン等のスチレン系モノマーの単独重合体又は共重合体、ポリイソブレン及びスチレン-ブタジエン共重合体等の各種合成ゴム類；ポリ酢酸ビニル等のビニルエステル類の単独重合体；酢酸ビニル-塩化ビニル共重合体等のビニルエステル含有の共重合体；ポリウレア、ポリウレタン、ポリエステル、ポリカーボネート等の縮合系各種ポリマー、「J. Imaging Sci., P59-64, 30(2), (1986) (Fréchetら)」、「Polymers in Electronics (Symposium Series, P11, 242, T. Davidson, Ed. ACS Washington, DC (1984) (Ito, Wilson)」、「Microelectronic Engineering, P3-10, 13 (1991) (E. Reichmanis, L.F. Thompson)」などに記載のいわゆる「化学増幅系」に使用されるバインダーなどが挙げられる。

#### 【0037】

前記その他の成分としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば界面活性剤、溶媒、各種添加剤などが挙げられる。

#### 【0038】

前記光熱変換層の厚みは、レーザー光の透過率がほぼゼロ(0)となる厚みより厚く、熱拡散の影響が発生しない厚みであり、100nm~200nmが好ましく、100nm程度が特に好ましい。

10

20

30

40

50

## 【0039】

## &lt;分離層&gt;

前記分離層としては、水又はアルカリ水溶液に分散乃至溶解するものであれば特に制限はなく、公知のものの中から適宜選択することができ、例えば、特開昭46-2121号公報、特公昭56-40824号公報に記載のポリビニルエーテル/無水マレイン酸重合体、カルボキシアルキルセルロースの水溶性塩、水溶性セルロースエーテル類、カルボキシアルキル澱粉の水溶性塩、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、各種のポリアクリルアミド類、各種の水溶性ポリアミド、ポリアクリル酸の水溶性塩、ゼラチン、エチレンオキサイド重合体、各種の澱粉、又はその類似物からなる群の水溶性塩、スチレン/マレイン酸の共重合体、マレイネート樹脂、などが挙げられる。これらの中でも、ポリ

10

ビニルアルコールとポリビニルピロリドンの組み合わせが特に好ましい。

前記ポリビニルアルコールは、鹸化率が80%以上であるものが好ましい。

前記ポリビニルピロリドンの含有量は、前記分離層固形分の1質量%~75質量%が好ましい。前記含有量が、1質量%未満であると、光散乱層との十分な密着が得られず、75質量%を超えると、分離層上に塗布する光散乱層塗布液の塗布時に分離層が溶解してしまい、分離層が形成できないことがある。

前記分離層の厚みは、0.1 $\mu$ m~5 $\mu$ mが好ましく、0.5 $\mu$ m~2 $\mu$ mがより好ましい。前記厚みが、0.1 $\mu$ m未満であると、酸素の透過性が高すぎることもあり、5 $\mu$ mを超えると、塗布むらが生じやすくなることがある。

20

## 【0040】

## &lt;光散乱層&gt;

前記光散乱層は、透光性樹脂と、光散乱粒子とを含み、屈折率調整用として無機微粒子、更に必要に応じてその他の成分を含有してなる。

## 【0041】

## -透光性樹脂-

前記透光性樹脂としては、少なくとも150以下の温度で軟化もしくは粘着性になることが好ましく、熱可塑性であることが好ましい。公知の光重合性組成物を用いた層の大部分はこの性質を有するが、一部の層については熱可塑性結合剤の添加あるいは相溶性の可塑剤の添加によって更に改質することができる。

## 【0042】

前記透光性樹脂としては、主として紫外線・電子線によって硬化する樹脂、即ち、電離放射線硬化型樹脂、電離放射線硬化型樹脂に熱可塑性樹脂と溶剤を混合したものの、熱硬化型樹脂の3種類が使用される。

30

## 【0043】

前記透光性樹脂は、飽和炭化水素又はポリエーテルを主鎖として有するポリマーであることが好ましく、飽和炭化水素を主鎖として有するポリマーであることがより好ましい。また、透光性樹脂は、架橋していることが好ましい。飽和炭化水素を主鎖として有するポリマーは、エチレン性不飽和モノマーの重合反応により得ることが好ましい。架橋している透光性樹脂を得るためには、2つ以上のエチレン性不飽和基を有するモノマーを用いることが好ましい。

40

## 【0044】

前記2つ以上のエチレン性不飽和基を有するモノマーとしては、例えば多価アルコールと(メタ)アクリル酸とのエステル(例えば、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、1,4-ジクロヘキサジアクリレート、ペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート)、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、トリメチロールエタントリ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート、1,3,5-シクロヘキサントリオールトリメタクリレート、ポリウレタンポリアクリレート、ポリエステルポリアクリレート)、ビニルベンゼンの誘導体(例えば、1,4-ジビニルベンゼン、4

50

- ビニル安息香酸 - 2 - アクリロイルエチルエステル、1, 4 - ジビニルシクロヘキサノン)、ビニルスルホン(例えば、ジビニルスルホン)、アクリルアミド(例えば、メチレンビスアクリルアミド)、メタクリルアミド、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、少なくとも3つの官能基を有するアクリレートもしくはメタアクリレートモノマー、更には少なくとも5つの官能基を有するアクリレートモノマーが、膜硬度、即ち耐傷性の観点で好ましい。ジペンタエリスリトールペンタアクリレートとジペンタエリスリトールヘキサアクリレートの混合物が市販されており、特に好ましく用いられる。

【0045】

これらのエチレン性不飽和基を有するモノマーは、各種の重合開始剤その他添加剤と共に溶剤に溶解し、塗布し、乾燥させた後、電離放射線又は熱による重合反応により硬化することができる。

【0046】

前記2つ以上のエチレン性不飽和基を有するモノマーの代わり又はそれに加えて、架橋性基の反応により、架橋構造を導入してもよい。前記架橋性官能基としては、例えばイソシアナート基、エポキシ基、アジリジン基、オキサゾリン基、アルデヒド基、カルボニル基、ヒドラジン基、カルボキシル基、メチロール基、活性メチレン基、などが挙げられる。また、ビニルスルホン酸、酸無水物、シアノアクリレート誘導体、メラミン、エーテル化メチロール、エステル及びウレタン、テトラメトキシシランのような金属アルコキシドも、架橋構造を導入するためのモノマーとして利用できる。ブロックイソシアナート基のように、分解反応の結果として架橋性官能基を用いてもよい。即ち、前記架橋性官能基は、すぐには反応を示すものではなくとも、分解した結果反応性を示すものであってもよい。これら架橋性官能基を有するモノマーは塗布後、加熱することによって架橋構造を形成することができる。

【0047】

前記2つ以上のエチレン性不飽和基を有するモノマーに加えて、高屈折率を有するモノマーを導入してもよい。前記高屈折率モノマーとしては、例えばビス(4-メタクリロイルチオフェニル)スルフィド、ビニルナフタレン、ビニルフェニルスルフィド、4-メタクリロキシフェニル-4'-メトキシフェニルチオエーテル、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0048】

前記溶剤としては、例えば炭表数が3~12のエーテル類、炭素数が3~12のケトン類、炭素数が3~12のエステル類、2種類以上の官能基を有する有機溶媒；メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、1-ブタノール、2-ブタノール、tert-ブタノール、1-ペンタノール、2-メチル-2-ブタノール、シクロヘキサノール、酢酸イソブチル、メチルイソブチルケトン、2-オクタノン、2-ペンタノン、2-ヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ペンタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

前記炭表数が3~12のエーテル類としては、例えばジブチルエーテル、ジメトキシメタン、ジメトキシエタン、ジエトキシエタン、プロピレンオキシド、1,4-ジオキサソラン、1,3-ジオキサソラン、1,3,5-トリオキサソラン、テトラヒドロフラン、アニソール、フェネトールなどが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

前記炭素数が3~12のケトン類としては、例えばアセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、ジプロピルケトン、ジイソブチルケトン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、メチルシクロヘキサノン、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

前記炭素数が3~12のエステル類としては、例えば蟻酸エチル、蟻酸プロピル、蟻酸n-ペンチル、酢酸メチル、酢酸エチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、酢

10

20

30

40

50

酸 n - ペンチル、 - プチロラクトン、などが挙げられる。これらは、1 種単独で使用してもよいし、2 種以上を併用してもよい。

前記 2 種類以上の官能基を有する有機溶媒としては、例えば 2 - メトキシ酢酸メチル、2 - エトキシ酢酸メチル、2 - エトキシ酢酸エチル、2 - エトキシプロピオン酸エチル、2 - メトキシエタノール、2 - プロポキシエタノール、2 - ブトキシエタノール、1, 2 - ジアセトキシアセトン、アセチルアセトン、ジアセトンアルコール、アセト酢酸メチル、アセト酢酸エチル、などが挙げられる。これらは、1 種単独で使用してもよいし、2 種以上を併用してもよい。

#### 【0049】

上記のような電離放射線硬化型樹脂組成物の硬化方法としては、前記電離放射線硬化型樹脂組成物の通常の硬化方法、即ち、電子線又は紫外線の照射によって硬化することができる。

例えば、電子線硬化の場合には、コックロフワルトン型、バンデグラフ型、共振変圧型、絶縁コア変圧器型、直線型、ダイナミトロン型、高周波型等の各種電子線加速器から放出される 50 keV ~ 1000 keV、好ましくは 100 keV ~ 300 keV のエネルギーを有する電子線等が使用され、紫外線硬化の場合には超高压水銀灯、高压水銀灯、低压水銀灯、カーボンアーク、キセノンアーク、メタルハライドランプ等の光線から発する紫外線等が利用できる。

#### 【0050】

- 光散乱粒子 -

前記光散乱粒子としては、特に制限はなく、有機微粒子であっても、無機微粒子であってもよい。

前記有機微粒子としては、例えばポリメチルメタクリレートビーズ、アクリル - スチレン共重合体ビーズ、メラミンビーズ、ポリカーボネートビーズ、ポリスチレンビーズ、架橋ポリスチレンビーズ、ポリ塩化ビニルビーズ、ベンゾグアナミン - メラミンホルムアルデヒドビーズ、などが挙げられる。

前記無機微粒子としては、例えば  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{Sb}_2\text{O}_3$ 、などが挙げられる。

前記光散乱粒子の平均粒径は、50 nm ~ 300 nm であることが好ましく、150 nm ~ 250 nm であることがより好ましい。前記平均粒径が、50 nm 未満であると、その粒子は光をほとんど散乱しないため、光取り出し効率向上の効果が得られなくなることがあり、300 nm を超えると、粒子の分布が散乱層表面に凹凸を形成するため、転写の際に隙間ができた、密着性に面内分布ができることにより、転写性を損なうことがある。

前記光散乱粒子の平均粒径は、例えば日機装株式会社製ナノトラック UPA - EX 150 とした動的散乱法を利用した装置や、電子顕微鏡写真の画像処理により測定することができる。

#### 【0051】

- 無機微粒子 -

前記光散乱層には、上記材料に加えて、高屈折率を有する金属酸化物超微粒子等の無機微粒子を含有させてもよい。

前記高屈折率を有する金属酸化物超微粒子としては、ジルコニウム、チタン、アルミニウム、インジウム、亜鉛、錫、及びアンチモンから選ばれる少なくとも 1 種の酸化物からなる粒径 100 nm 以下の微粒子を含有することが好ましく、50 nm 以下の微粒子を含有することがより好ましい。

具体的には、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{Sb}_2\text{O}_3$ 、ITO 等が挙げられる。これらの中でも、 $\text{ZrO}_2$  が特に好ましい。高屈折率のモノマーや金属酸化物超微粒子の添加量は、前記透光性樹脂全質量の 10 質量% ~ 90 質量% であることが好ましく、20 質量% ~ 80 質量% であることが更に好ましい。

#### 【0052】

10

20

30

40

50

また、上記材料に加えて、これに低屈折率を有する超微粒子等を含ませてもよい。該低屈折率を有する超微粒子としては、粒径100nm以下、好ましくは50nm以下のシリカ微粒子を含有することが好ましい。また粒子中に空気を含有してより低屈折率を発現する中空シリカを用いてもよい。低屈折率の超微粒子の添加量は、接着剤の全質量の10質量%~90質量%であることが好ましく、20質量%~80質量%であることがより好ましい。

#### 【0053】

前記光散乱層の厚みは、0.5 $\mu$ m~5 $\mu$ mが好ましく、0.75 $\mu$ m~3 $\mu$ mがより好ましい。前記厚みが、0.5 $\mu$ m未満であると、十分な光散乱量を得られないため、光取り出し効率向上の効果が得られなくなることがあり、5 $\mu$ mを超えると、転写の際に基板との剥離状態に面内分布ができて輝度ムラが発生することがある。

10

#### 【0054】

前記光散乱層は、(1)屈折率が1.6以上の高屈折率の透光性樹脂と、該透光性樹脂との屈折率差が0.05以上の光散乱粒子とを含有する態様、(2)屈折率が2.0以上の高屈折率の光散乱粒子を含有する態様、などが好ましい。

前記(1)の屈折率が1.6以上の高屈折率の透光性樹脂としては、例えばZrO<sub>2</sub>の微粒子を含有したジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート、などが挙げられる。

前記透光性樹脂との屈折率差が0.05以上の光散乱粒子としては、例えばSiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>などが挙げられる。

20

前記(2)の屈折率が2.0以上の高屈折率の光散乱粒子としては、例えばZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>などが挙げられる。

#### 【0055】

<被覆シート>

前記光散乱層の上には、貯蔵の際の汚染や損傷から保護するために薄い被覆シートを設けることが好ましい。

前記被覆シートは、仮支持体と同じか又は類似の材料からなってもよいが、光散乱層から容易に分離されねばならない。被覆シート材料としては、例えばシリコン紙、ポリオレフィンもしくはポリテトラフルオルエチレンシートが好ましく、ポリエチレンフィルム又はポリプロピレンフィルムがより好ましい。

30

前記被覆シートの厚みは、5 $\mu$ m~100 $\mu$ mが好ましく、10 $\mu$ m~30 $\mu$ mがより好ましい。

#### 【0056】

<光散乱層転写材料の製造方法>

本発明の光散乱層転写材料は、例えば、(1)仮支持体上にレーザー転写する場合には光熱変換層塗布液を塗布し、乾燥することにより光熱変換層を形成し、該光熱変換層上に熱可塑性樹脂層溶液を塗布し、乾燥することにより熱可塑性樹脂層を設け、その後熱可塑性樹脂層上に熱可塑性樹脂層を溶解しない溶剤からなる分離層材料の溶液を塗布し、乾燥し、その後、光散乱層を分離層を溶解しない溶剤で塗布し、乾燥して製造される。(2)別の被覆シート上に光散乱層を設けて、前記の仮支持体上に熱可塑性樹脂層及び分離層を有するシートの両方のシートを分離層と光散乱層が接するように相互に貼り合わせるにより製造される。(3)別の被覆シートとして、熱可塑性樹脂層を有する仮支持体を用意し、この熱可塑性樹脂層を、被覆シート上の光散乱層及び分離層からなるシートの分離層とを貼り合わせるにより製造される。

40

#### 【0057】

なお、塗布により熱可塑性樹脂層を設けた仮支持体の代わりに、熱可塑性樹脂のシートと仮支持体シートを接着した2層又は多層シートを用いることもできる。

前記熱可塑性樹脂のシートとしては、前記熱可塑性樹脂層の材料と同様なものを使用できるが、これらの中でも、ポリエチレンフィルム又はポリプロピレンフィルムが特に好ましい。

50

仮支持体上にポリエチレンフィルム又はポリプロピレンフィルムを設ける方法としては、例えば(1)仮支持体上にポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニル、エポキシ樹脂、ポリウレタン、天然ゴム、合成ゴム等の溶液を塗布することにより接着剤層を設け、この上にポリエチレンフィルム又はポリプロピレンフィルムを加圧・加熱下に張り合わせる方法、(2)エチレン/酢酸ビニル共重合体、エチレン/アクリル酸エステル共重合体、ポリアミド樹脂、石油樹脂、ロジン類、ワックス類の混合物からなる接着剤を加熱溶融して基材上に塗布した後で直ちにポリエチレンフィルム又はポリプロピレンフィルムを張り合わせる方法、(3)ポリエチレンやポリプロピレンを溶融状態にして、押し出し機によりフィルム状に押し出し、溶融状態のまま仮支持体を圧着してラミネートする方法、などが挙げられる。

10

**【0058】****< 転写方法 >**

本発明の光散乱層転写材料を用いた光散乱層の転写方法について説明する。

まず、光散乱層転写材料の被覆シートを取除き、光散乱層を加圧、加温下で被転写体上に貼り合わせる。貼り合わせには、従来公知のラミネーター、真空ラミネーターが使用でき、より生産性を高めるためには、オートカットラミネーターの使用も可能である。その後、仮支持体と熱可塑性樹脂層を剥がして、光散乱層が形成される。

ここで、図3に示すように、まず、光散乱層転写材料の被覆シートを剥離し、光散乱層12面を有機EL表示装置のバリア層11上にラミネーター14を用いて加圧、加熱して貼り合わせ、続いて、仮支持体13を除去し、有機EL表示装置のバリア層11上に光散乱層12を転写することができる。なお、図3では、光散乱層転写材料の熱可塑性樹脂層、及び分離層は省略している。

20

**【0059】**

また、本発明のレーザー転写用光散乱層転写材料を用い光散乱層の転写方法について説明する。

まず、光散乱層転写材料の被覆シートを取除き、光散乱層を加圧、加温下で被転写体上に貼り合わせる。貼り合わせには、従来公知のラミネーター、真空ラミネーターが使用でき、より生産性を高めるためには、オートカットラミネーターの使用も可能である。その後、積層体の光熱変換層位置に焦点を合わせたレーザー光を照射し、仮支持体と熱可塑性樹脂層を剥がして、光散乱層が形成される。

30

レーザー光は集光させることにより微小な領域の光強度を高めることが容易なため、本発明における光熱変換材料に光を照射して熱を発生させるのに適している。照射に用いるレーザーの波長域としては、紫外線から赤外領域のものが利用可能であり、またレーザーの方式としては、連続波方式、パルス方式共に利用可能であり、レーザー媒質としては、例えばガスレーザー、半導体レーザー、紫外線励起色素レーザー、ファイバーアンプレーザー等が利用可能である。

レーザー光はXYステージやポリゴンミラーなどを用いて、転写材料上を走査させることにより、光散乱層全面を均一に転写することが可能である。また走査しながらレーザー光の出力にオンオフを与えることにより、パターンニングされた光散乱層を形成することも可能である。

40

**【0060】**

ここで、図4に示すように、まず、光散乱層転写材料の被覆シートを剥離し、光散乱層12面を有機EL表示装置のバリア層11上にラミネーターを用いて加圧して貼り合わせた。この積層体に、光熱変換層15位置に焦点を合わせたレーザー光16を照射し、光散乱層12を有機EL表示装置のバリア層11上に転写した。続いて、仮支持体を除去し、有機EL表示装置のバリア層上に光散乱層を形成することができる。なお、図4では、光散乱層転写材料の熱可塑性樹脂層、及び分離層は省略している。

**【0061】**

本発明の光散乱層転写材料は、水及び溶剤を含まないので、有機EL表示装置にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができるので、以下に説明する有

50

機 E L 表示装置の負極（又はバリア層）上への光散乱層の作製に好適である。

【 0 0 6 2 】

（有機 E L 表示装置及び有機 E L 表示装置の製造方法）

本発明の有機 E L 表示装置は、ガラス基板上に、正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有し、前記バリア層上に、本発明の前記光散乱層転写材料を用いて形成された光散乱層を有し、更に正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、バリア層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

本発明の有機 E L 表示装置の製造方法は、ガラス基板上に、正極、有機 E L 層、負極、及びバリア層をこの順に有する有機 E L 表示装置の製造方法であって、

第 1 形態では、本発明の前記光散乱層転写材料を、ラミネーターにより光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付ける。

第 2 形態では、本発明の前記光散乱層転写材料を、光散乱層側の面が前記バリア層と接するように貼り付け、仮支持体側から光熱変換層位置に光を照射する。

【 0 0 6 3 】

- 正極 -

前記正極は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が 4 e V 以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、更にこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、及びこれらと ITO との積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点から ITO が好ましい。

前記正極の厚みは、特に制限はなく、材料により適宜選択可能であるが、10 nm ~ 5 μm が好ましく、50 nm ~ 1 μm がより好ましく、100 nm ~ 500 nm が更に好ましい。

【 0 0 6 4 】

前記正極としては、通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。

前記基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、0.2 mm 以上が好ましく、0.7 mm 以上がより好ましい。

【 0 0 6 5 】

前記透明樹脂基板としては、バリアフィルムを用いることもできる。該バリアフィルムとは、プラスチック支持体上にガス不透過性のバリア層を設置したフィルムである。バリアフィルムとしては、酸化ケイ素や酸化アルミニウムを蒸着したもの（特公昭 53 - 12953 号公報、特開昭 58 - 217344 号公報）、有機無機ハイブリッドコーティング層を有するもの（特開 2000 - 323273 号公報、特開 2004 - 25732 号公報）、無機層状化合物を有するもの（特開 2001 - 205743 号公報）、無機材料を積層したもの（特開 2003 - 206361 号公報、特開 2006 - 263989 号公報）、有機層と無機層を交互に積層したもの（特開 2007 - 30387 号公報、米国特許第 6413645 号明細書、Affinito ら著 Thin Solid Films 1996 年 290-291 頁）、有機層と無機層を連続的に積層したもの（米国特許出願公開公報 2004 - 46497 号明細書）などが挙げられる。

【 0 0 6 6 】

前記正極の作製には、材料によって種々の方法が用いられるが、例えば ITO の場合、

電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾル-ゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。正極は洗浄その他の処理により、表示装置の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理などが効果的である。

【0067】

- 負極 -

前記負極は、電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。

前記負極の材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）又はそのフッ化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）又はそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金又はそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金又はそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられる。これらの中でも、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金又はそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金又はそれらの混合金属等である。

前記負極の厚みは、特に制限はなく、材料により適宜選択可能であるが、10 nm ~ 5 μmが好ましく、50 nm ~ 1 μmがより好ましく、100 nm ~ 1 μmが更に好ましい。

前記負極の作製には、例えば電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。更に、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。

前記正極及び負極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 / 以下が好ましい。

【0068】

前記負極上に前記バリアフィルムを貼り合せて、ガスの浸入を防ぐとともに、ディスプレイ表面に保護層を形成してもよい。

【0069】

- 発光層 -

前記発光層の材料は、電界印加時に正極又は正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に負極又は電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。前記発光層材料としては、例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体；ポリチオフエン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、などが挙げられる。

前記発光層の厚みは、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、1 nm ~ 5 μmが好ましく、5 nm ~ 1 μmがより好ましく、10 nm ~ 500 nmが更に好ましい。

前記発光層の形成方法は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、LB法などの方法が挙げられる。これらの中でも、抵抗加熱蒸着、コーティング法が特に好ましい。

## 【 0 0 7 0 】

## - 正孔注入層、正孔輸送層 -

前記正孔注入層、正孔輸送層の材料は、正極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、負極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、などが挙げられる。

前記正孔注入層、正孔輸送層の厚みは、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば1 nm ~ 5 μmが好ましく、5 nm ~ 1 μmがより好ましく、10 nm ~ 500 nmが更に好ましい。

前記正孔注入層、正孔輸送層は、上述した材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

前記正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解又は分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解又は分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、などが挙げられる。

## 【 0 0 7 1 】

## - 電子注入層、電子輸送層 -

前記電子注入層、電子輸送層の材料は、負極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、正極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。

前記電子注入層、電子輸送層の厚みは、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、1 nm ~ 5 μmが好ましく、5 nm ~ 1 μmがより好ましく、10 nm ~ 500 nmが更に好ましい。

前記電子注入層、電子輸送層は、上述した材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

前記電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解又は分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解又は分散することができ、樹脂成分としては、例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

## 【 0 0 7 2 】

## - バリア層 -

前記バリア層としては、大気中の酸素、水分、窒素酸化物、硫黄酸化物、オゾン等の透

10

20

30

40

50

過を防ぐという機能を有する限り、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。

前記バリア層の材料としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、SiN、SiON、などが挙げられる。

前記バリア層の厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、5nm~1,000nmが好ましく、7nm~750nmがより好ましく、10nm~500nmが特に好ましい。前記バリア層の厚みが、5nm未満であると、大気中の酸素及び水分の透過を防ぐバリア機能が不充分であることがあり、1,000nmを超えると、光線透過率が低下し、透明性を損なうことがある。

前記バリア層の光学的性質は、光線透過率が80%以上が好ましく、85%以上がより好ましく、90%以上が更に好ましい。

前記バリア層の形成方法としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、CVD法などが挙げられる。

#### 【0073】

本発明の有機EL表示装置は、本発明の前記光散乱層転写材料を用いて形成した光散乱層を有しているので、光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない高品質なものである。

#### 【実施例】

#### 【0074】

以下、本発明の実施例を説明するが、本発明は、これらの実施例に何ら限定されるものではない。

#### 【0075】

#### (製造例1)

<有機EL表示装置の作製>

まず、絶縁性基板上にパツファ層を介してTFEを形成し、次いで、全面にSiN膜からなる層間絶縁膜層を堆積させたのち、通常の写真エッチング工程を用いてソース領域及びドレイン領域に達するコンタクトホールをそれぞれ形成した。

#### 【0076】

次いで、全面にAl/Ti/Al多層構造導電層を堆積させたのち、通常の写真エッチング工程を用いてパターニングすることによって、TFE部上にも延在するようにソース電極を形成するとともに、ドレイン電極を形成した。なお、ソース電極は、共通ソース線から4つの分岐線に分岐している。

#### 【0077】

次いで、スピンコート法を用いて全面に感光性樹脂を塗布して層間絶縁膜とし、この層間絶縁膜を所定のマスクを用いて露光した後、所定の現像液を用いて現像することによって、ソース電極の分岐線に対するコンタクトホールを形成した。なお、便宜的に共通ソース線に対してコンタクトホールが形成されている。

#### 【0078】

次いで、スパッタ法によりアルミニウム(Al)膜を全面に堆積させたのち、通常の写真エッチング工程を用いて所定の形状にパターニングすることによって、コンタクトホールを介してソース電極の分岐線に接続する分割正極を形成した。

#### 【0079】

次いで、マスク蒸着法を用いて画素開口部の底部に露出している分割正極を覆う有機EL層を形成したのち、再びマスク蒸着法を用いて有機EL層を覆う厚みが10nmのAl膜と、厚みが30nmのITO膜を順次堆積させて共通負極を形成し、各分割正極に対応する領域がそれぞれ分割画素部となる。

#### 【0080】

この場合、有機EL層130は、分割正極側から順に、正孔注入層として2-TNATA(4,4',4"-トリス(2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)膜、正孔輸送層として-NPD[N,N'-ビス(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン]膜、発光層としてAlq3(8-キノリ

10

20

30

40

50

ノールアルミニウム錯体)を積層して構成した。

【0081】

次いで、全面にCVD法によりSiN膜、SION膜を順次堆積させて厚みが500nmのバリア層を形成した。

次に、バリア層上に、後述する実施例及び比較例により光散乱層170を形成し、該光散乱層上に、透明基板としてガラス板160を貼り付けた。

以上により、図2に示すTFT基板上110に正極120、その上に順次有機EL層130、負極140、バリア層150、光散乱層170、透明基板160からなる有機EL表示装置を作製した。

【0082】

(調製例1)

<光散乱層用塗布液S1の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S1を調製した。

- 光散乱層用塗布液S1の処方 -

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液(デソライトZ7404、JSR株式会社製)・・・1000g

・UV硬化性樹脂(DPHA、日本化薬株式会社製)・・・310g

・シランカップリング剤(KBM-5103、信越化学工業株式会社製)・・・100g

・シリカ粒子(KE-P10、粒径0.1μm、日本触媒株式会社製)・・・85g

・メチルエチルケトン(MEK)・・・290g

・メチルイソブチルケトン(MIBK)・・・130g

なお、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

【0083】

(調製例2)

<光散乱層用塗布液S2の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S2を調製した。

- 光散乱層用塗布液S2の処方 -

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液(デソライトZ7404、JSR株式会社製)・・・1000g

・UV硬化性樹脂(DPHA、日本化薬株式会社製)・・・310g

・シランカップリング剤(KBM-5103、信越化学工業株式会社製)・・・100g

・シリカ粒子含有液(スノーテックスXL、平均粒径50nm、固形分濃度40質量%、日産化学工業株式会社製)・・・210g

・メチルエチルケトン(MEK)・・・290g

・メチルイソブチルケトン(MIBK)・・・130g

なお、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

【0084】

(調製例3)

<光散乱層用塗布液S3の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S3を調製した。

- 光散乱層用塗布液S3の処方 -

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液(デソライトZ7404、JSR株式会社製)・・・1000g

・UV硬化性樹脂(DPHA、日本化薬株式会社製)・・・310g

・シランカップリング剤(KBM-5103、信越化学工業株式会社製)・・・100g

g

10

20

30

40

50

・シリカ粒子含有液（商品名：オスカル、平均粒径300nm、固形分濃度10質量%、触媒化成工業株式会社製）・・・850g

・メチルエチルケトン（MEK）・・・290g

・メチルイソブチルケトン（MIBK）・・・130g

なお、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

#### 【0085】

（調製例4）

<光散乱層用塗布液S4の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S4を調製した。

-光散乱層用塗布液S4の処方-

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液（デソライトZ7404、JSR株式会社製）・・・1000g

・UV硬化性樹脂（DPHA、日本化薬株式会社製）・・・310g

・シランカップリング剤（KBM-5103、信越化学工業株式会社製）・・・100g

・シリカ粒子含有液（商品名「IPA-ST」、平均粒径400nm、固形分濃度33質量%、日産化学工業株式会社製）・・・255g

・メチルエチルケトン（MEK）・・・290g

・メチルイソブチルケトン（MIBK）・・・130g

なお、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

#### 【0086】

（調製例5）

<光散乱層用塗布液S5の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S5を調製した。

-光散乱層用塗布液S5の処方-

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液（デソライトZ7404、JSR株式会社製）・・・1000g

・UV硬化性樹脂（DPHA、日本化薬株式会社製）・・・310g

・シランカップリング剤（KBM-5103、信越化学工業株式会社製）・・・100g

・シリカ粒子含有液（商品名：MEK-ST、平均粒径30nm、固形分濃度30質量%、日産化学工業株式会社製）・・・290g

・メチルエチルケトン（MEK）・・・290g

・メチルイソブチルケトン（MIBK）・・・130g

また、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

#### 【0087】

（調製例6）

<光散乱層用塗布液S6の調製>

以下に示す処方の光散乱層用塗布液S6を調製した。

-光散乱層用塗布液S6の処方-

・ジルコニア微粒子含有ハードコート組成液（デソライトZ7404、JSR株式会社製）・・・1000g

・UV硬化性樹脂（DPHA、日本化薬株式会社製）・・・310g

・シランカップリング剤（KBM-5103、信越化学工業株式会社製）・・・100g

・シリカ粒子（KE-P10、粒径0.1μm、日本触媒株式会社製）・・・128g

・メチルエチルケトン（MEK）・・・290g

10

20

30

40

50

・メチルイソブチルケトン (MIBK)・・・130g

なお、シリカ粒子の平均粒径は、日機装株式会社製ナノトラックUPA-EX150を用い、数平均粒径を測定した。

【0088】

(比較例1)

- 光散乱層の形成 -

前記光散乱層用塗布液S1を、厚みが3 $\mu$ mになるように製造例1の有機EL表示装置のバリア層上に塗布した。

まず、溶剤乾燥後、160W/cmの空冷メタルハライドランプ(アイグラフィックス株式会社製)を用いて、照度400mW/cm<sup>2</sup>、照射量300mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射して塗布層を硬化させて、製造例1の有機EL表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は8%であった。

【0089】

(実施例1)

< 光散乱層転写材料1の作製 >

厚み100 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレートフィルム基材上に、下記の熱可塑性樹脂層の処方H1からなる塗布液を塗布し、乾燥させて、厚みが20 $\mu$ mの熱可塑性樹脂層を形成した。

- 熱可塑性樹脂層の処方H1 -

・塩化ビニル/酢酸ビニル共重合体(塩化ビニル/酢酸ビニル(質量比)=75/25、重合度:約400、日信化学株式会社製、MPR-TSL)・・・290.0g

・塩化ビニル-酢酸ビニル-マレイン酸共重合体(塩化ビニル/酢酸ビニル/マレイン酸=86/13/1(質量比)、重合度:約400、日信化学株式会社製、MPR-TM)・・・76.0g

・フタル酸ジブチル・・・88.5g

・フッ素系界面活性剤(大日本インキ化学工業株式会社製、F-177P)・・・5.4g

・メチルエチルケトン(MEK)・・・975.0g

【0090】

次に、前記熱可塑性樹脂層上に、下記分離層処方B1からなる塗布液を塗布し、乾燥させて、厚みが1.6 $\mu$ mの分離層を形成した。

- 分離層処方B1 -

・ポリビニルアルコール(株式会社クラレ製、PVA205、鹸化率=80%)・・・173.2g

・フッ素系界面活性剤・・・8g

・蒸留水・・・2800g

【0091】

次に、前記熱可塑性樹脂層及び分離層を有する仮支持体上に、前記光散乱層用塗布液S1を、厚みが3 $\mu$ mになるように塗布し、溶剤乾燥後、160W/cmの空冷メタルハライドランプ(アイグラフィックス株式会社製)を用いて、照度400mW/cm<sup>2</sup>、照射量300mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射して塗布層を硬化させて、光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は8%であった。

【0092】

次に、前記光散乱層上に、厚み12 $\mu$ mのポリプロピレンの被覆シートを圧着し、光散乱層転写材料1を作製した。

【0093】

< 転写 >

作製した光散乱層転写材料1を用いて、以下の方法で光散乱層を転写した。

まず、光散乱層転写材料1の被覆シートを剥離し、光散乱層面を製造例1の有機EL表示装置のバリア層上にラミネーター(大成ラミネーター株式会社製、VP-II)を用い

10

20

30

40

50

て加圧 ( $0.8 \text{ kg/cm}^2$ )、加熱 ( $130$ ) して貼り合わせ、続いて分離層と熱可塑性樹脂層との界面で剥離し、基材と熱可塑性樹脂層を同時に除去し、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。

【0094】

(実施例 2)

- 光散乱層転写材料 2 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 2 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 2 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 2 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8% であった。

10

【0095】

(実施例 3)

- 光散乱層転写材料 3 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 3 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 3 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 3 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8% であった。

20

【0096】

(比較例 2)

- 光散乱層転写材料 4 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 4 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 4 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 4 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8% であった。

30

【0097】

(比較例 3)

- 光散乱層転写材料 5 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 5 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 5 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 5 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8% であった。

40

【0098】

(実施例 4)

< レーザ転写用光散乱層転写材料 1 の作製 >

ポリエチレンテレフタレートフィルム基材の上に、下記処方 of 光熱変換層用組成物 H 2 を、乾燥後のカーボンブラックの塗布量が  $1.8 \text{ g/m}^2$  となるように塗布し、光熱変換層を形成した。

【0099】

- 光熱変換層用組成物 H 2 -

- ・カーボンブラック・・・23 g
- ・界面活性剤 (ニッサンノニオン NS 208.5、日本油脂株式会社製) 5 質量% 水溶液・・・27 g
- ・親水性バインダー (ゼラチン) 10 質量% 水溶液・・・350 g
- ・ポリエチレングリコール (重合度 1,000)・・・12 g
- ・コハク酸 - 2 - エチルヘキシルエステルスルホン酸ソーダ 10 質量% 溶液 (水/メタノール = 1/1)・・・60 ml

50

## 【 0 1 0 0 】

次に、作製された光熱変換層上に、実施例 1 と同様にして、熱可塑性樹脂層、分離層、光散乱層、及び被覆シートを形成して、レーザー転写用光散乱層転写材料 1 を作製した。前記光散乱層は、光散乱層用塗布液 S 1 を用いて形成した。

## 【 0 1 0 1 】

< 転写 >

次に、前記レーザー転写用光散乱層転写材料 1 を用いて、以下の方法で光散乱層を転写した。まず、レーザー転写用光散乱層転写材料 1 の被覆シートを剥離し、光散乱層面を製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上にラミネーター（大成ラミネーター株式会社製、VP - I I）を用いて加圧（ $0.8 \text{ kg/cm}^2$ ）して貼り合わせた。この積層体に対し、光熱変換層位置に焦点を合わせた  $830 \text{ nm}$  のレーザー光を照射し、光熱変換層で発生した熱で光散乱層を高温に加熱することにより、光散乱層を有機 EL 表示装置のバリア層上に転写した。レーザー光は、松下電子株式会社製の半導体レーザー LN 9 8 8 0 から発生させたもので、スポット径を  $10 \mu\text{m}$  にし、XY ステージ上に載せた有機 EL 表示装置を 1 秒辺り  $2 \text{ mm}$  のスピードでスキャンした。レーザーの出力は  $60 \text{ mW}$  であった。続いて、分離層と熱可塑性樹脂層との界面で剥離し、仮支持体と熱可塑性樹脂層を同時に除去し、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は  $8\%$  であった。

10

## 【 0 1 0 2 】

（実施例 5）

- レーザー転写用光散乱層転写材料 2 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 4 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 2 に代えた以外は、実施例 4 と同様にして、レーザー転写用光散乱層転写材料 2 を作製した。

作製したレーザー転写用光散乱層転写材料 2 を用い、実施例 4 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は  $8\%$  であった。

20

## 【 0 1 0 3 】

（実施例 6）

- レーザー転写用光散乱層転写材料 3 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 4 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 3 に代えた以外は、実施例 4 と同様にして、レーザー転写用光散乱層転写材料 3 を作製した。

作製したレーザー転写用光散乱層転写材料 3 を用い、実施例 4 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は  $8\%$  であった。

30

## 【 0 1 0 4 】

（比較例 4）

- レーザー転写用光散乱層転写材料 4 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 4 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 4 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、レーザー転写用光散乱層転写材料 4 を作製した。

作製したレーザー転写用光散乱層転写材料 4 を用い、実施例 4 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は  $8\%$  であった。

40

## 【 0 1 0 5 】

（比較例 5）

- レーザー転写用光散乱層転写材料 5 の作製及び有機 EL 表示装置の作製 -

実施例 4 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 5 に代えた以外は、実施例 4 と同様にして、レーザー転写用光散乱層転写材料 5 を作製した。

作製したレーザー転写用光散乱層転写材料 5 を用い、実施例 4 と同様にして、製造例 1 の有機 EL 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は  $8\%$  であった。

50

## 【 0 1 0 6 】

(実施例 7)

- 光散乱層転写材料 6 の作製及び有機 E L 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層の厚みを  $3.0 \mu\text{m}$  から  $0.5 \mu\text{m}$  に変えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 6 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 6 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 E L 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8 % であった。

## 【 0 1 0 7 】

(実施例 8)

- 光散乱層転写材料 7 の作製及び有機 E L 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層の厚みを  $3.0 \mu\text{m}$  から  $5.0 \mu\text{m}$  に変えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 7 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 7 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 E L 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8 % であった。

## 【 0 1 0 8 】

(比較例 6)

- 光散乱層転写材料 8 の作製及び有機 E L 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層の厚みを  $3.0 \mu\text{m}$  から  $0.3 \mu\text{m}$  に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 8 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 8 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 E L 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8 % であった。

## 【 0 1 0 9 】

(比較例 7)

- 光散乱層転写材料 9 の作製及び有機 E L 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層の厚みを  $3.0 \mu\text{m}$  から  $7.0 \mu\text{m}$  に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 9 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 9 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 E L 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 8 % であった。

## 【 0 1 1 0 】

(比較例 8)

- 光散乱層転写材料 10 の作製及び有機 E L 表示装置の作製 -

実施例 1 において、光散乱層用塗布液 S 1 を光散乱層用塗布液 S 6 に代えた以外は、実施例 1 と同様にして、光散乱層転写材料 10 を作製した。

作製した光散乱層転写材料 10 を用い、実施例 1 と同様にして、製造例 1 の有機 E L 表示装置のバリア層上に光散乱層を形成した。得られた光散乱層における光散乱粒子の体積充填率は 12 % であった。

## 【 0 1 1 1 】

次に、実施例 1 ~ 8 及び比較例 1 ~ 8 の光散乱層を形成した有機 E L 表示装置について、以下のようにして、輝度及び輝度ムラを評価した。結果を表 1 に示す。

## 【 0 1 1 2 】

&lt; 輝度の評価 &gt;

各有機 E L 表示装置を  $2.0 \text{ mA} / \text{cm}^2$  の定電流条件下で連続点灯し、輝度計 (トプコン社製、BM5A) を用いて正面輝度を測定した。

## 【 0 1 1 3 】

&lt; 輝度ムラの評価 &gt;

画面を等分に上下 3 分割、左右 3 分割して計 9 領域に分割した後、各領域の中心輝度 9

10

20

30

40

50

点を測定した。この9点の平均輝度  $I_{ave}$ 、最大輝度  $I_{max}$ 、最小輝度  $I_{min}$  から下記式より輝度ムラ値を算出した。値が小さいほど輝度ムラが少ないことを表す。

$$\text{輝度ムラ}(\%) = \left[ (I_{max} - I_{min}) / I_{ave} \right] \times 100$$

【0114】

【表1】

	転写材料	輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	輝度ムラ(%)
比較例1	なし	30	15
実施例1	光散乱層転写材料1	150	3
実施例2	光散乱層転写材料2	120	3
実施例3	光散乱層転写材料3	180	5
比較例2	光散乱層転写材料4	160	10
比較例3	光散乱層転写材料5	100	3
実施例4	レーザー転写用光散乱層転写材料1	150	3
実施例5	レーザー転写用光散乱層転写材料2	120	3
実施例6	レーザー転写用光散乱層転写材料3	180	5
比較例4	レーザー転写用光散乱層転写材料4	160	10
比較例5	レーザー転写用光散乱層転写材料5	100	3
実施例7	光散乱層転写材料6	120	3
実施例8	光散乱層転写材料7	150	5
比較例6	光散乱層転写材料8	100	3
比較例7	光散乱層転写材料9	130	10
比較例8	光散乱層転写材料10	160	8

【産業上の利用可能性】

【0115】

本発明の光散乱層転写材料は、水及び溶剤を含まないので、有機EL表示装置にダメージを与えることなく、光散乱層を効率よく形成することができるので、光取り出し効率に優れ、輝度ムラの少ない有機EL表示装置の作製に好適である。

【符号の説明】

【0116】

- 1 TFT基板
- 2 背面電極
- 3 有機層
- 4 透明電極
- 5 透明基板
- 11 バリア層
- 12 光散乱層
- 13 仮支持体
- 14 ラミネーター
- 15 光熱変換層
- 16 レーザー光
- 110 有機EL素子
- 120 正極
- 130 有機EL層
- 140 負極
- 150 バリア層

10

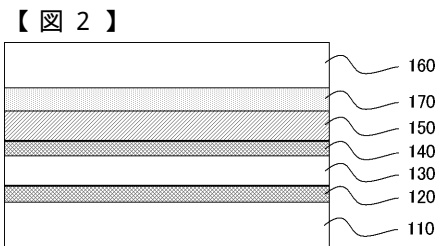
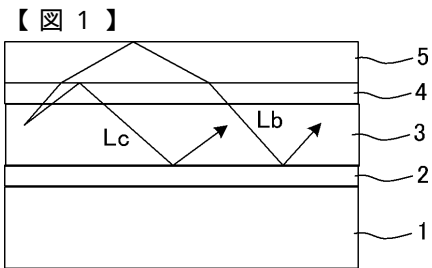
20

30

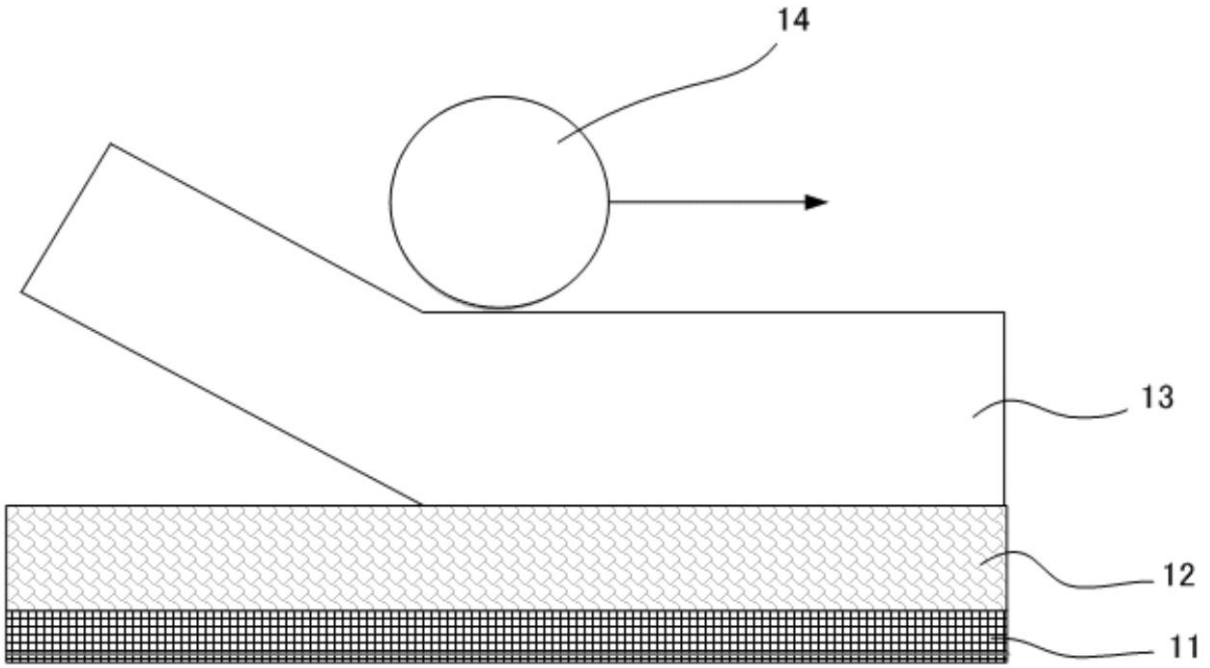
40

50

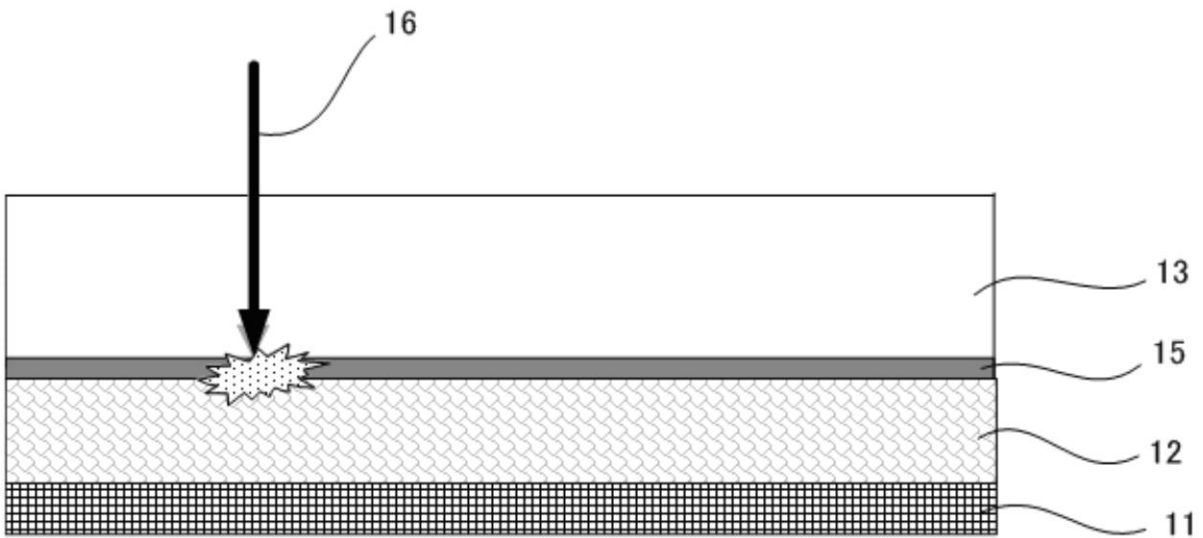
160 透明基板  
170 光散乱層



【 図 3 】



【 図 4 】



专利名称(译)	光散射层转移材料，有机EL显示装置及其制造方法		
公开(公告)号	<a href="#">JP2009259802A</a>	公开(公告)日	2009-11-05
申请号	JP2009069817	申请日	2009-03-23
[标]申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
[标]发明人	实藤 竜二		
发明人	实藤 竜二		
IPC分类号	H05B33/02 H01L51/50 G02B5/02		
FI分类号	H05B33/02 H05B33/14.A G02B5/02.B		
F-TERM分类号	2H042/BA02 2H042/BA12 2H042/BA15 2H042/BA20 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC05 3K107/CC33 3K107/CC45 3K107/EE28 3K107/FF14 3K107/FF15 3K107/GG09		
代理人(译)	广田幸一		
优先权	2008081809 2008-03-26 JP		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

由于其不包含水和溶剂，因此能够在不损坏有机EL显示装置的情况下有效地形成光散射层的光散射层转印材料，并且使用该光散射层转印材料，提供一种具有优异的光提取效率并且亮度不均少的有机EL显示装置。用于在有机EL显示装置中的负极上在负极上形成光散射层的光散射层转印材料，所述有机EL显示装置在正极和负极，临时支撑体和临时支撑体之间至少具有发光层。所述主体上至少具有光散射层，所述光散射层至少包含透光树脂和光散射颗粒，所述光散射颗粒的平均粒径为50nm~300nm的光散射层转移材料是的。在临时支撑体和发光层之间具有光热转换层的实施方式是优选的。[选择图]图3

