

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5286637号
(P5286637)

(45) 発行日 平成25年9月11日 (2013.9.11)

(24) 登録日 平成25年6月14日 (2013.6.14)

(51) Int.Cl.

F I

H05B 33/10	(2006.01)	H05B 33/10	
H05B 33/04	(2006.01)	H05B 33/04	
H01L 51/50	(2006.01)	H05B 33/14	A
H05B 33/26	(2006.01)	H05B 33/26	Z

請求項の数 22 (全 36 頁)

(21) 出願番号 特願2006-16122 (P2006-16122)
 (22) 出願日 平成18年1月25日 (2006.1.25)
 (65) 公開番号 特開2007-200645 (P2007-200645A)
 (43) 公開日 平成19年8月9日 (2007.8.9)
 審査請求日 平成21年1月19日 (2009.1.19)

(73) 特許権者 000001270
 コニカミノルタ株式会社
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
 (74) 代理人 110000925
 特許業務法人信友国際特許事務所
 (72) 発明者 村山 真昭
 東京都日野市さくら町1番地コニカミノル
 タテクノロジーセンター株式会社内

審査官 池田 博一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法、有機エレクトロルミネッセンスパネル

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基板の上に第1電極と、前記第1電極の上に形成された発光層を含む少なくとも1層の有機化合物層と、前記有機化合物層の上に第2電極とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子を、接着剤層を介して封止部材により封止する有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法において、

前記第2電極が2層構成を有し、かつ、前記第2電極のうち、前記有機化合物層に接する層は金属又は金属化合物を含む層であり、もう1層は有機化合物材料のみからなる層であり、

前記第2電極を、少なくとも2回に分けて積層し形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 2】

前記金属又は金属化合物を含む層が、金属又は金属化合物からなる層であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 3】

前記有機化合物材料は、前記有機化合物層を形成する材料であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 4】

前記第2電極の形成が気相堆積法であることを特徴とする請求項1～3の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

10

20

【請求項 5】

前記第 2 電極を少なくとも 2 回に分けて積層し形成する際、該第 2 電極を形成する基板と、該第 2 電極の材料の蒸着源との位置関係が積層する毎に異なることを特徴とする請求項 1 ~ 4 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 6】

前記第 2 電極を少なくとも 2 回に分けて積層し形成する際、各層の堆積速度を（下層の堆積速度に対して）変化させることを特徴とする請求項 1 ~ 5 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 7】

前記第 2 電極の総厚が 100 nm 以上、2 μm 以下であり、且つ第 2 電極を形成している各層の厚さが 10 nm 以上であることを特徴とする請求項 1 ~ 6 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

10

【請求項 8】

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、樹脂基材と、ガスバリア層とを有した可撓性部材であることを特徴とする請求項 1 ~ 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 9】

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、ガラス板であることを特徴とする請求項 1 ~ 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 10】

20

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、金属シートであることを特徴とする請求項 1 ~ 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 11】

前記接着剤層が前記封止部材に設けられていることを特徴とする請求項 1 ~ 10 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 12】

前記接着剤層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光部と、該発光部の周面に設けられていることを特徴とする請求項 1 ~ 11 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【請求項 13】

30

基板の上に第 1 電極と、前記第 1 電極の上に形成された発光層を含む少なくとも 1 層の有機化合物層と、前記有機化合物層の上に第 2 電極とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子を、接着剤層を介して封止部材により封止された有機エレクトロルミネッセンスパネルにおいて、

前記第 2 電極が 2 層構成を有し、かつ、前記第 2 電極のうち、前記有機化合物層に接する層は金属又は金属化合物を含む層であり、もう 1 層は有機化合物材料のみからなる層であり、前記第 2 電極が、少なくとも 2 回に分けて積層し形成さ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パネル。

【請求項 14】

前記金属又は金属化合物を含む層が、金属又は金属化合物からなる層であることを特徴とする請求項 13 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

40

【請求項 15】

前記有機化合物材料は、前記有機化合物層を形成する材料であることを特徴とする請求項 13 または 14 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 16】

前記第 2 電極が気相堆積法で形成されていることを特徴とする請求項 13 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 17】

前記第 2 電極の総厚が 100 nm 以上、2 μm 以下であり、且つ第 2 電極を形成している各層の厚さが 10 nm 以上であることを特徴とする請求項 13 ~ 16 の何れか 1 項に記

50

載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 18】

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、樹脂基材と、ガスバリア層とを有した可撓性部材であることを特徴とする請求項 13 ~ 17 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 19】

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、ガラス板であることを特徴とする請求項 13 ~ 17 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 20】

前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、金属シートであることを特徴とする請求項 13 ~ 17 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

10

【請求項 21】

前記接着剤層が前記封止部材に設けられていることを特徴とする請求項 13 ~ 20 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【請求項 22】

前記接着剤層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光部と、該発光部の周面に設けられていることを特徴とする請求項 13 ~ 21 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本発明は有機エレクトロルミネッセンスパネル（以下、有機 EL パネルとも言う）の製造方法及びこの製造方法により製造された有機 EL パネルに関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、有機物質を使用した有機 EL 素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子や書き込み光源アレイとしての用途が有望視されており、活発な研究開発が進められている。有機 EL 素子は、基板上に形成された第 1 電極（陽極又は陰極）と、その上に積層された有機発光物質を含有する有機化合物層（単層部又は多層部）すなわち発光層と、この発光層上に積層された第 2 電極（陰極又は陽極）とを有する薄膜型の素子である。この様な有機 EL 素子に電圧を印加すると、有機化合物層に陰極から電子が注入され陽極から正孔が注入される。この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出することにより発光が得られることが知られている。

30

【0003】

この様に、有機 EL 素子は薄膜型の素子であるため、1 個又は複数個の有機 EL 素子を基板上に形成した有機 EL パネルをバックライト等の面光源として利用した場合には、面光源を備えた装置を容易に薄型にすることが出来る。又、画素としての有機 EL 素子を基板上に所定個数形成した有機 EL パネルをディスプレイパネルとして用いて表示装置を構成した場合には視認性が高い、視野角依存性がないなど、液晶表示装置では得られない利点がある。

40

【0004】

ところで、有機 EL 素子に用いられる有機発光材料等の有機物は水分や酸素等に弱く性能が劣化し、又電極も、酸化により大気中では特性が急激に劣化するため、これらの劣化を防止ために最上層に封止層を設けて使用しているのが一般的である。

【0005】

有機 EL 素子の封止方法としてはこれまでに多くの検討がされてきており、ケーシングタイプの封止方法と、密着タイプの封止方法との 2 つの方法に大別される。

【0006】

ケーシングタイプの封止方法とは有機 EL 素子をケース内に入れて外界と遮断し、前記

50

のケース内に有機EL素子と共に所定の封止用の気体又は流体を充填しておくことにより封止する方法である。密着タイプの封止方法とは、基板上に形成されている有機EL素子の背面（基板側からみて素子の後ろ）にガラス板等の封止材を接着剤で面接着することにより封止する方法である。

【0007】

ケーシングタイプの封止方法の場合は、薄型とすることが出来ない、ケース内に封止用の気体又は流体を充填するための工程を必要とする、大量生産には不向き等の課題があるため、薄型対応が可能、大量生産が比較的容易、高い封止効果を容易に得ることが可能であることから密着タイプの封止方法が主流となり検討が進められている。

【0008】

密着タイプの封止方法としては、例えば特開平4-212284号公報、特開平5-182759号公報等に記載の様にGeO、SiO₂等の無機化合物からなる保護膜の上に接着剤、光硬化性樹脂等を介してガラス基板を固着する方法が知られている。特開2001-307871号公報にはバリア層とJIS K 7210規定のメルトフローレートが5g/10min以上、20g/10min以下の熱可塑性接着性樹脂からなるシーラント層を含む封止フィルムで密着封止した有機EL素子が知られている。

【0009】

しかしながら、これらの方法では接着剤、光硬化性樹脂が硬化する時、体積が収縮することから残留応力が発生し、この残留応力は、封止対象の有機EL素子と接着剤や光硬化性樹脂との間にGeOやSiO₂等の膜があったとしてもその膜厚がμmオーダーと薄いと有機ELに伝わってしまう。そして、残留応力は曲率半径の小さな部分で特に強くなるので、有機EL素子に伝播した残留応力は有機EL素子の端部等に集中する。この結果、素子の電極端部等が押潰され、陽極と陰極とが接触してショートが発生することが知られており、接着剤、光硬化性樹脂を使用した密着タイプの封止方法で接着剤、光硬化性樹脂が硬化する時の残留応力の緩和対策が検討されてきた。例えば、有機EL素子と接着剤の間に流体の応力緩和層を設け、封止材を接着剤で固着する方法が知られている（例えば、特許文献1を参照。）。有機EL素子上に接着剤層として、有機EL素子側の接着剤の収縮率を、封止材側の接着剤の収縮率よりも小さい接着剤を使用し2層とすることで接着剤の硬化収縮による応力の影響を発光素子が受けない様にして封止材を接着剤で固着する方法が知られている（例えば、特許文献2を参照。）。

【0010】

特許文献1、特許文献2に記載の密着タイプの封止方法により、大量生産が比較的容易、高い封止効果を有した薄型の有機EL素子対応が可能となるのであるが、未だ密着封止（有機エレクトロルミネッセンス素子上への面接着）に起因する発光素子へのダメージが散見され、対応が不十分となっている。又、応力緩和層や複数接着剤等、新たな機能層の設置により、工程が複雑となり生産効率が上がらない要因の1つになっている。

【0011】

このような状況から、封止材を接着剤を介して固着する密着タイプの封止方法で有機エレクトロルミネッセンス素子（以下有機EL素子とも言う）を封止した有機ELパネルを製造する時、有機EL素子の性能劣化を生じさせない有機ELパネルの製造方法及び有機ELパネルの開発が望まれている。尚、本発明では基板上に第一電極と有機層と第二電極まで形成した状態を、有機EL素子と言い、封止部材で密着封止した状態を有機ELパネルと言う。

【特許文献1】特開平8-124677号公報

【特許文献2】特開2003-109750号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

本発明は上記状況を鑑みなされたものであり、その目的は、封止材を接着剤を介して固着する密着タイプの封止方法で封止した有機ELパネルを製造する時に、有機EL素子の

10

20

30

40

50

性能劣化を生じさせない有機 E L パネルの製造方法及び有機 E L パネルを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明の上記目的は、下記の構成により達成された。

【0014】

1. 基板の上に第1電極と、前記第1電極の上に形成された発光層を含む少なくとも1層の有機化合物層と、前記有機化合物層の上に第2電極とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子を、接着剤層を介して封止部材により封止する有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法において、

10

前記第2電極は2層構成を有し、かつ、前記第2電極のうち、前記有機化合物層に接する層は金属又は金属化合物を含む層であり、もう1層は有機化合物材料のみからなる層であり、前記第2電極を、少なくとも2回に分けて積層し形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

2. 前記金属又は金属化合物を含む層が、金属又は金属化合物からなる層であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0015】

3. 前記有機化合物材料は、前記有機化合物層を形成する材料であることを特徴とする前記1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

4. 前記第2電極の形成が気相堆積法であることを特徴とする前記1～3の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

20

【0016】

5. 前記第2電極を少なくとも2回に分けて積層し形成する際、該第2電極を形成する基板と、該第2電極の材料の蒸着源との位置関係が積層する毎に異なることを特徴とする前記1～4の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0017】

6. 前記第2電極を少なくとも2回に分けて積層し形成する際、各層の堆積速度を（下層の堆積速度に対して）変化させることを特徴とする前記1～5の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0018】

30

7. 前記第2電極の総厚が100nm以上、2μm以下であり、且つ第2電極を形成している各層の厚さが10nm以上であることを特徴とする前記1～6の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0021】

8. 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、樹脂基材と、ガスバリア層とを有した可撓性部材であることを特徴とする前記1～7の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0022】

9. 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、ガラス板であることを特徴とする前記1～7の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

40

【0023】

10. 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、金属シートであることを特徴とする前記1～7の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0024】

11. 前記接着剤層が前記封止部材に設けられていることを特徴とする前記1～10の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

【0025】

12. 前記接着剤層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光部と、該発光部の周面に設けられていることを特徴とする前記1～11の何れか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

50

【 0 0 2 6 】

1 3 . 基板の上に第 1 電極と、前記第 1 電極の上に形成された発光層を含む少なくとも 1 層の有機化合物層と、前記有機化合物層の上に第 2 電極とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子を、接着剤層を介して封止部材により封止された有機エレクトロルミネッセンスパネルにおいて、

前記第 2 電極が 2 層構成を有し、かつ、前記第 2 電極のうち、前記有機化合物層に接する層は金属又は金属化合物を含む層であり、もう 1 層は有機化合物材料のみからなる層であり、前記第 2 電極が、少なくとも 2 回に分けて積層し形成さ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パネル。

1 4 . 前記金属又は金属化合物を含む層が、金属又は金属化合物からなる層であることを特徴とする前記 1 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

10

【 0 0 2 7 】

1 5 . 前記有機化合物材料は、前記有機化合物層を形成する材料であることを特徴とする前記 1 3 または 1 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

1 6 . 前記第 2 電極が気相堆積法で形成されていることを特徴とする前記 1 3 ~ 1 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【 0 0 2 8 】

1 7 . 前記第 2 電極の総厚が 1 0 0 n m 以上、2 μ m 以下であり、且つ第 2 電極を形成している各層の厚さが 1 0 n m 以上であることを特徴とする前記 1 3 ~ 1 6 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

20

【 0 0 3 1 】

1 8 . 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、樹脂基材と、ガスバリア層とを有した可撓性部材であることを特徴とする前記 1 3 ~ 1 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【 0 0 3 2 】

1 9 . 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、ガラス板であることを特徴とする前記 1 3 ~ 1 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【 0 0 3 3 】

2 0 . 前記基板と前記封止部材又はどちらか一方が、金属シートであることを特徴とする前記 1 3 ~ 1 7 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

30

【 0 0 3 4 】

2 1 . 前記接着剤層が前記封止部材に設けられていることを特徴とする前記 1 3 ~ 2 0 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【 0 0 3 5 】

2 2 . 前記接着剤層が前記有機エレクトロルミネッセンス素子の発光部と、該発光部の周面に設けられていることを特徴とする前記 1 3 ~ 2 1 の何れか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネル。

【 発明の効果 】

【 0 0 3 6 】

密着タイプの封止方法で封止した有機 E L パネルを製造するために、封止材を接着剤で固着する時有機 E L 素子の性能劣化を生じさせない有機 E L パネルの製造方法及び有機 E L パネルを提供することが出来、高品質の薄型・軽量の有機 E L パネルの生産が可能となった。

40

【 発明を実施するための最良の形態 】

【 0 0 3 7 】

本発明の実施の形態を図 1 ~ 図 8 を参照しながら説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【 0 0 3 8 】

図 1 は有機 E L パネルの層構成の一例を示す概略断面図である。

【 0 0 3 9 】

50

図中、1は有機ELパネルを示す。有機ELパネル1は、基板101上に、第1電極102と、正孔輸送層（正孔注入層）103と、有機化合物層（発光層）104と、電子注入層105と、第2電極106と、接着剤層107と、封止部材108とをこの順番に有している。本図に示される有機ELパネルにおいて、第1電極102と正孔輸送層103の間に正孔注入層（不図示）を設けてもよい。又、第2電極106と有機化合物層（発光層）104と電子注入層105との間に電子輸送層（不図示）を設けてもよい。基板101と封止部材108又はどちらか一方が、樹脂基材と、ガスバリア層とを有した可撓性封止部材、ガラス板、金属シートであることが好ましい。

【0040】

本図に示す有機ELパネルの層構成は一例を示したものであるが、他の代表的な有機EL素子の層構成としては次の構成が挙げられる。

【0041】

- (1) 基板 / 第1電極（陽極） / 発光層 / 電子輸送層 / 第2電極（陰極） / 封止部材
- (2) 基板 / 第1電極（陽極） / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 第2電極（陰極） / 封止部材
- (3) 基板 / 第1電極（陽極） / 正孔輸送層（正孔注入層） / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層（電子注入層） / 第2電極（陰極） / 封止部材
- (4) 基板 / 第1電極（陽極） / 陽極バッファ層（正孔注入層） / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層（電子注入層） / 第2電極（陰極） / 封止部材

有機ELパネルの場合、通常、第1電極（陽極）102側が観察側になり、第1電極（陽極）102には、ITO（酸化スズと酸化インジウム混合物）、IZO（酸化亜鉛と酸化インジウム混合物）、ZnO、SnO₂、In₂O₃等が知られている。中でも、ITO電極は、90%以上の高い光透過率と、10Ω/□以下の低いシート抵抗値が可能で、液晶ディスプレイや太陽電池などの透明電極としても用いられている。又、IZO電極は、形成時に基板を加熱せずに所定の低い抵抗値が得られ、ITO電極よりも膜表面が平滑であるという利点がある。

【0042】

本発明は図1に示す様に、基板上に少なくとも1つ形成された有機EL素子を封止部材を使用し接着剤を介して密着封止した有機ELパネルを製造する時に、接着剤の硬化収縮による応力の影響を発光素子が受けない様にして製造する有機ELパネルの製造方法及び有機ELパネルに関するものである。

【0043】

図2は図1のTで示される部分の拡大概略断面図である。

【0044】

封止部材108は樹脂基材108aと、ガスバリア層108bとを有する可撓性封止部材の場合を示している。樹脂基材108aは単体でもよいし、積層体であってもよく必要に応じて適宜選択することが可能である。ガスバリア層108bは単体でもよいし、積層体であってもよく必要に応じて適宜選択することが可能である。封止部材108は接着剤層107を介して第2電極106の上及び第2電極の周面に貼合されている。

【0045】

本図では封止部材108として、樹脂基材108aと、ガスバリア層108bとを有する可撓性封止部材を使用した場合を示しているが、他の封止部材108としては、ガラス板、金属シートを使用することが可能となっている。

【0046】

第2電極106は少なくとも第1層106a（電子注入層105と接する層）と第2層106b（接着剤層107と接する層）とを有する多層構成を有しており、第1層106aと第2層106bとは異なる材料から形成されていることが好ましい。第1層106aを形成する材料としては金属又は金属化合物が好ましく、第2層106bを形成する材料としては金属、金属化合物又は有機化合物が好ましい。

【 0 0 4 7 】

有機化合物としては有機エレクトロルミネセンス層を形成する有機化合物が挙げられる。有機エレクトロルミネセンス層を形成する有機化合物に付いては後述する。尚、有機エレクトロルミネセンス層とは図 1 において基材 1 0 1 ~ 電子注入層 1 0 5 までを構成する層を言う。

【 0 0 4 8 】

金属又は金属化合物としては、仕事関数の小さい (4 e V 以下) 金属 (電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム - カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム / 銅混合物、マグネシウム / 銀混合物、マグネシウム / アルミニウム混合物、マグネシウム / インジウム混合物、アルミニウム / 酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、インジウム、リチウム / アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム / 銀混合物、マグネシウム / アルミニウム混合物、マグネシウム / インジウム混合物、アルミニウム / 酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、リチウム / アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

【 0 0 4 9 】

第 2 電極 1 0 6 の総厚は、密着性、抵抗値、成膜時間等を考慮し、1 0 0 n m 以上、2 μ m 以下が好ましく、且つ第 2 電極 1 0 6 を形成している第 1 層 1 0 6 a 及び第 2 層 1 0 6 b の各の厚さは、密着性、抵抗値等を考慮し、1 0 n m 以上であることが好ましい。

【 0 0 5 0 】

第 2 電極 1 0 6 は少なくとも 2 回に分けて気相堆積法で形成することで積層されている。尚、第 2 電極 1 0 6 の積層の方法に付いては図 4 ~ 図 6 で説明する

本図に示すように、第 2 電極を少なくとも 2 回に分けて積層し形成することで次の効果が挙げられる。

1) 接着剤の硬化収縮による残留応力の伝搬が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、有機 E L 素子のダメージが軽減される。

2) 封止部材の貼合圧着応力の伝搬が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

3) 第 2 電極を多数回に分けて成膜することで、成膜欠陥 (ピンホール) の抑制が可能となる。

4) 成膜欠陥 (ピンホール) が抑制されることから、接着剤の硬化時に発生するアウトガスの侵入が抑制され、有機 E L 素子のダメージが軽減される。

5) 接着剤の硬化時に発生するアウトガス等による第 2 電極の化学的腐食 (腐食の伝搬) が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

又、第 2 電極を少なくとも 2 回に分けて積層し形成する際、例えば、第 1 層 1 0 6 a を金属又は金属化合物で形成し、第 2 層 1 0 6 b を金属、金属化合物又は、有機化合物で形成することで次の効果が挙げられる。

1) 第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面がより強調され、各ダメージの伝搬がより抑制され、有機 E L 素子のダメージが軽減される。

2) 第 2 層の材料が有機化合物の場合、有機エレクトロルミネセンス層を構成する材料と同じ材料にすることで、成膜装置 (気相堆積装置) が共用出来、装置の簡素化や小型化が図れる。

【 0 0 5 1 】

図 3 は枚葉基板を使用した有機 E L 素子の製造方法の模式図である。

【 0 0 5 2 】

図中、2 は製造装置を示す。2 0 1 は枚葉基板 2 0 1 a を工程に供給する供給部を示す。2 0 2 は供給部 2 0 1 から供給された枚葉基板 2 0 1 a の表面に第 1 電極が蒸着される

10

20

30

40

50

前に、蒸着性をよくするために枚葉基板 201a の表面を清掃するための基板洗浄処理装置を示す。203 は洗浄処理が終了した枚葉基板 201a 上に第 1 電極 a を形成する第 1 電極形成気相堆積装置を示す。204 は第 1 電極 a が形成された枚葉基板 201a の第 1 電極 a 上に正孔輸送層 b を形成する正孔輸送層形成気相堆積装置を示す。205 は正孔輸送層 b が形成された枚葉基板 201a の正孔輸送層 b 上に発光層 c を形成する発光層形成気相堆積装置を示す。206 は発光層 c が形成された枚葉基板 201a の発光層 c 上に電子注入層 d を形成する電子注入層形成気相堆積装置を示す。207a は電子注入層 d が形成された枚葉基板 201a の電子注入層 d 上に少なくとも 2 層を有する第 2 電極の第 1 層 e を形成する第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置を示し、207b は第 2 電極の第 1 層 e 上に第 2 層 f を形成する第 2 層用第 2 電極形成気相堆積装置を示す。208 は有機 EL 素子 4 を回収する回収部を示す。第 1 電極形成気相堆積装置 203 ~ 第 2 層用第 2 電極形成気相堆積装置 207b は何れも同じ構成をなしている。第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置及び第 2 層用第 2 電極形成気相堆積装置の構成に関しては図 4 で詳細に説明する。

10

【0053】

第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置 207a による堆積速度に対して、第 2 層用第 2 電極形成気相堆積装置 207b の堆積速度は、成膜欠陥（ピンホール）の抑制等を考慮し、変化させることが好ましい。尚、堆積速度の変化量は、10% 以上、1000% 以下が成膜時間や成膜による有機 EL 素子の温度上昇を考慮し好ましい範囲である。

【0054】

尚、本図では第 2 電極が 2 層から形成される場合を示しているため、2 つの気相堆積装置を配設した場合を示しているが気相堆積装置の数は第 2 電極を構成する層の数に応じて配設することが可能である。この場合も各層の成膜速度を下層の堆積速度に対して 10% 以上、1000% 以下で変化させることが好ましい。又、第 2 電極を構成する材料が同じ場合は、各層毎に気相堆積装置を配設しなくとも、同じ気相堆積装置を使用することも可能であり、装置の簡素化や小型化等の面で好ましい。

20

【0055】

図 4 は図 3 に示される第 2 電極の第 1 層形成用の第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置の概略図である。図 4 の (a) は図 3 に示される第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置の拡大概略図である。図 4 の (b) は第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置を構成している各部、各手段の関係を示す概略ブロック図である。

30

【0056】

図中、207a は第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置を示す。第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置 207a は蒸着室 A と、基板保持手段 B と、マスク配置手段 C と、原料蒸発手段 D と、制御手段 E とを有している。尚、原料蒸発手段 D は堆積膜形成領域の端辺の法線の外側に置かれている。

【0057】

A1 は蒸着室 A に配設された排気口を示し減圧手段である排気手段（不図示）に繋がっており、メインバルブ A2 を介して蒸着室 A を設定した真空度にするようになっている。蒸着室 A の真空度は、必要に応じて適宜設定することが可能となっている。A3 は蒸着室 A の真空度を測定する測定手段である真空度測定計を示す。真空度測定計としては特に限定はなく、例えば電離真空計、ピラニ真空計が挙げられる。A4 は不活性ガス導入口を示し、必要に応じてガス導入バルブ A5 を介して N_2 、Ar、Ne、He 等の不活性ガスが雰囲気ガスとして導入される。

40

【0058】

基板保持手段 B は、基板保持部材 B1 と、温度測定手段 B2 と、温度制御機構 B3 とを有し、温度制御機構 B3 により温度制御が可能となっている。基板保持部材 B1 に保持された電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 201a（図 3 を参照）は複数枚配置してもよく、基板保持部材 B1 のいかなる位置に配置することも可能となっている。基板保持部材 B1 としては、基板の平面性を保持し保持出来れば特に限定はなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム等が挙げられる。

50

【 0 0 5 9 】

温度測定手段 B 2 は基板保持部材 B 1 に配置された電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 2 0 1 a (図 3 を参照) の温度を測定し、結果を制御手段 E にフィードバックする様になっている。フィードバックされた情報に従って、基板保持部材 B 1 に熱媒体を循環させる温度制御機構 B 3 を制御することで、基板上へ原料を堆積中に、基板の温度を一定に保持すること等が可能となっている。温度測定手段 B 2 としては特に限定はなく、例えば熱電対、温度センサー等が挙げられる。

【 0 0 6 0 】

B 4 は基板保持部材 B 1 を回転させる回転手段を示す。回転手段は特に限定はなく、例えば回転モーターでもよいし、プーリーを介してベルトであってもよい。本図は回転モーターの場合を示している。又、基板保持部材 B 1 は回転させてもよいし、固定であってもよいが成膜均一性を考慮し、回転させることが好ましい。

10

【 0 0 6 1 】

マスク配置手段 C は、マスク配置部材 C 1 と、温度測定手段 C 4 と、温度制御機構 C 5 とを有し、温度制御機構 C 5 により温度制御が可能となっている。温度測定手段 C 4 は基板保持部材 B 1 に配置された温度測定手段 B 2 と同じであることが好ましい。

【 0 0 6 2 】

C 3 はマスク配置部材 C 1 に配置されたマスクを示す。マスク配置部材 C 1 としては、マスク C 3 の平面性を保持し配置出来れば特に限定はなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、銅等が挙げられる。マスク配置部材 C 1 は基板保持部材 B 1 に取り付けられている。

20

【 0 0 6 3 】

A 6 は電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 2 0 1 a への原料 (第 2 電極を構成する第 1 層形成用原料) の堆積を制御する原料堆積制御手段の遮蔽板を示す。遮蔽板 A 6 はどのような形式でも構わないが、機能としては完全に閉じることで電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 2 0 1 a (図 3 を参照) への蒸気堆積を完全に防止出来る形式のものが好ましい。尚、本図に示す遮蔽板は開閉式であり、開閉を制御することが可能となっている。A 7 は遮蔽板 A 6 の駆動手段を示す。

【 0 0 6 4 】

温度制御機構 B 3 は、加熱・冷却が可能な媒体の温度制御手段 (不図示) と、加熱・冷却が可能な媒体を基板保持手段 B の基板保持部材 B 1 及びマスク配置手段 C のマスク配置部材 C 1 へ循環させる循環手段 (不図示) と、媒体の循環量の循環量制御手段 (不図示) とを有している。温度制御機構 B 3 により、基板保持部材 B 1、マスク配置部材 C 3 へ所定温度に制御された媒体を循環させることで、基板保持部材 B 1 に配置された電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 2 0 1 a (図 3 を参照)、及びマスク配置部材 C 1 に配置されたマスク C 3 を所定温度とすることが可能となっている。

30

【 0 0 6 5 】

媒体としては、例えば、合成系有機熱媒体油等が挙げられる。媒体の温度制御手段としては、例えば、ヒーターとチラーの組合せ等が挙げられる。循環量制御手段としては、例えば、フローメーターとポンプの組合せ等が挙げられる。

40

【 0 0 6 6 】

原料蒸発手段 D は堆積膜形成領域の端辺の法線の外側に相当する蒸着室 A の下部に配設されており、加熱手段 (不図示) を有する原料容器 D 1 と、原料容器 D 1 内の原料 (第 2 電極の第 1 層形成用原料) D 2 の温度を測定するための原料温度測定手段 D 3 と、原料容器 D 1 の加熱用の電流供給部 D 4 と、原料容器 D 1 の開口部 D 5 の開口率を制御する開口率制御手段の蓋 D 6 とを有している。原料容器 D 1 の形状は特に限定はなく、例えばライン型、スポット型等が挙げられ、基板 2 0 1 a の大きさにより配設する数は適宜選択することが可能ある。原料容器 D 1 の加熱手段としては特に限定はなく、例えばスパッタ方式、抵抗加熱方式等が挙げられる。本図では抵抗加熱方式の場合を示している。蓋 D 6 はどのような形でもよく、原料蒸発手段の口を全て覆う形状でなくてもよい。蓋 D 6 は原料 D

50

2 が設定した温度に達する迄は、安定した堆積膜面を得るために、制御可能な可動式の蓋とすることが好ましい。D 7 は蓋 D 6 を移動させるための移動手段を示す。

【 0 0 6 7 】

原料温度測定手段 D 3 の結果を制御手段 E にフィードバックし、予め制御手段 E に入力してある設定温度に対し、演算処理し設定温度を維持する様に制御することが好ましい。これらの制御と可動式の蓋 D 6 の制御と組合せ、設定温度に達したのに合わせ蓋を開ける様な制御も可能である。

【 0 0 6 8 】

原料容器 D 1 内の原料（第 2 電極の第 1 層形成用原料）D 2 は、金属又は金属化合物である。第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置 2 0 7 a を構成している各部、各手段の関係を 10
図 4 の（b）に示す概略ブロック図により説明する。基板の温度測定手段 B 2 より測定された基板保持手段 B に保持された電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 2 0 1 a の温度に関する情報は制御手段 E の C P U に入力される。制御手段 E に入力された情報はメモリーに予め入力されている設定温度と演算処理を行い、基板保持手段 B に配設された、所定の温度に調整された熱媒体を循環させる温度制御機構 B 3 を制御し、媒体の循環量と媒体の温度とを制御することが可能となっている。

【 0 0 6 9 】

マスクの温度測定手段 C 4 により測定されたマスク配置部材 C 1 に保持されたマスク C 3 の温度に関する情報は制御手段 E の C P U に入力される。制御手段 E に入力された情報はメモリーに予め入力されている設定温度と演算処理を行い、マスク配置部材 C 1 に配設 20
された、所定の温度に調整された媒体を循環させる温度制御機構 C 5 を制御し、熱媒体の循環量と料熱媒体の温度とを制御することが可能となっている。この時、温度制御機構 C 5 による媒体の循環量と媒体の温度は、電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 2 0 1 a（図 3 を参照）の温度履歴に合わせマスク C 3 の温度を制御する方式となっている。

【 0 0 7 0 】

原料温度測定手段 D 3 により測定された原料容器 D 1 内の原料 D 2 の結果を制御手段 E にフィードバックし、予め制御手段 E に入力してある設定温度に対し、演算処理し、原料容器 D 1 に配設された加熱手段（不図示）の電流供給部 D 4 の電流調整を行うことで原料 D 2 の温度を一定に制御することが可能となっている。原料 D 2 の温度を指定温度に保持 30
することで、電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 2 0 1 a（図 3 を参照）に略一定温度の原料が気相堆積され安定した第 2 電極の第 1 層の形成が可能となる。

【 0 0 7 1 】

時間により換算された原料容器 D 1 内の原料 D 2 の量に関する情報は制御手段 E の C P U に入力される。制御手段 E に入力された情報はメモリーに予め入力されている原料容器 D 1 内の原料 D 2 の量と演算処理を行い、移動手段（付図示）D 7 を稼働させ原料容器 D 1 の蓋 D 6 を移動させ開口率を変えることが可能となっている。例えば原料容器 D 1 内の原料 D 2 の量が 1 0 0 % の時は開口率を 1 0 0 % とし、原料容器 D 1 内の原料 D 2 の量が 5 0 % の時は 5 0 % とするようになっている。

【 0 0 7 2 】

原料 D 2 の堆積速度を略一定に保持することで、電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 2 0 1 a（図 3 を参照）の電子注入層 d（図 3 を参照）の上に一定の原料 D 2 が気相堆積され安定した第 2 電極の第 1 層の形成が可能となる。

【 0 0 7 3 】

原料温度測定手段 D 3 により測定された原料容器 D 1 内の原料 D 2 の温度に関する情報は制御手段 E の C P U に入力される。制御手段 E に入力された情報はメモリーに予め入力されている原料堆積開始温度と演算処理を行い、駆動手段 A 7 を稼働させ遮蔽板 A 6 の開閉を行うことで、蒸着室内の原料 D 2 の濃度が不安定な加熱初期の電子注入層 d（図 3 を参照）までが形成された基板 2 0 1 a（図 3 を参照）への気相堆積防止が可能となっている。例えば予め入力されている原料堆積開始温度と原料温度測定手段 D 3 により測定され 50

た原料容器 D 1 内の原料 D 2 の温度との差が $-10 \sim +10$ になってから少なくとも 30 sec 経過した後、遮蔽板を開き、20 以上になったら閉じる様にすることが好ましい。

【0074】

又、原料 D 2 の温度測定結果を、電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 201 a (図 3 を参照) の温度制御機構 B 3 及びマスク C 3 の温度制御機構 C 5 にフィードバックして、電子注入層 d (図 3 を参照) までが形成された基板 201 a (図 3 を参照) 及びマスク C 3 の加熱開始のタイミングを決めるのに使用することも勿論可能である。

【0075】

図 5 は図 3 に示される第 2 電極の第 2 層形成用の第 2 電極第 2 層形成用気相堆積装置の概略図である。

10

【0076】

図中、207 b は第 2 電極第 2 層形成用気相堆積装置を示す。

【0077】

D' は原料蒸発手段を示す。原料蒸発手段 D' は、加熱手段 (不図示) を有する原料容器 D' 1 と、原料容器 D' 1 内の原料 (第 2 電極の第 2 層形成用原料) D' 2 の温度を測定するための原料温度測定手段 D' 3 と、原料容器 D' 1 の加熱用の電流供給部 D' 4 と、原料容器 D' 1 の開口部 D' 5 の開口率を制御する開口率制御手段の蓋 D' 6 とを有している。D' 7 は蓋 D' 6 を移動させるための移動手段を示す。他の符号は図 4 と同義である。原料蒸発手段 D' の構成及び制御は図 4 に示す原料蒸発手段 D と同じである。原料容器 D' 1 内の原料 (第 2 電極の第 2 層形成用原料) D' 2 は金属、金属化合物又エレクトロルミネッセンス層を構成する有機化合物と同じ有機化合物とすることが好ましい。金属、金属化合物は第 2 電極の第 1 層形成用原料と同じ金属、金属化合物とすることが好ましい。

20

【0078】

第 2 電極第 2 層形成用気相堆積装置 207 b は、原料蒸発手段 D' の位置が図 4 に示す第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置 207 a と異なるだけで後は全て同じ構成であり、同じ制御方法であるため各部の説明は省略する。

【0079】

原料蒸発手段 D' の原料容器 D' 1 の位置は図 4 に示す第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置 207 a の原料蒸発手段 D の原料容器 D 1 位置と異なっていることが好ましい。原料容器 D 1 と原料容器 D' 1 との位置は図 6 で説明する。

30

【0080】

図 6 は図 4 に示す原料蒸発手段と、図 5 に示す原料蒸発手段との位置関係を示す模式図である。

【0081】

本図は、図 3 に示す電子注入層 d が形成された枚葉基板 201 a の電子注入層 d の上に、第 1 層と第 2 層とからなる第 2 電極を形成する時の第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置 207 a の原料容器 D 1 と第 2 電極第 2 層形成用気相堆積装置 207 b の原料容器 D' 1 の位置関係を示している。

40

【0082】

本発明で、第 2 電極を少なくとも 2 回に分けて積層し形成する際、第 2 電極を形成する基板と、第 2 電極の材料の蒸着源との位置関係が積層する毎に異なるとは、本図に示す様に原料容器 D 1 と原料容器 D' 1 の位置関係を言う。

【0083】

図中、O は堆積膜形成領域の中心点を示す。θ 1 は原料容器 D 1 の中心と堆積中心点 O とを結ぶ線と、原料容器 D' 1 の中心と堆積中心点 O とを結ぶ線とのなす角度を示す。

【0084】

角度 θ 1 は、カバレッジ性 (ピンホールの抑制)、堆積材料効率等を考慮し、 $1^\circ \sim 120^\circ$ であることが好ましい。

50

【 0 0 8 5 】

第2電極を少なくとも2回に分けて積層し形成する際、第1層を形成する原料容器D1と、第2層を形成する原料容器D'1との位置関係を本図に示すようにすることで次の効果が挙げられる。

1) 成膜欠陥(ピンホール)の抑制がより向上し、各ダメージの伝搬がより抑制され、有機EL素子のダメージが軽減される。

【 0 0 8 6 】

図7は封止部材により密着封止した有機EL素子の製造工程の模式図である。本図で示す製造工程は封止部材に接着剤を配置する場合を示している。

【 0 0 8 7 】

図中、3は製造工程を示す。製造工程3は、封止部材301aの第1供給工程301と、有機EL素子302aの第2供給工程302と、接着剤の配置工程303と、封止部材301aと有機EL素子302aとを接着剤を介して貼合する貼合工程304と、回収工程305とを有している。尚、有機EL素子302aは、図3～図6に示す気相堆積装置を使用した方法で製造されており、第2電極は、第1層が金属、金属化合物、第2層が金属、金属化合物又は有機化合物から形成された2層構造を有している。

【 0 0 8 8 】

第1供給工程301は有機EL素子302aの大きさに断裁された枚葉状態の封止部材301aの保管箱301bと、保管箱301bから封止部材301aを取り出す吸引板301c1を備えた供給口ポット301cを有している。供給口ポット301cは上下方向(図中の矢印A方向)の移動、水平方向(図中の矢印B方向)の移動及び回転(図中の矢印C方向)移動が可能となっている。

【 0 0 8 9 】

供給口ポット301cにより保管箱301bから取り出された封止部材301aは載置台307に載置される。載置台307は載置され封止部材301aを固定するため吸引手段(不図示)を有していることが好ましい。又、接着剤の配置工程303で封止部材301aに接着剤を配置する時の位置合わせのためX軸、Y軸方向への移動及び角度の変更が可能となっている。封止部材301aは載置台307に載置され固定した後、移動手段により接着剤の配置工程303に送られる。尚、載置台307は第1供給工程301から貼合工程304を移動手段(不図示)によりガイドレール308に沿って順次移動可能となっている。載置台307は移動手段により各工程に移動する時、各工程には載置台307に付けられたアライメントマーク(不図示)を検出する検出装置(不図示)が設けられており、検出装置(不図示)の情報に従って本体内の規定された位置に停止するように制御されている。検出装置(不図示)の種類としては特に限定はなく、例えばCCDカメラによる画像認識手段等が挙げられる。

【 0 0 9 0 】

配置工程303は接着剤の配置装置303aを有している。配置装置303aとしては、使用する接着剤が溶融タイプと、シート状タイプの場合があるため接着剤の種類に応じて対応することが可能である。例えば接着剤が溶融タイプの場合、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型シール剤、2-シアノアクリル酸エステルなどの湿気硬化型等のシール剤、エポキシ系などの熱及び化学硬化型(二液混合)等のシール剤、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂シール剤等が挙げられる。これらの中で、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂シール剤が、生産効率、膜厚安定性を考慮し、スクリーン印刷で塗設することが好ましい。

【 0 0 9 1 】

シート状タイプの場合、シート状のシール剤と、熱可塑性樹脂とが挙げられる。シート状のシール剤としては、常温(25程度)では非流動性を示し、且つ、加熱すると50～100の範囲で流動性を発現し、シート状に成形されたシール剤を言う。使用するシール剤としては、例えば分子の末端又は側鎖にエチレン性二重結合を有する化合物と、

10

20

30

40

50

光重合開始剤とを主成分とする光硬化性樹脂が挙げられる。熱可塑性樹脂としては、JIS K 7210 規定のメルトフローレートが $5 \sim 20 \text{ g} / 10 \text{ min}$ である熱可塑性樹脂が好ましく、更に好ましくは、 $6 \sim 15 \text{ g} / 10 \text{ min}$ 以下の熱可塑性樹脂を用いることが好ましい。熱可塑性樹脂は、上記数値を満たすものであれば特に限定されるものではないが、例えば機能性包装材料の新展開株式会社東レリサーチセンター記載の高分子フィルムである低密度ポリエチレン (LDPE)、HDPE、線状低密度ポリエチレン (LLDPE)、中密度ポリエチレン、未延伸ポリプロピレン (CPP)、OPP、ONY、PET、セロハン、ポリビニルアルコール (PVA)、延伸ビニロン (OV)、エチレン-酢酸ビニル共重合体 (EVOH)、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、塩化ビニリデン (PVC) 等の使用が可能である。これらの熱可塑性樹脂の中で特に LDPE、LLDPE 及びメタロセン触媒を使用して製造した LDPE、LLDPE、又、LDPE、LLDPE と HDPE フィルムの混合使用した熱可塑性樹脂を使用することが好ましい。配置方法は一般的に知られている各種の方法、例えばウェットラミネート法、ドライラミネート法、ホットメルトラミネート法、押しラミネート法、熱ラミネート法を利用することが可能である

10

配置する接着剤の厚さは、溶融タイプ、シート状タイプ共に硬化反応時間、有機層への影響、端部からの水分浸透等を考慮し、 $5 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましい。

【0092】

封止部材に接着剤を配置した後、載置台に載置した状態で洗浄工程 306c に移動手段 (不図示) により貼合工程 304 へ移動する。

20

【0093】

第2供給工程 302 は有機 EL 素子 302a の棚式保管箱 302b と、棚式保管箱 302b から有機 EL 素子 302a を取り出す2本の取り出しアーム 302c1 を備えた供給口ポット 302c を有している。取り出しアーム 302c1 は棚式保管箱 302b に保管保管されている有機 EL 素子 302a の両端を保持するために水平方向 (図中の矢印 D 方向) の移動及び保持した状態で載置台 309 に有機 EL 素子 302a を載置するため及び棚式保管箱 302b の上段から下段に納められている有機 EL 素子 302a を取り出すために上下方向 (図中の矢印 E 方向) への移動が可能となっている。供給口ポット 302c により棚式保管箱 302b から取り出された有機 EL 素子 302a は載置台 309 に載置され移動手段により貼合工程 304 に送られる。棚式保管箱 302b に保管されている有機 EL 素子 302a は表面 (封止材を貼合する面) が下向きの状態となっている。載置台 309 は有機 EL 素子 302a の4端辺を保持し、中央部分是有機 EL 素子 302a の表面 (第2電極の表面) を接触によるダメージから避けるため空洞となっている。

30

【0094】

貼合工程 304 は供給口ポット 304a と、貼合装置 304b と、硬化処理装置 304c とを有している。供給口ポット 304a は、供給口ポット 302c と同じ機構、機能を有しており、上下方向 (図中の矢印 F 方向) の移動、水平方向 (図中の矢印 G 方向) の移動及び回転 (図中の矢印 H 方向) 移動が可能となっている。貼合工程 304 では、載置台 307 の上に載置されている封止部材 301a の接着剤 301a1 面へ、供給口ポット 304a により、載置台 309 に載置した有機 EL 素子 302a の第2電極側を重ね合わせ、この後、貼合装置 304b で圧着し、硬化処理装置 304c で処理することで封止部材 301a による有機 EL 素子 302a の密着封止が終了し、有機 EL パネルが製造される。密着封止が終了した後、回収工程 305 で回収される。尚、貼合装置 304b による貼合時の面圧は、可撓性封止部材の貼合性、有機 EL 素子のダメージ等を考慮し、 $0.5 \times 10^4 \text{ Pa} \sim 9.8 \times 10^4 \text{ Pa}$ が好ましい。貼合装置 304b による貼合は、気泡の混入を考慮し、 $1 \text{ Pa} \sim 30 \text{ kPa}$ の減圧環境下で行うことが好ましい。

40

【0095】

硬化処理装置 304c は使用する接着剤の種類に応じて変更することが可能である。例えば、接着剤が熱硬化型の場合は加熱装置を有した硬化処理装置となり、又、紫外線硬化型の場合は紫外線照射装置を有した硬化処理装置となる。選定する接着剤の硬化時間とタ

50

クトにより、硬化処理装置 304c は仮硬化装置及び本硬化装置としての使い分けが可能である。尚、本図では貼合装置 304b と硬化処理装置 304c とを分離した場合を示しているが、貼合装置 304b に硬化処理装置 304c の機能を持たせることも可能である。以上の硬化処理装置 304c による硬化処理までは、有機 EL 素子の劣化による寿命低減の観点より、水分濃度、酸素濃度が低いことが重要であり、好ましくは水分濃度 10 ppm 以下、酸素濃度 10 ppm 以下の環境下で行うことが好ましい。

【0096】

図 8 は封止部材により密着封止した有機 EL 素子の他の製造工程の模式図である。本図で示す製造工程は有機 EL 素子に接着剤を配置する場合を示している。

【0097】

図中、4 は製造工程を示す。製造工程 4 は、有機 EL 素子 401a の第 2 供給工程 401 と、封止部材 402a の第 1 供給工程 402 と、接着剤の配置工程 403 と、有機 EL 素子 401a と封止部材 402a とを接着剤を介して貼合する貼合工程 404 と、回収工程 405 とを有している。尚、有機 EL 素子 401a は、図 3 ~ 図 6 に示す気相堆積装置を使用した方法で製造されており、第 2 電極は、第 1 層が金属、金属化合物、第 2 層が金属、金属化合物又は有機化合物形成された 2 層構造を有している。

【0098】

第 2 供給工程 401 は有機 EL 素子 401a の棚式保管箱 401b と、棚式保管箱 401b から有機 EL 素子 401a を取り出す 2 本の取り出しアーム 401c1 を備えた供給口ポット 401c を有している。取り出しアーム 401c1c は棚式保管箱 401b に保管保管されている有機 EL 素子 401a の両端を保持するために水平方向（図中の矢印 I 方向）の移動及び保持した状態で載置台 407 に有機 EL 素子 401a を載置するため及び棚式保管箱 401b の上段から下段に納められている有機 EL 素子 401a を取り出すために上下方向（図中の矢印 J 方向）への移動が可能となっている。供給口ポット 401c により棚式保管箱 401b から取り出された有機 EL 素子 401a は載置台 407 に表面（第 2 電極の表面）が上向きの状態で載置され固定した後、移動手段（不図示）により移動用のガイドレール 408 に沿って移動手段により接着剤の配置工程 403 に送られる。棚式保管箱 401b に保管されている有機 EL 素子 401a は表面（第 2 電極の表面）が上向きの状態となっている。載置台 407 は図 7 に示す載置台 307 と同じ機構、機能を有しているので説明は省略する。

【0099】

配置工程 403 は接着剤の配置装置 403a を有している。配置装置 403a としては図 7 に示す配置装置 303a と同じものであり、使用する接着剤も同じである。有機 EL 素子 401a に接着剤を配置した後、載置台に載置した状態で移動手段（不図示）により移動用のガイドレール 408 に沿って貼合工程 404 へ移動する。

【0100】

第 1 供給工程 402 は有機 EL 素子 401a の大きさに断裁された枚葉状態の封止部材 402a の保管箱 402b と、保管箱 402b から封止部材 402a を取り出す吸引板 402c1 を備えた供給口ポット 402c を有している。供給口ポット 402c は図 7 に示す供給口ポット 301c と同じ機構、機能を有している。供給口ポット 402c により保管箱 402b から取り出された封止部材 402a は載置台 409 に載置され移動手段により貼合工程 404 に送られる。載置台 409 は図 7 に示す載置台 307 と同じ構造を有していることが好ましい。

【0101】

貼合工程 404 は供給口ポット 404a と、貼合装置 404b と、硬化処理装置 404c とを有している。供給口ポット 404a は図 3 に示す供給口ポット 304a と同じ機構、機能を有している。貼合工程 404 では、載置台 407 の上に載置されている有機 EL 素子 401a の接着剤面 401a1 面へ、供給口ポット 404a により、載置台 409 に載置した封止部材 402a を重ね合わせ、この後、貼合装置 404b で圧着し、硬化処理装置 404c で処理することで封止部材 402a による有機 EL 素子 401a の密着封止

10

20

30

40

50

が終了し、有機 E L パネルが製造される。密着封止が終了した後、回収工程 4 0 5 で回収される。尚、貼合装置 4 0 4 b による貼合時の面圧は、可撓性封止部材の貼合性、有機 E L 素子のダメージ等を考慮し、 $0.5 \times 10^4 \text{ Pa} \sim 9.8 \times 10^4 \text{ Pa}$ が好ましい。貼合装置 3 0 4 b による貼合は、気泡の混入を考慮し、 $1 \text{ Pa} \sim 30 \text{ kPa}$ の減圧環境下で行うことが好ましい。

【 0 1 0 2 】

硬化処理装置 4 0 4 c は使用する接着剤の種類に応じて変更することが可能である。例えば、接着剤が熱硬化型の場合は加熱装置を有した硬化処理装置となり、又、紫外線硬化型の場合は紫外線照射装置を有した硬化処理装置となる。選定する接着剤の硬化時間とタクトにより、硬化処理装置 4 0 4 c は仮硬化装置及び本硬化装置としての使い分けが可能である。尚、本図では貼合装置 4 0 4 b と硬化処理装置 4 0 4 c とを分離した場合を示しているが、貼合装置 4 0 4 b に硬化処理装置 4 0 4 c の機能を持たせることも可能である。以上の硬化処理装置 4 0 4 c による硬化処理までは、有機 E L 素子の劣化による寿命低減の観点より、水分濃度、酸素濃度が低いことが重要であり、好ましくは水分濃度 10 ppm 以下、酸素濃度 10 ppm 以下の環境下で行うことが好ましい。

図 7、図 8 に示す製造装置を使用し、図 3 ~ 図 6 に示す方法により、少なくとも 2 層の多層構成の第 2 電極を有する有機 E L 素子を接着剤を介して封止部材で密着封止することで次の効果が挙げられる。

1) 接着剤の硬化収縮による残留応力の伝搬が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

2) 封止部材の貼合圧着応力の伝搬が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

3) 第 2 電極を多数回に分けて成膜することで、成膜欠陥 (ピンホール) の抑制が可能となる。

4) 成膜欠陥 (ピンホール) が抑制されることから、接着剤の硬化時に発生するアウトガスの侵入が抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

5) 接着剤の硬化時に発生するアウトガス等による陰極の化学的腐食 (腐食の伝搬) が、第 2 電極を構成する第 1 層と第 2 層との間の界面により抑制され、発光素子のダメージが軽減される。

6) 応力緩和層や接着剤層等の新たな機能層を設置することなく、発光素子へのダメージが抑制可能であり、工程の簡素化及び小型化が図れる。

7) 生産効率が向上する。

【 0 1 0 3 】

以下、本発明に係る有機 E L 素子を構成している基板、ガスバリア層、第 1 電極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、封止層等を形成している材料に付き説明する。

【 0 1 0 4 】

本発明に係わる基板としては、枚葉基板、帯状可撓性基板が挙げられる。枚葉基板としては、透明ガラス板、金属シート、シート状透明樹脂フィルムが挙げられる。透明ガラス板としては封止部材と同じガラスの使用が可能である。金属シートとしては、封止部材と同じ金属シートの使用が可能である。樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN) 等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロハン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート (CAP)、セルロースアセテートフタレート (TAC)、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類又はそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクチックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン (PES)、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリル或いはポリアリレート類、アトーン (商品名 J S R 社製) 或いはアベル (商

品名三井化学社製)といったシクロオレフィン系樹脂等が挙げられる。帯状可撓性基板としては、透明樹脂フィルムが挙げられ、枚葉基板と同じ樹脂フィルムが使用可能である。

【0105】

基板として透明樹脂フィルムを使用する場合、樹脂フィルムの表面にはガスバリア膜が必要に応じて形成されることが好ましい。ガスバリア膜としては無機物、有機物の被膜又はその両者のハイブリッド被膜が挙げられる。ガスバリア膜の特性としては、水蒸気透過度が $0.01 \text{ g/m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}$ 以下であることが好ましい。更には、酸素透過度 $10^{-3} \text{ ml/m}^2/\text{day}$ 以下、水蒸気透過度 $10^{-5} \text{ g/m}^2/\text{day}$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

【0106】

ガスバリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることが出来る。更に該膜の脆弱性を改良するためにこれら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。ガスバリア膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることが出来るが、特開2004-68143号に記載されているような大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

【0107】

第1電極としては、仕事関数の大きい(4 eV 以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。又、 $\text{IDIXO}(\text{In}_2\text{O}_3 \cdot \text{ZnO})$ 等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、或いはパターン精度をあまり必要としない場合は($100 \mu\text{m}$ 以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、又陽極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常 $10 \sim 1000 \text{ nm}$ 、好ましくは $10 \sim 200 \text{ nm}$ の範囲で選ばれる。

【0108】

第1電極と発光層又は正孔輸送層の間、正孔注入層(陽極バッファ層)を存在させてもよい。正孔注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123-166頁)に詳細に記載されている。陽極バッファ層(正孔注入層)に使用する材料の一例としては、特開2000-160328号公報に記載されている材料が挙げられる。

【0109】

正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層又は複数層設けることが出来る。正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性の何れかを有するものであり、有機物、無機物の何れであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、又導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

【0110】

正孔輸送材料としては上記のものを使用することが出来るが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノフェニル; N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス(3 - メチルフェニル) - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン(TPD); 2, 2 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N' - テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニル; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン; ビス(4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ(4 - メトキシフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル; N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' - ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N - トリ(p - トリル)アミン; 4 - (ジ - p - トリルアミノ) - 4' - [4 - (ジ - p - トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル)ベンゼン; 3 - メトキシ - 4' - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン; N - フェニルカルバゾール、更には米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4' - ビス[N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4 - 308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4'' - トリス[N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

10

20

【0111】

更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることも出来る。又、p型 - Si、p型 - SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することが出来る。

【0112】

又、特開平11 - 251067号公報、J. Huang et al. 著文献(Applied Physics Letters 80(2002), p. 139)に記載されているような所謂p型正孔輸送材料を用いることも出来る。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることから、これらの材料を用いることが好ましい。

30

【0113】

正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。又、不純物をドーブしたp性の高い正孔輸送層を用いることも出来る。その例としては、特開平4 - 297076号、特開2000 - 196140号、特開2001 - 102175号、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。この様なp性の高い正孔輸送層を用いることが、より低消費電力の有機EL素子を作製することが出来るため好ましい。

40

【0114】

本発明に係わる、発光層とは青色発光層、緑色発光層、赤色発光層を指す。発光層を積層する場合の積層順としては、特に制限はなく、又各発光層間に非発光性の中間層を有していてもよい。本発明に係わる発光層においては、少なくとも1つの青発光層が、全発光層中最も陽極に近い位置に設けられていることが好ましい。又、発光層を4層以上設ける場合には、陽極に近い順から、例えば青色発光層/緑色発光層/赤色発光層/青色発光層、青色発光層/緑色発光層/赤色発光層/青色発光層/緑色発光層、青色発光層/緑色発光層/赤色発光層/青色発光層/緑色発光層/赤色発光層のように青色発光層、緑色発光層、赤色発光層を順に積層することが、輝度安定性を高める上で好ましい。発光層を多層にすることで白色素子の作製が可能である。

50

【0115】

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性、発光に必要な電圧等を考慮し、通常2 nm～5 μm、好ましくは2～200 nmの範囲で選ばれる。更に10～20 nmの範囲にあるのが好ましい。膜厚を20 nm以下にすると電圧面のみならず、駆動電流に対する発光色の安定性が向上する効果があり好ましい。個々の発光層の膜厚は、好ましくは2～100 nmの範囲で選ばれ、2～20 nmの範囲にあるのが更に好ましい。青、緑、赤の各発光層の膜厚の関係については、特に制限はないが、3発光層中、青発光層（複数層ある場合はその総和）が最も厚いことが好ましい。

【0116】

発光層は発光極大波長が各々430～480 nm、510～550 nm、600～640 nmの範囲にある発光スペクトルの異なる少なくとも3層以上の層を含む。3層以上であれば、特に制限はない。4層より多い場合には、同一の発光スペクトルを有する層が複数層あってもよい。発光極大波長が430～480 nmにある層を青発光層、510～550 nmにある層を緑発光層、600～640 nmの範囲にある層を赤発光層と言う。又、前記の極大波長を維持する範囲において、各発光層には複数の発光性化合物を混合してもよい。例えば、青発光層に、極大波長430～480 nmの青発光性化合物と、同510～550 nmの緑発光性化合物を混合して用いてもよい。

【0117】

発光層の材料として使用する有機発光材料は、(a)電荷の注入機能、すなわち、電界印加時に陽極或いは正孔注入層から正孔を注入することが出来、陰極或いは電子注入層から電子を注入することが出来る機能、(b)輸送機能、すなわち、注入された正孔及び電子を電界の力で移動させる機能、及び(c)発光機能、すなわち、電子と正孔の再結合の場を提供し、これらを発光に繋げる機能、の3つの機能を併せもつものであれば特に限定はない。例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤や、スチリルベンゼン系化合物を用いることが出来る。上記の蛍光増白剤の具体例としては、ベンゾオキサゾール系では、2,5-ビス(5,7-ジ-t-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル)-1,3,4-チアジアゾール、4,4'-ビス(5,7-t-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン、4,4'-ビス[5,7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾオリル]スチルベン、2,5-ビス(5,7-ジ-t-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、2,5-ビス[5-α,α-ジメチルベンジル-2-ベンゾオキサゾリル]チオフエン、2,5-ビス[5,7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]-3,4-ジフェニルチオフエン、2,5-ビス(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、4,4'-ビス(2-ベンゾオキサゾリル)ビフェニル、5-メチル-2-[2-[4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル)ビニル]ナフト[1,2-d]オキサゾール等が挙げられる。ベンゾチアゾール系では、2,2'-(p-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾール等が挙げられ、ベンゾイミダゾール系では、2-[2-[4-(2-ベンゾイミダゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニル)ビニル]ベンゾイミダゾール等が挙げられる。更に、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ(1971),第628～637頁及び第640頁に列挙されている。

【0118】

又、上記のスチリルベンゼン系化合物の具体例としては、1,4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1,4-ビス(3-メチルスチリル)ベンゼン、1,4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1,4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1,4-ビス(3-メチルスチリル)ベンゼン、1,4-ビス(2-メチルスチリル)-2-メチルベンゼン、1,4-ビス(2-メチルスチリル)-2-エチルベンゼン等が挙げられる。

【0119】

10

20

30

40

50

更に、上述した蛍光増白剤及びスチリルベンゼン系化合物以外にも、例えば、1,2-フタロペリノン、1,4-ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、ナフタルイミド誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラジリン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ピロロピロール誘導体、スチリルアミン誘導体、クマリン系化合物、国際公開公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol. 58, 18, P1982 (1991)に記載されているような高分子化合物、芳香族ジメチリジン系化合物が挙げられる。芳香族ジメチリジン系化合物の具体例としては、1,4-フェニレンジメチリジン、4,4'-フェニレンジメチリジン、2,5-キシリレンジメチリジン、2,6-ナフチレンジメチリジン、1,4-ビフェニレンジメチリジン、1,4-p-テレフェニレンジメチリジン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル等、及びこれらの誘導体が挙げられる。又、上記一般式(I)で表される化合物の具体例としては、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(p-フェニルフェノラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム(III)等が挙げられる。

【0120】

その他、上述した有機発光材料をホストとし、当該ホストに青色から緑色までの強い蛍光色素、例えばクマリン系或いは前記ホストと同様の蛍光色素をドーブした化合物も、有機発光材料として好適である。有機発光材料として前記の化合物を用いた場合には、青色から緑色の発光(発光色はドーパントの種類によって異なる)を高効率で得ることが出来る。前記化合物の材料であるホストの具体例としては、ジスチリルアリーレン骨格の有機発光材料(特に好ましくは、例えば、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル)が挙げられ、前記化合物の材料であるドーパントの具体例としては、ジフェニルアミノビニルアリーレン(特に好ましくは、例えば、N,N-ジフェニルアミノビフェニルベンゼンや4,4'-ビス[2-[4-(N,N-ジ-p-トリル)フェニル]ビニル]ビフェニル)が挙げられる。

【0121】

発光層には、発光層の発光効率を高くするために公知のホスト化合物と公知のリン光性化合物(リン光発光性化合物とも言う)を含有することが好ましい。ホスト化合物とは、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であり、且つ室温(25℃)においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物と定義される。好ましくはリン光量子収率が0.01未満である。ホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を効率化することが出来る。又、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることが出来る。リン光性化合物の種類、ドーブ量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用も出来る。

【0122】

これらのホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ発光の長波長化を防ぎ、尚且つ高T_g(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。公知のホスト化合物としては、例えば、特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同20

02-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等に記載の化合物が挙げられる。

【0123】

複数の発光層を有する場合、これら各層のホスト化合物の50質量%以上が同一の化合物であることが、有機層全体に渡って均質な膜性状を得やすいことから好ましく、更にはホスト化合物のリン光発光エネルギーが2.9 eV以上であることが、ドープメントからのエネルギー移動を効率的に抑制し、高輝度を得る上で有利となることからより好ましい。

10

【0124】

ホスト化合物は、有機EL素子の経時での劣化（輝度低下、膜性状の劣化）、光源としての市場ニーズ等を考慮し、リン光発光エネルギーが2.9 eV以上且つTgが90以上のものであることが好ましい。すなわち、輝度と耐久性の両方を満足するためには、リン光発光エネルギーが2.9 eV以上且つTgが90以上のものであることが好ましい。Tgは、更に好ましくは100以上である。

【0125】

リン光性化合物（リン光発光性化合物）とは、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、室温（25）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25において0.01以上の化合物である。先に説明したホスト化合物と合わせ使用することで、より発光効率の高い有機EL素子とすることが出来る。

20

【0126】

本発明に係るリン光性化合物は、リン光量子収率は好ましくは0.1以上である。上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定出来る。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定出来るが、本発明に用いられるリン光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

【0127】

リン光性化合物の発光は原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上出来キャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、何れの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

30

【0128】

リン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることが出来る。リン光性化合物としては、好ましくは元素の周期表で8族-10族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくはイリジウム化合物、オスミウム化合物、又は白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

40

【0129】

本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることが出来る。

【0130】

本発明に係る有機EL素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16に

50

において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）で測定した結果をCIE色度座標に当て嵌めた時の色で決定される。

【0131】

本発明で言うところの白色素子とは、2 視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000 cd/m^2 でのCIE1931 表色系における色度が $X = 0.33 \pm 0.07$ 、 $Y = 0.33 \pm 0.07$ の領域内にあることを言う。

【0132】

電子注入層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり広い意味で電子輸送層に含まれる。電子注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。電子注入層（陰極バッファ層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1 nm～5 μmの範囲が好ましい。

【0133】

他に発光層側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることが出来、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、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、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることが出来る。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることも出来る。

【0134】

又、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（Znq）等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることが出来る。その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることが出来る。又、ジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることが出来るし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることが出来る。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。電子輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0135】

又、不純物をドーブしたn性の高い電子輸送層を用いることも出来る。その例としては、特開平4-297076号公報、特開平10-270172号公報、特開2000-196140号公報、特開2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。この様なn性の高い電子輸送層を用いることがより低消費電力の素子を作製することが出来るため好ましい。

【0136】

第2電極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することが出来る。又、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm ~ 5 μm 、好ましくは50 ~ 200 nmの範囲で選ばれる。尚、発光した光を透過させるため、有機EL素子の第1電極(陽極)又は第2電極(陰極)の何れか一方が、透明又は半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

10

【0137】

又、第2電極に上記金属を1 ~ 20 nmの膜厚で作製した後に、第1電極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明又は半透明の第2電極(陰極)を作製することが出来、これを応用することで第1電極(陽極)と第2電極(陰極)の両方が透過性を有する素子を作製することが出来る。

20

【0138】

本発明に係わる有機EL素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 $\times 100$ である。

【0139】

又、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ_{max} は480 nm以下が好ましい。

30

【0140】

本発明に係わる有機EL素子は、発光層で発生した光を効率よく取り出すために以下に示す方法を併用することが好ましい。有機EL素子は、空気よりも屈折率の高い(屈折率が1.7 ~ 2.1程度)層の内部で発光し、発光層で発生した光の内15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度 θ で界面(透明基板と空気との界面)に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことが出来ないことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として、光が素子側面方向に逃げるためである。

【0141】

この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、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(米国特許第4,774,435)。基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法(特開昭63-314795号公報)。素子の側面等に反射面を形成する方法(特開平1-220394号公報)。基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法(特開昭62-172691号公報)。基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法(特開2001-202827号公報)。基板、透明電極層や発光層の何れかの層間(含む、基板と外界間)に回折格子を形成する方法(特開平11-283751号公報)等がある。

40

【0142】

透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚みで形成すると、透

50

明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど、外部への取り出し効率が高くなる。低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に $1.5 \sim 1.7$ 程度であるので、低屈折率層は、屈折率がおおよそ 1.5 以下であることが好ましい。又、更に 1.35 以下であることが好ましい。低屈折率媒質の厚みは、媒質中の波長の 2 倍以上となるのが望ましい。これは、低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。全反射を起こす界面もしくは何れかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は、回折格子が 1 次の回折や、 2 次の回折といった所謂ブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることが出来る性質を利用して、発光層から発生した光の内、層間での全反射等により外に出ることが出来ない光を、何れかの層間もしくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは、発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な 1 次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

【0143】

回折格子を導入する位置としては前述の通り、何れかの層間もしくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。この時、回折格子の周期は、媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。回折格子の配列は、正方形のラチス状、三角形のラチス状、ハニカムラチス状等、 2 次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

【0144】

更に、本発明に係わる有機 EL 素子は、発光層で発生した光を効率よく取り出すために、基板の光取り出し側に、例えばマイクロレンズアレイ上の構造を設けるように加工したり、或いは、所謂集光シートと組合せることにより、特定方向、例えば素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることが出来る。マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一边が $30 \mu\text{m}$ でその頂角が 90 度となるような四角錐を 2 次元に配列する。一边は $10 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大き過ぎると厚みが厚くなり好ましくない。

【0145】

集光シートとしては、例えば液晶表示装置の LED バックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることが出来る。プリズムシートの形状としては、例えば基板に頂角 90 度、ピッチ $50 \mu\text{m}$ の 状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。又、発光素子からの光放射角を制御するために光拡散板・フィルムを、集光シートと併用してもよい。例えば、（株）きもと製拡散フィルム（ライトアップ）等を用いることが出来る。

【0146】

本発明に係わる封止部材に可撓性封止部材を使用する場合は、樹脂層とガスバリア層とを有する多層構成の可撓性封止部材が好ましい。ガスバリア層の特性としては、水蒸気透過度は、有機層の結晶化、第 2 電極の剥離等によりダークスポットの発生、及び有機 EL 素子の長寿命化等を考慮し、 $0.01 \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以下であることが好ましい。水蒸気透過度は JIS K 7129 B 法（1992 年）に準拠した方法で主として MOCON 法により測定した値を示す。

【0147】

酸素透過度は、有機層の結晶化、第 2 電極の剥離等によりダークスポットの発生、及び

有機EL素子の長寿命化等を考慮し、 $0.01 \text{ ml/m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}$ 以下であることが好ましい。酸素透過度はJIS K 7126 B法(1987年)に準拠した方法で主としてMOC CON法により測定した値である。

【0148】

使用する可撓性封止部材の厚さは、製造時の取扱い性、引っ張り強さやガスバリア層の耐ストレスクラッキング性等を考慮し、 $10 \sim 300 \mu\text{m}$ が好ましい。厚さは、マイクロメータを使用し、縦方向、幅方向で各10箇所を測定した平均値を示す。

【0149】

可撓性封止部材の封止時のASTM D 570に準じて測定した水分量は、可撓性封止部材の持ち込み水分により有機層の結晶化、第2電極の剥離等によりダークスポットの発生、及び有機EL素子の長寿命化等を考慮し、1.0%以下が好ましい。

【0150】

本発明に係わる可撓性封止部材を構成している樹脂基材108aとしては特に限定はなく、例えばエチレンテトラフルオロエチル共重合体(ETFE)、高密度ポリエチレン(HDPE)、延伸ポリプロピレン(OPP)、ポリスチレン(PS)、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、延伸ナイロン(ONY)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリカーボネート(PC)、ポリイミド、ポリエーテルスチレン(PES)など一般の包装用フィルムに使用されている熱可塑性樹脂フィルム材料を使用することが出来る。又、これら熱可塑性樹脂フィルムは、必要に応じて異種フィルムと共押出しで作った多層フィルム、延伸角度を変えて貼り合せて作った多層フィルム等も当然使用出来る。更に必要とする物性を得るために使用するフィルムの密度、分子量分布を組合せて作ることも当然可能である。

【0151】

防湿層としては、無機蒸着膜、金属箔が挙げられる。無機蒸着膜としては薄膜ハンドブックp 879 ~ p 901(日本学術振興会)、真空技術ハンドブックp 502 ~ p 509、p 612、p 810(日刊工業新聞社)、真空ハンドブック増訂版p 132 ~ p 134(ULVAC 日本真空技術K.K)に記載されている如き無機膜が挙げられる。例えば、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂、Cr₂O₃、Si_xO_y(x=1、y=1.5~2.0)、Ta₂O₃、ZrN、SiC、TiC、PSG、Si₃N₄、SiN、単結晶Si、アモルファスSi、W、等が用いられる。

【0152】

又、金属箔の材料としては、例えばアルミニウム、銅、ニッケルなどの金属材料や、ステンレス、アルミニウム合金などの合金材料を用いることが出来るが、加工性やコストの面でアルミニウムが好ましい。膜厚は、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $10 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ 程度が望ましい。

【0153】

使用するガラス板の厚さは、製造時の取扱い性及びパネルの薄板化等を考慮し、 $0.1 \text{ mm} \sim 2.0 \text{ mm}$ が好ましい。厚さは、マイクロメータを使用し、縦方向、幅方向で各10箇所を測定した平均値を示す。ガラスとしては特に限定はなく、例えば珪酸塩ガラス、珪酸アルカリガラス、鉛アルカリガラス、ソーダ石灰ガラス、カリ石灰ガラス、バリウムガラス、硼珪酸ガラス、磷酸塩ガラス等が挙げられる。

【0154】

使用する金属シートの厚さは、製造時の取扱い性及びパネルの薄板化等を考慮し、 $20 \mu\text{m} \sim 2 \text{ mm}$ が好ましい。厚さは、マイクロメータを使用し、縦方向、幅方向で各10箇所を測定した平均値を示す。金属としては特に限定はなく、例えばアルミニウム、銅、ニッケルなどの金属材料や、ステンレス、アルミニウム合金などの合金材料等が挙げられる。

【実施例】

【0155】

以下、実施例を挙げて本発明の具体的な効果を示すが、本発明の態様はこれに限定されるものではない。

【 0 1 5 6 】

実施例 1

有機 E L 素子の作製

図 3 に示す製造装置により、基板上に第 1 電極と、正孔輸送層と、発光層と、電子輸送層と、第 2 電極とをこの順番で形成した一つのドットの大きさが 2 mm × 2 mm で、7 ドット × 10 ドットの合計 70 ドット（発光領域）で構成される有機 E L 素子を以下に示す方法で準備した。

【 0 1 5 7 】

10

（基板の準備）

基板として厚さ 1 . 1 mm、幅 40 mm、長さ 60 mm のソーダ石灰ガラスを準備した。尚、ソーダ石灰ガラスの全面には、酸やアルカリから保護するためのシリカコートしたものを使用した。

【 0 1 5 8 】

（第 1 電極の形成）

準備したガラス基板を波長 184 . 2 nm の低圧水銀ランプを使用し、照射強度 15 mW / cm² で、距離 12 mm で照射し洗浄を行った。この後、気相堆積装置を使用し、 5×10^{-4} Pa の真空下にてインジウムチンオキシド（ITO）を使用し、準備したガラス基板の堆積膜形成領域（第 1 電極形成領域）に第 1 電極形成気相堆積装置を使用して、幅 2 mm、長さ 58 mm、間隔 2 mm、厚さ 150 nm、7 列のパターン化した第 1 電極を形成した。

20

【 0 1 5 9 】

（正孔輸送層の形成）

第 1 電極が形成されたガラス基板を使用し、ガラス基板上に形成された第 1 電極の外部取り出し電極形成用の端部を除き第 1 電極の上に、正孔輸送層形成用材料として N , N' - ジフェニル - N , N' - m - トリル 4 , 4' - ジアミノ - 1 , 1' - ビフェニル（以下、TPD）を使用し、 5×10^{-4} Pa の真空下にて正孔輸送層形成気相堆積装置で蒸着（気相堆積）し正孔輸送層を形成した。尚、正孔輸送層の厚さは 50 nm とした。

【 0 1 6 0 】

30

（発光層の形成）

正孔輸送層が形成されたガラス基板を使用し、正孔輸送層の上に発光層形成用材料として Alq₃ を使用し、 5×10^{-4} Pa の真空下にて発光層形成気相堆積装置で蒸着し発光層を形成した。尚、発光層の厚さは 50 nm とした。

【 0 1 6 1 】

（電子注入層の形成）

発光層が形成されたガラス基板を使用し、発光層を含め正孔輸送層が形成された領域に、電子注入層形成用材料として LiF を使用し、 5×10^{-4} Pa の真空下にて電子注入層形成気相堆積装置で LiF を蒸着し電子注入層を形成した。尚、電子注入層の厚さは 0 . 5 nm とした。

40

【 0 1 6 2 】

（第 2 電極の形成）

電子注入層が形成されたガラス基板を使用し、表 1 に示す様に電子注入層の上に多層から構成される第 2 電極を第 2 電極形成気相堆積装置で 5×10^{-4} Pa の真空下にて堆積形成し有機 E L 素子 No . 1 - 1 ~ 1 - 13 とした。尚、形成した第 2 電極は、幅 2 mm、長さ 38 mm、間隔 2 mm、厚さ 150 nm、10 列のパターンとした。

【 0 1 6 3 】

【表 1】

有機EL素子 No.	第2電極の構成 (層)	備考
1-1	1	第2電極の厚さ $0.3\mu\text{m}$
1-2	2	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$
1-3	2	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$
1-4	1	第2電極の厚さ $0.6\mu\text{m}$
1-5	2	第1層の厚さ $0.3\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.3\mu\text{m}$
1-6	1	第2電極の厚さ $0.45\mu\text{m}$
1-7	3	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第3層の厚さ $0.15\mu\text{m}$
1-8	1	第2電極の厚さ $0.6\mu\text{m}$
1-9	4	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第3層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第4層の厚さ $0.15\mu\text{m}$
1-10	1	第2電極の厚さ $0.75\mu\text{m}$
1-11	5	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第3層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第4層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第5層の厚さ $0.15\mu\text{m}$
1-12	1	第2電極の厚さ $0.9\mu\text{m}$
1-13	6	第1層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第2層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第3層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第4層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、 第5層の厚さ $0.15\mu\text{m}$ 、第6層の厚さ $0.15\mu\text{m}$

10

20

【0164】

各有機EL素子No. 1-1～1-13の第2電極に使用した材料を表2に示す。

【0165】

【表 2】

有機EL素子 No.	使用材料
1-1	アルミニウム
1-2	第1層：アルミニウム
	第2層：アルミニウム
1-3	第1層：アルミニウム
	第2層：TPD
1-4	アルミニウム
1-5	第1層：アルミニウム
	第2層：TPD
1-6	アルミニウム
1-7	第1層：アルミニウム
	第2層：アルミニウム
	第3層：アルミニウム
1-8	アルミニウム
1-9	第1層：アルミニウム
	第2層：アルミニウム
	第3層：TPD
	第4層：アルミニウム
1-10	アルミニウム
1-11	第1層：アルミニウム
	第2層：TPD
	第3層：アルミニウム
	第4層：TPD
	第5層：アルミニウム
1-12	アルミニウム
1-13	第1層：アルミニウム
	第2層：アルミニウム
	第3層：TPD
	第4層：アルミニウム
	第5層：アルミニウム
	第6層：アルミニウム

10

20

30

【0166】

各有機EL素子No. 1-1～1-13の第2電極の各層の堆積速度及び堆積速度の変化量、気相堆積装置内の原料容器の位置関係を表3に示す。尚、堆積速度の変化量は下層の速度に対しての変化割合(%)を示す。

40

【0167】

【表 3】

有機EL素子 No.	堆積速度 (nm/sec)	下層に対する 堆積速度の 変化量(%)	原料容器の位置関係
1-1	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-2	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-3	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-4	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-5	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-6	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-7	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第3層:0.2	第3層:0	第3層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-8	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-9	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第3層:0.2	第3層:0	第3層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第4層:0.2	第4層:0	第4層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-10	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-11	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第3層:0.2	第3層:0	第3層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第4層:0.2	第4層:0	第4層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第5層:0.2	第5層:0	第5層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-12	0.2	—	堆積領域中心点の法線上(中心位置)
1-13	第1層:0.2	第1層:—	第1層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第2層:0.2	第2層:0	第2層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第3層:0.2	第3層:0	第3層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第4層:0.2	第4層:0	第4層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第5層:0.2	第5層:0	第5層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)
	第6層:0.2	第6層:0	第6層:堆積領域中心点の法線上(中心位置)

【0168】

(可撓性封止部材の準備)

PET120 μ m/SiO30nm/SiN100nmの構成を有する可撓性封止部材を準備した。準備した可撓性封止部材のJIS K7129B法(1992年)に準拠した方法で主としてMOCON法により測定した水蒸気透過度は0.01g/m²・dayであった。JIS K7126B法(1987年)に準拠した方法で主としてMOCON法により測定した酸素透過度は0.01ml/m²・day・atmであった。

【0169】

可撓性封止部材による有機EL素子の密着封止

(可撓性封止部材への接着剤の配置)

図7に示す製造工程を使用し、紫外線硬化型の液状シール剤(ThreeBond3124C(株)スリーボンド製)を使用し、接着剤配置装置でスクリーン印刷法にて厚さ50 μ mで配置した。

【0170】

有機EL素子との貼合

準備した各有機EL素子No. 1-1~1-13を、図3に示す製造装置の貼合工程で、準備した可撓性封止部材とを貼合し、 1×10^{-2} Paの減圧環境下で押圧力0.1 MPaで圧着し、可撓性封止部材側より主波長365 nmの紫外線を照射(100 mW/cm^2 で90 sec)により硬化処理し密着封止した有機ELパネルを作製し、試料No. 101~113とした。

(評価)

作製した各試料No. 101~113に付き、ダークスポット(スポット状の非発光部)の発生割合を以下に示す試験方法により試験し、以下に示す評価ランクに従って評価した結果を表4に示す。

10

【0171】

ダークスポット(スポット状の非発光部)の発生割合の試験方法

定電圧電源を用いて、有機ELパネルの1ドットに直流5 Vを印加し、ダークスポットの有無をルーペ(倍率8倍)を用い目視にて観察した。70ドット(発光領域)全てにおいて測定を行い、ダークスポットの発生したドットの数からダークスポットの発生割合を算出した。

【0172】

ダークスポット(スポット状の非発光部)の発生割合の評価ランク

：発生率0%(ダークスポットの発生が全くない。)

○：発生率1%以上5%未満

：発生率5%以上10%未満

×：発生率10%以上

20

【0173】

【表4】

試料 No.	有機ELパネル No.	ダークスポット発生割合	備考
101	1-1	×	比較
102	1-2	○	本発明
103	1-3	◎	本発明
104	1-4	×	比較
105	1-5	◎	本発明
106	1-6	×	比較
107	1-7	◎	本発明
108	1-8	×	比較
109	1-9	◎	本発明
110	1-10	×	比較
111	1-11	◎	本発明
112	1-12	×	比較
113	1-13	◎	本発明

30

40

【0174】

本発明の有効性が確認された。

【0175】

実施例2

可撓性封止部材による有機EL素子の密着封止

図3に示す製造装置で、実施例1で作製した有機EL素子No. 1-2と同じ材料を使用し電子注入層までを形成した後、第2電極の第1層と第2層とを形成する時図4に示す

50

第1層用第2電極形成気相堆積装置の原料容器の位置と、図5に示す第2層用第2電極形成気相堆積装置の原料容器の位置との関係を表5に示す様に変えて有機EL素子を作製した。この後、実施例1と同じ可撓性封止部材を使用し、実施例1と同じ接着剤を同じ条件で配置した後、同じ条件で作製した各有機EL素子と貼合し、密着封止した有機ELパネルを作成し、試料No. 201～205とした。

【0176】

尚、第1層用原料容器と第2層用原料容器の位置関係とは、第1層用原料容器の中心と堆積中心点とを結ぶ線と、第2層用原料容器の中心と堆積中心点とを結ぶ線とのなす角度を示す。

【0177】

第1層の厚さは0.15 μm、第2層の厚さは0.15 μmとした。第1層の堆積時の真空度は 5×10^{-4} Pa、堆積速度は0.2 nm/secとした。第2層の堆積時の真空度は 5×10^{-4} Pa、堆積速度は0.2 nm/secとし、第1層の堆積時速度に対する堆積速度の変化量は0%とした。

(評価)

作製した各試料No. 201～205に付き、ダークスポット(スポット状の非発光部)の発生割合を実施例1と同じ試験方法により試験し、実施例1と同じ評価ランクに従って評価した結果を表5に示す。

【0178】

【表5】

試料 No.	第1層用原料容器と 第2層用原料容器の 位置関係 (°)	ダークスポット発生割合
201	0	○
202	1	◎
203	80	◎
204	120	◎
205	125	◎

【0179】

試料No. 205は、ダークスポット発生割合の評価ランクではよい結果を示したが、他の試料No. 201～204に比べ成膜に使用する材料の量が増加(堆積材料効率が低くなる傾向)する傾向が認められた。本発明の有効性が確認された。

【0180】

実施例3

可撓性封止部材による有機EL素子の密着封止

図3に示す製造装置で、実施例1で作製した有機EL素子No. 1-2と同じ材料を使用し電子注入層までを形成した後、第2電極の第1層と第2層とを形成する時、図4に示す第1層用第2電極形成気相堆積装置による第1層の堆積速度に対して、図5に示す第2層用第2電極形成気相堆積装置による第2層の堆積速度を表6に示す様に変えて有機EL素子を作製した。この後、実施例1と同じ可撓性封止部材を使用し、実施例1と同じ接着剤を同じ条件で配置した後、同じ条件で作製した各有機EL素子と貼合し、密着封止した有機EL素子を作成し、試料No. 301～308とした。

【0181】

尚、第1層用第2電極形成気相堆積装置の原料容器の位置と第1層用第2電極形成気相堆積装置の原料容器の位置は共に、堆積領域中心点の法線上(中心位置)とし、第1層用原料容器と第2層用原料容器の位置関係は0°とした。第1層の厚さは0.15 μm、第

10

20

30

40

50

2 層の厚さは 0 . 1 5 μm とした。

(評価)

作製した各試料 No . 3 0 1 ~ 3 0 8 に付き、ダークスポット (スポット状の非発光部) の発生割合を実施例 1 と同じ試験方法により試験し、実施例 1 と同じ評価ランクに従って評価した結果を表 6 に示す。

【 0 1 8 2 】

【 表 6 】

試料 No.	第 1 層の堆積速度 (nm/sec)	第 2 層の堆積速度 (nm/sec)	堆積速度の変化量 (%)	ダークスポット 発生割合
301	0.2	0.2	0	○
302	0.2	0.22	10	◎
303	0.2	0.18	10	◎
304	0.2	0.1	50	◎
305	0.2	0.4	100	◎
306	0.2	1.2	500	◎
307	0.2	2.2	1000	◎
308	0.2	2.4	1100	◎

10

20

【 0 1 8 3 】

試料 No . 3 0 8 は、ダークスポット発生割合の評価ランクではよい結果を示したが、第 2 電極堆積時における有機 E L 素子の温度上昇により発光輝度の低下する傾向が認められた。本発明の有効性が確認された。

【 0 1 8 4 】

実施例 4

可撓性封止部材による有機 E L 素子の密着封止

図 3 に示す製造装置で、実施例 1 で作製した有機 E L 素子 No . 1 - 2 と同じ材料を使用し電子注入層までを形成した後、第 2 電極の第 1 層と第 2 層とを形成する時第 1 層と第 2 層との厚さを表 7 に示す様に変えて有機 E L 素子を作製した。この後、実施例 1 と同じ可撓性封止部材を使用し、実施例 1 と同じ接着剤を同じ条件で配置した後、同じ条件で作製した各有機 E L 素子と貼合し、密着封止した有機 E L 素子を作製し、試料 No . 4 0 1 ~ 4 1 4 とした。

30

【 0 1 8 5 】

尚、第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置の原料容器の位置と第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置の原料容器の位置は共に、堆積領域中心点の法線上 (中心位置) とし、第 1 層用原料容器と第 2 層用原料容器の位置関係は 0 ° とした。

【 0 1 8 6 】

第 1 層及び第 2 層の堆積時の真空度は $5 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 、堆積速度は 0 . 2 nm / sec とし、堆積速度の変化量は 0 % とした。

40

(評価)

作製した各試料 No . 4 0 1 ~ 4 1 4 に付き、ダークスポット (スポット状の非発光部) の発生割合を実施例 1 と同じ試験方法により試験し、実施例 1 と同じ評価ランクに従って評価した結果を表 7 に示す。

【 0 1 8 7 】

【表 7】

試料 No.	第 2 電極の総厚 (μm)	第 1 層の厚さ (μm)	第 2 層の厚さ (μm)	ダークスポット発生割合
401	0.09	0.05	0.04	$\triangle$
402	0.1	0.008	0.092	$\triangle$
403	0.1	0.05	0.05	$\bigcirc$
404	0.5	0.05	0.45	$\odot$
405	0.5	0.25	0.25	$\odot$
406	0.8	0.05	0.75	$\odot$
407	0.8	0.4	0.4	$\odot$
408	1.0	0.05	0.95	$\odot$
409	1.0	0.5	0.5	$\odot$
410	1.5	1.0	0.5	$\odot$
411	1.5	0.5	1.0	$\odot$
412	2.0	0.5	1.5	$\odot$
413	2.0	1.0	1.0	$\odot$
414	2.2	1.0	1.2	$\odot$

【 0 1 8 8 】

本発明の有効性が確認された。

【図面の簡単な説明】

【 0 1 8 9 】

【図 1】有機 EL 素子の層構成の一例を示す概略断面図である。

【図 2】図 1 の T で示される部分の拡大概略断面図である。

【図 3】枚葉基板を使用した有機 EL 素子の製造方法の模式図である。

【図 4】図 3 に示される第 2 電極の第 1 層形成用の第 2 電極第 1 層形成用気相堆積装置の概略図である。

【図 5】図 3 に示される第 2 電極の第 2 層形成用の第 2 電極第 2 層形成用気相堆積装置の概略図である。

【図 6】図 4 に示す原料蒸発手段と、図 5 に示す原料蒸発手段との位置関係を示す模式図である。

【図 7】封止部材により密着封止した有機 EL 素子の製造工程の模式図である。

【図 8】封止部材により密着封止した有機 EL 素子の他の製造工程の模式図である。

【符号の説明】

【 0 1 9 0 】

1 有機 EL パネル

1 0 1 基板

1 0 2 第 1 電極

1 0 3 正孔輸送層（正孔注入層）

1 0 4 有機化合物層（発光層）

1 0 5 電子注入層

1 0 6 第 2 電極

1 0 6 a 第 1 層

1 0 6 b 第 2 層

1 0 7 接着剤層

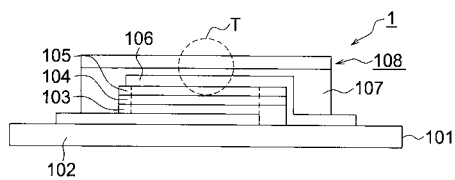
1 0 8、3 0 1 a 封止部材

2 製造装置

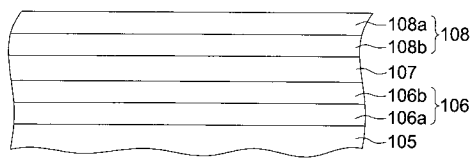
- 2 0 7 a 第 1 層用第 2 電極形成気相堆積装置
- 2 0 7 b 第 2 層用第 2 電極形成気相堆積装置
- D 1、D ' 1 原料容器
- D 2 第 1 層形成用原料
- D ' 2 第 2 層形成用原料
- 3、4 製造工程
- 3 0 1、4 0 2 第 1 供給工程
- 3 0 2、4 0 1 第 2 供給工程
- 3 0 2 a、4 0 1 a 有機 E L 素子
- 3 0 3、4 0 3 配置工程
- 3 0 4、4 0 4 貼合工程
- 3 0 5、4 0 5 回収工程

10

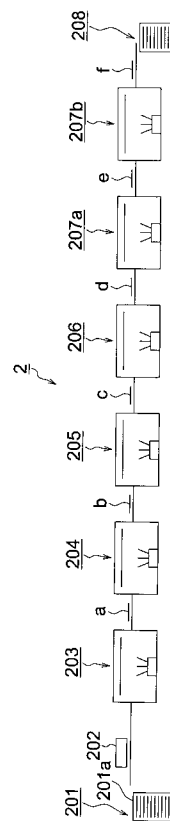
【図 1】



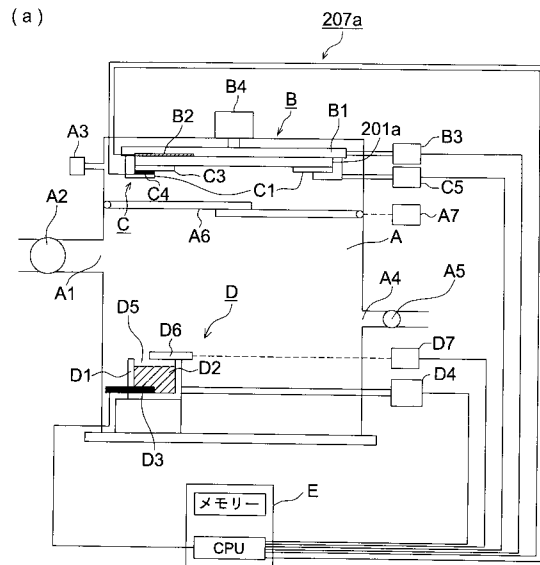
【図 2】



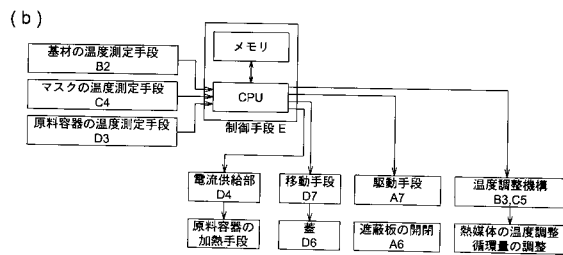
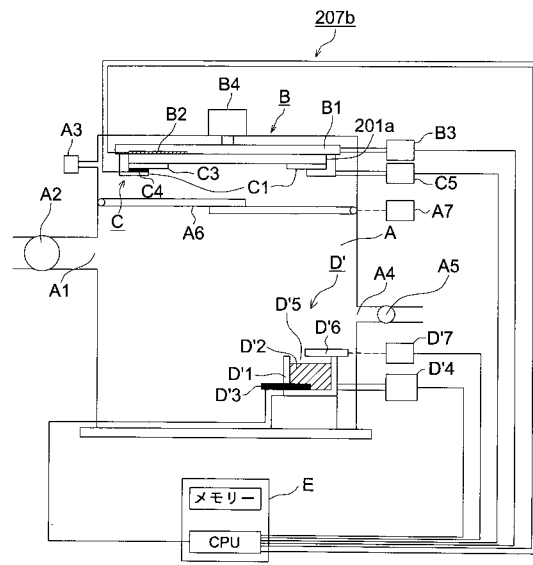
【図 3】



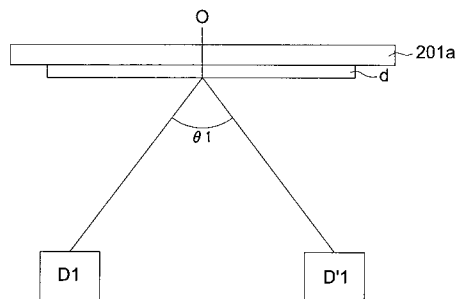
【図 4】



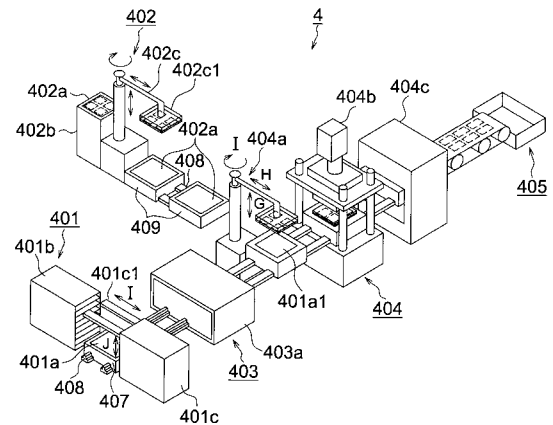
【図 5】



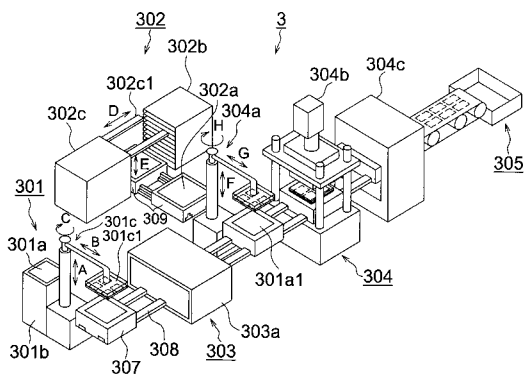
【図 6】



【図 8】



【図 7】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開 2006 - 228573 (JP, A)
特開 2006 - 286401 (JP, A)
特開 2005 - 063928 (JP, A)
特開 2001 - 093661 (JP, A)
特開 2004 - 171861 (JP, A)
特開 2003 - 272874 (JP, A)
特開 2003 - 068470 (JP, A)
特開平 08 - 124677 (JP, A)
国際公開第 2003 / 106582 (WO, A1)
特開 2005 - 63928 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H01L 51 / 50 - 51 / 56
H01L 27 / 32
H05B 33 / 00 - 33 / 28

专利名称(译)	制造有机电致发光面板的方法，有机电致发光面板		
公开(公告)号	JP5286637B2	公开(公告)日	2013-09-11
申请号	JP2006016122	申请日	2006-01-25
[标]申请(专利权)人(译)	柯尼卡株式会社		
申请(专利权)人(译)	柯尼卡美能达控股公司		
当前申请(专利权)人(译)	柯尼卡美能达有限公司		
[标]发明人	村山真昭		
发明人	村山 真昭		
IPC分类号	H05B33/10 H05B33/04 H01L51/50 H05B33/26		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/04 H05B33/14.A H05B33/26.Z		
F-TERM分类号	3K007/AB11 3K007/BA07 3K007/BB01 3K007/CA01 3K007/CA04 3K007/CA05 3K007/CA06 3K007/CB04 3K007/CC00 3K007/DB03 3K007/FA01 3K007/FA02 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/DD12 3K107/DD15 3K107/DD19 3K107/DD29 3K107/DD42 3K107/DD42Y 3K107/DD44 3K107/DD44Y 3K107/EE42 3K107/EE43 3K107/EE44 3K107/EE45 3K107/EE46 3K107/EE55 3K107/FF15 3K107/GG04 3K107/GG28		
审查员(译)	池田弘		
其他公开文献	JP2007200645A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供一种制造有机EL（电致发光）面板的方法，其中当通过粘合剂粘合密封构件以制造通过粘合密封的有机EL面板时，有机EL元件的性能不会劣化 - 密封，并提供有机EL面板。解决方案：有机EL元件在基板上具有第一电极，形成在第一电极上的有机EL层，该有机EL层包括至少一个包含发光层的有机化合物层和第二电极。这些元件通过粘合剂层与密封构件粘合密封。第二电极具有多层构造，其具有至少两层并且以至少两个层压步骤形成。 Ž

有機EL素子 No.	第2電極の構成 (層)	備考
1-1	1	第2電極の厚さ0.3 μm
1-2	2	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm
1-3	2	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm
1-4	1	第2電極の厚さ0.6 μm
1-5	2	第1層の厚さ0.3 μm、第2層の厚さ0.3 μm
1-6	1	第2電極の厚さ0.45 μm
1-7	3	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm、第3層の厚さ0.15 μm
1-8	1	第2電極の厚さ0.6 μm
1-9	4	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm、第3層の厚さ0.15 μm、第4層の厚さ0.15 μm
1-10	1	第2電極の厚さ0.75 μm
1-11	5	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm、第3層の厚さ0.15 μm、第4層の厚さ0.15 μm、第5層の厚さ0.15 μm
1-12	1	第2電極の厚さ0.9 μm
1-13	6	第1層の厚さ0.15 μm、第2層の厚さ0.15 μm、第3層の厚さ0.15 μm、第4層の厚さ0.15 μm、第5層の厚さ0.15 μm、第6層の厚さ0.15 μm