

(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2014-67599

(P2014-67599A)

(43) 公開日 平成26年4月17日(2014.4.17)

|                                |                |             |
|--------------------------------|----------------|-------------|
| (51) Int.Cl.                   | F I            | テーマコード (参考) |
| <b>H05B 33/10 (2006.01)</b>    | H05B 33/10     | 3K107       |
| <b>H05B 33/04 (2006.01)</b>    | H05B 33/04     | 5C094       |
| <b>H01L 51/50 (2006.01)</b>    | H05B 33/14 A   |             |
| <b>G09F 9/30 (2006.01)</b>     | G09F 9/30 365Z |             |
| <b>H01L 27/32 (2006.01)</b>    | G09F 9/30 309  |             |
| 審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 13 頁) |                |             |

(21) 出願番号 特願2012-212295 (P2012-212295)  
 (22) 出願日 平成24年9月26日 (2012.9.26)

(71) 出願人 000003193  
 凸版印刷株式会社  
 東京都台東区台東1丁目5番1号  
 (74) 代理人 100105854  
 弁理士 廣瀬 一  
 (74) 代理人 100116012  
 弁理士 宮坂 徹  
 (72) 発明者 越山 良樹  
 東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内  
 Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC23 CC45 EE42  
 EE46 EE53 EE55 FF17 GG28  
 GG37  
 5C094 AA38 BA27 DA07 GB10

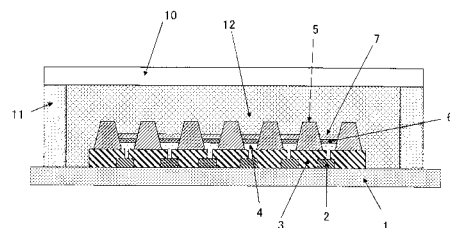
(54) 【発明の名称】 有機ELディスプレイの製造方法及び有機ELディスプレイ

## (57) 【要約】

【課題】本発明は、EL素子の光学特性を損なうことなく、防湿性に優れた有機ELディスプレイ及びその有機ELディスプレイの製造方法を提供する。

【解決手段】本発明に係る有機ELディスプレイの製造方法は、基板1上に設けられたパターン状の第一電極4と、第一電極4の端部を被覆する隔壁5と、第一電極4上であって隔壁5で区画された領域に設けられた有機発光媒体層6と、有機発光媒体層6を挟んで第一電極4に対向する第二電極7と、を備えた有機EL素子基板に封止基板10を第二電極7側から貼り合わせてなる有機ELディスプレイの製造方法において、封止基板10の一方の面には、少なくとも無機充填剤12とシール剤11とが設けられており、無機充填剤12及びシール剤11を有機EL素子基板と封止基板10とで挟むように、有機EL素子基板と封止基板10とを不活性ガス雰囲気下で貼り合わせることを特徴とする。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

基板上に設けられたパターン状の第一電極と、前記第一電極の端部を被覆する隔壁と、前記第一電極上であって前記隔壁で区画された領域に設けられた有機発光媒体層と、前記有機発光媒体層を挟んで前記第一電極に対向する第二電極と、を備えた有機 E L 素子基板に封止基板を前記第二電極側から貼り合わせてなる有機 E L ディスプレイの製造方法において、

前記封止基板の一方の面には、少なくとも無機充填剤とシール剤とが設けられており、前記無機充填剤及び前記シール剤を前記有機 E L 素子基板と前記封止基板とで挟むように、前記有機 E L 素子基板と前記封止基板とを不活性ガス雰囲気下で貼り合わせることを特徴とする有機 E L ディスプレイの製造方法。

10

## 【請求項 2】

前記無機充填剤は、少なくともポリシラザン組成物を含む材料からなることを特徴とする請求項 1 に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

## 【請求項 3】

前記無機充填剤は、前記ポリシラザン組成物と、前記ポリシラザン組成物を溶解する溶媒とを含有する溶液を不活性ガス雰囲気下で前記封止基板上にコーティングし、前記コーティングされた前記溶液をベーキング処理してなることを特徴とする請求項 2 に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

## 【請求項 4】

前記シール剤は、前記有機 E L 素子基板と前記封止基板とを対向配置した際に、有機 E L 発光領域の周囲を取り囲むように前記封止基板上に形成されてなることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

20

## 【請求項 5】

前記無機充填剤は、少なくとも前記シール剤の内側領域に形成されてなることを特徴とする請求項 1 から請求項 4 のいずれか一項に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

## 【請求項 6】

前記封止基板は、少なくとも平板状であることを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

## 【請求項 7】

前記有機 E L 素子基板と前記封止基板とを前記不活性ガス雰囲気下で貼り合わせる前に、前記第二電極上に保護膜を形成することを特徴とする請求項 1 から請求項 6 のいずれか一項に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法。

30

## 【請求項 8】

請求項 1 から請求項 7 のいずれか一項に記載の有機 E L ディスプレイの製造方法を用いて製造されたことを特徴とする有機 E L ディスプレイ。

## 【請求項 9】

基板上に形成されたパターン状の第一電極と、  
前記第一電極の端部を被覆するように形成された隔壁と、  
前記第一電極上であって前記隔壁で区画された領域に形成された有機発光媒体層と、  
前記有機発光媒体層を挟むように前記第一電極に対向して形成された第二電極と、  
前記第二電極及び前記隔壁を覆うように形成された無機充填剤と、  
前記無機充填剤の外側領域に形成されたシール剤と、  
前記シール剤上及び前記無機充填剤上に形成された封止材と、を備えたことを特徴とする有機 E L ディスプレイ。

40

## 【請求項 10】

前記第二電極と前記無機充填剤との間に、保護膜を備えたことを特徴とする請求項 9 に記載の有機 E L ディスプレイ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

50

## 【0001】

本発明は、有機ELディスプレイの製造方法及び有機ELディスプレイに関する。特に、防湿性を向上させた有機ELディスプレイの製造方法及び有機ELディスプレイに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

従来、無機EL (Electro-Luminescence) 装置や有機EL装置などのEL装置は、自己発光を行い、高輝度の画面を得ることができるため、例えば薄型、軽量の携帯機器等のディスプレイや照明装置として広く実用化が進められている。このEL装置は、基板上に、少なくとも一方が透明電極からなる一対の電極層とそれらの間に挟まれた発光層とを有するEL素子が形成された構造を有している。このようなEL装置においては、水分の浸入によってEL素子の発光層や電極層がダメージを受け、画質の劣化や寿命の短縮化を招くおそれがある。このため、外部からの水分の浸入を防ぐ目的でEL素子の表面を保護膜で覆うことが提案されている。

10

## 【0003】

例えば、特許文献1には、EL素子の表面にポリシラザンを塗布してシリカ膜あるいはシリカ系膜を形成し、これを保護膜とする技術が開示されている。また、特許文献2には、第1の電極層と発光層と第2の電極層とを有するEL素子が形成されたEL装置において、EL素子を覆うようにEL素子の表面上に乾式法により形成された第1の保護膜と、第1の保護膜の表面上に湿式法により形成され且つ第1の保護膜の未付着部分を穴埋めするための第2の保護膜とを備えたEL装置が提案されている。

20

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0004】

【特許文献1】特開2002-222691号公報

【特許文献2】特開2005-056587号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

しかしながら、特許文献1のように、EL素子の表面に直接ポリシラザンを塗布してシリカ膜等を形成しようとする、塗布されたポリシラザンの溶媒により、EL素子の電極層や発光層にダメージを与えるおそれがある。特許文献2では、EL素子の表面上に乾式法により保護膜を形成し、ポリシラザン含有組成物の硬化物からなる硬化物層を湿式法で形成しているが、保護膜の防湿性が優れていないとポリシラザンの溶媒が保護膜層を浸透し、同じくEL素子の電極層や発光層にダメージを与えるおそれがある。また、ポリシラザンの溶媒を除去するためにベーキング処理を行うが、ベーキング時の熱によりEL素子の光学特性を損なうおそれがある。

30

## 【0006】

本発明はこのような従来の問題点を解消するためになされたもので、簡単な構造でありながらEL素子にダメージを与えることなく、水分の浸入による劣化を防止することができる有機ELディスプレイを提供する目的とする。また、本発明は、このような有機ELディスプレイを得ることができる有機ELディスプレイの製造方法を提供することも目的としている。

40

## 【課題を解決するための手段】

## 【0007】

本発明の一態様は、基板上に設けられたパターン状の第一電極と、前記第一電極の端部を被覆する隔壁と、前記第一電極上であって前記隔壁で区画された領域に設けられた有機発光媒体層と、前記有機発光媒体層を挟んで前記第一電極に対向する第二電極と、を備えた有機EL素子基板に封止基板を前記第二電極側から貼り合わせてなる有機ELディスプレイの製造方法において、前記封止基板の一方の面には、少なくとも無機充填剤とシール

50

剤とが設けられており、前記無機充填剤及び前記シール剤を前記有機ＥＬ素子基板と前記封止基板とで挟むように、前記有機ＥＬ素子基板と前記封止基板とを不活性ガス雰囲気下で貼り合わせることを特徴とする有機ＥＬディスプレイの製造方法である。

#### 【０００８】

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記無機充填剤は、少なくともポリシラザン組成物を含む材料からなることとしてもよい。

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記無機充填剤は、前記ポリシラザン組成物と、前記ポリシラザン組成物を溶解する溶媒とを含有する溶液を不活性ガス雰囲気下で前記封止基板上にコーティングし、前記コーティングされた前記溶液をベーキング処理してなることとしてもよい。

10

#### 【０００９】

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記シール剤は、前記有機ＥＬ素子基板と前記封止基板とを対向配置した際に、有機ＥＬ発光領域の周囲を取り囲むように前記封止基板上に形成されてなることとしてもよい。

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記無機充填剤は、少なくとも前記シール剤の内側領域に形成されてなることとしてもよい。

#### 【００１０】

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記封止基板は、少なくとも平板状であることとしてもよい。

また、上記の有機ＥＬディスプレイの製造方法において、前記有機ＥＬ素子基板と前記封止基板とを前記不活性ガス雰囲気下で貼り合わせる前に、前記第二電極上に保護膜を形成することとしてもよい。

20

#### 【００１１】

本発明の別の態様は、上述の有機ＥＬディスプレイの製造方法を用いて製造されたことを特徴とする有機ＥＬディスプレイである。

本発明のさらに別の態様は、基板上に形成されたパターン状の第一電極と、前記第一電極の端部を被覆するように形成された隔壁と、前記第一電極上であって前記隔壁で区画された領域に形成された有機発光媒体層と、前記有機発光媒体層を挟むように前記第一電極に対向して形成された第二電極と、前記第二電極及び前記隔壁を覆うように形成された無機充填剤と、前記無機充填剤の外側領域に形成されたシール剤と、前記シール剤上及び前記無機充填剤上に形成された封止材と、を備えたことを特徴とする有機ＥＬディスプレイである。

30

また、上記の有機ＥＬディスプレイにおいて、前記第二電極と前記無機充填剤との間に、保護膜を備えたこととしてもよい。

#### 【発明の効果】

#### 【００１２】

本発明によれば、有機ＥＬ素子の光学特性を損なうことなく、防湿性に優れた有機ＥＬディスプレイ及びそ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】本発明の一実施形態に係る有機ＥＬディスプレイを示す断面図である。

【図２】本発明の一実施形態に係る有機ＥＬディスプレイを示す断面図である。

【図３】有機ＥＬ素子基板と封止基板とを貼り合わせる様子を示す図である。

#### 【発明を実施するための形態】

#### 【００１４】

以下、本発明に係る実施形態について図面を参照して説明する。なお、以下の実施形態の説明において参照する図面は、本発明の構成を説明するためのものであり、図示される各部の大きさや厚さ、寸法等は、実際のものとは異なる。また、本発明はこれらに限定されるものではない。

本実施形態に係る有機ＥＬディスプレイ及びその製造方法を、図１から図３を参照して

50

説明する。

#### 【0015】

図1は、本発明の一実施形態に係る有機ELディスプレイの断面図である。この実施形態に係る有機ELディスプレイは、基板1、薄膜トランジスタ(TFT)2、平坦化膜層3、第一電極4、隔壁5、有機発光媒体層6、第二電極7、封止基板10、シール剤11、及び無機充填剤12を含む有機ELディスプレイである。より詳しくは、この実施形態に係る有機ELディスプレイは、基板1上に形成されたパターン状の第一電極4と、第一電極4の端部を被覆するように形成された隔壁5と、第一電極4上であって隔壁5で区画された領域に形成された有機発光媒体層6と、有機発光媒体層6を挟むように第一電極4に対向して形成された第二電極7と、第二電極7及び隔壁5を覆うように形成された無機充填剤12と、無機充填剤12の外側領域に形成されたシール剤11と、シール剤11上及び無機充填剤12上に形成された封止材10と、を備えた有機ELディスプレイである。

10

#### 【0016】

図2は、本発明の別の実施形態に係る有機ELディスプレイの断面図である。この実施形態に係る有機ELディスプレイは、図1で示す基材の他に保護膜13をさらに備えた有機ELディスプレイである。より詳しくは、この実施形態に係る有機ELディスプレイは、第二電極7と無機充填剤12との間に、保護膜13を備えた有機ELディスプレイである。

#### 【0017】

以下、本実施形態に係る有機ELディスプレイを構成する各部の材料について説明する。

20

#### (1) 基板1

本実施形態に係る基板1の材料には、例えば、ガラスや石英、ポリプロピレン、ポリエーテルサルホン、ポリカーボネート、シクロオレフィンポリマー、ポリアリレート、ポリアミド、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のプラスチックフィルムやシート、または、これらプラスチックフィルムやシートに酸化珪素、酸化アルミニウム等の金属酸化物や、弗化アルミニウム、弗化マグネシウム等の金属弗化物、窒化珪素、窒化アルミニウムなどの金属窒化物、酸窒化珪素などの金属酸窒化物、アクリル樹脂やエポキシ樹脂、シリコーン樹脂、ポリエステル樹脂などの

30

#### 【0018】

なお、本実施形態に係る基板1の材料は、これらの材料に限定されるものではない。また、基材1の透光性については、光取出しをどちらの面から行うかに応じて選択すればよい。上述の材料からなる基板1には、有機EL素子内への水分の侵入を避けるために、無機膜を形成したり、フッ素樹脂を塗布したりして、防湿処理や疎水性処理を施してあることが好ましい。特に、後述する有機発光媒体層6への水分の侵入を避けるために、基板1における含水率およびガス透過係数を小さくすることが好ましい。

40

#### 【0019】

#### (2) 薄膜トランジスタ2(TFT)

また、基板1として、必要に応じて、薄膜トランジスタ(TFT)2を形成した駆動用基板を用いてもよい。アクティブ駆動型有機EL素子とする場合には、TFT2上には平坦化膜層3が形成されており、平坦化膜層3上には有機EL素子の第一電極4が設けられており、かつ、TFT2と第一電極4とが平坦化膜層3に設けたコンタクトホールを介して電気接続されていることが好ましい。このように構成することで、TFT2と、有機EL素子との間で、優れた電気導電性を得ることができる。基板1上に設けられた薄膜トランジスタ2には、公知の薄膜トランジスタを用いることができる。具体的には、主として、ソース/ドレイン領域及びチャネル領域が形成される活性層、ゲート絶縁膜及びゲート

50

電極から構成される薄膜トランジスタが挙げられる。薄膜トランジスタ 2 の構造としては、特に限定されるものではなく、例えば、スタガ型、逆スタガ型、トップゲート型、コプレーナ型等が挙げられる。

#### 【0020】

##### (3) 平坦化膜層 3

次に、TFT 2 上に平坦化膜層 3 を形成する。この平坦化膜層 3 の材料には、例えば、 $\text{SiO}_2$ 、スピノングラス、 $\text{SiN}$  ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )、 $\text{TaO}$  ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) 等の無機材料、ポリイミド樹脂、アクリル樹脂、フォトレジスト材料、ブラックマトリックス材料等の有機材料等を用いることができる。平坦化膜層 3 の形成方法は、上述の材料に応じて、例えば、スピノング、CVD、蒸着法等から選択して用いることができる。必要に応じて、平坦化膜層 3 の材料に感光性樹脂を用い、フォトリソグラフィの手法により、あるいは一旦全面に平坦化膜層 3 を形成した後、下層の薄膜トランジスタ 2 に対応した位置にドライエッチング、ウェットエッチング等でコンタクトホールを形成する。形成したコンタクトホールは、その後導電性材料で埋められる。こうすることで、平坦化膜層 3 の上層に形成される第一電極 4 (画素電極) との導通を図ることができる。平坦化膜層 3 の厚みは、下層の TFT 2、コンデンサ、配線等を覆うことができればよい。よって、平坦化膜層 3 の厚みは数  $\mu\text{m}$ 、例えば 3  $\mu\text{m}$  程度あればよい。

#### 【0021】

##### (4) 第一電極 4

次に、平坦化膜層 3 上に第一電極 4 を形成する。この第一電極 4 は、平坦化膜層 3 上に成膜され、必要に応じてパターニングを行うことで形成される。本実施形態では、第一電極 4 は隔壁 5 によって区画され、各画素に対応した画素電極となっている。第一電極 4 の材料としては、例えば、ITO (インジウムスズ複合酸化物) やインジウム亜鉛複合酸化物、亜鉛アルミニウム複合酸化物などの金属複合酸化物や、金、白金などの金属材料や、これら金属酸化物や金属材料の微粒子をエポキシ樹脂やアクリル樹脂などに分散した微粒子分散膜を、単層もしくは積層したものをいずれも使用することができる。第一電極 4 を陽極とする場合には、ITO など仕事関数の高い材料を選択することが好ましい。下方 (図 1 では基板 1 側) から光を取り出す、いわゆるボトムエミッション構造の場合は、第一電極 4 の材料として、透光性のある材料を選択する必要がある。必要に応じて、第一電極 4 の配線抵抗を低くするために、例えば銅やアルミニウムなどの金属材料を補助電極として併設してもよい。第一電極 4 の形成方法としては、材料に応じて、例えば抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法などの乾式成膜法や、グラビア印刷法、スクリーン印刷法などの湿式成膜法などを用いることができる。第一電極 4 のパターニング方法としては、材料や成膜方法に応じて、例えばマスク蒸着法、フォトリソグラフィ法、ウェットエッチング法、ドライエッチング法などの既存のパターニング法を用いることができる。なお、基板 1 として TFT 2 を形成した物を用いる場合は、下層の画素に対応して導通を図ることができるように第一電極 4 を形成する。

#### 【0022】

##### (5) 隔壁 5

次に、平坦化膜層 3 上に隔壁 5 を形成する。この隔壁 5 は、画素に対応した発光領域を区画するように格子状に形成されている。ここで、隔壁 5 は、画素電極である第一電極 4 の端部を覆うように形成されているのが好ましい。一般的にアクティブマトリクス駆動型の表示装置は、各画素 (サブピクセル) に対して画素電極が形成され、それぞれの画素ができるだけ広い面積を占有しようとする。このため、画素電極の端部を覆うように形成される隔壁 5 の最も好ましい形状は、各画素電極を最短距離で区切る格子状を基本とする。隔壁 5 の形成方法としては、従来と同様、第一電極 4 上に無機膜を一樣に形成し、レジストでマスクした後、ドライエッチングを行う方法や、第一電極 4 上に感光性樹脂を積層し、フォトリソ法により所定のパターンとする方法が挙げられる。必要に応じて撥水剤を添加したり、プラズマや UV を照射して形成後にインクに対する撥液性を隔壁 5 に付与

10

20

30

40

50

することもできる。隔壁5の好ましい高さは、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$ の範囲内であり、より好ましくは $0.5\ \mu\text{m} \sim 3\ \mu\text{m}$ の範囲内である。

#### 【0023】

##### (6) 有機発光媒体層6

次に、第一電極4上に有機発光媒体層6を形成する。本実施形態では、有機発光媒体層6を、発光物質を含む単層膜、あるいは多層膜で形成することができる。有機発光媒体層6を多層膜で形成した場合の構成例としては、正孔輸送層、電子輸送性発光層または正孔輸送性発光層、電子輸送層からなる2層構成や正孔輸送層、発光層、電子輸送層からなる3層構成が挙げられる。また、必要に応じて正孔（電子）注入機能と正孔（電子）輸送機能を分けたり、正孔（電子）の輸送をブロックする層などを挿入することにより、さらに多層形成してもよい。なお、本実施形態中の有機発光層とは有機発光材料を含む層を指し、電荷輸送層とは正孔輸送層等それ以外の発光効率を上げるために形成されている層を指す。

#### 【0024】

有機発光媒体層6に用いる正孔輸送材料の例としては、銅フタロシアニン、テトラ（*t*-ブチル）銅フタロシアニン等の金属フタロシアニン類及び無金属フタロシアニン類、キナクリドン化合物、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'*-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、*N,N'*-ジ（1-ナフチル）-*N,N'*-ジフェニル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン等の芳香族アミン系低分子正孔注入輸送材料や、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリビニルカルバゾール、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフェン）とポリスチレンスルホン酸との混合物などの高分子正孔輸送材料、ポリチオフェンオリゴマー材料、 $\text{Cu}_2\text{O}$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Mn}_2\text{O}_3$ 、 $\text{FeO}_x$ （ $x \sim 0.1$ ）、 $\text{NiO}$ 、 $\text{CoO}$ 、 $\text{Pr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ag}_2\text{O}$ 、 $\text{MoO}_2$ 、 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ThO}_2$ 、 $\text{V}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $\text{MoO}_3$ 、 $\text{WO}_3$ 、 $\text{MnO}_2$ などの無機材料、その他既存の正孔輸送材料等が挙げられる。

#### 【0025】

有機発光媒体層6の発光材料が高分子材料の場合には、発光層と正孔輸送層との間、または正孔輸送層と電子輸送層との間に、正孔の輸送性を高め、陰極からの電子をブロックする機能を持つインターレイヤ層を形成することが好ましい。このインターレイヤ層に用いる材料としては、例えば、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリアリーレン誘導体、アリールアミン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体などの、芳香族アミンを含むポリマーなどが挙げられる。インターレイヤ層は、これらの材料を溶媒に溶解または分散させ、スピンコート法等を用いた各種塗布方法や凸版印刷方法を用いて形成することができる。

#### 【0026】

有機発光媒体層6の発光材料としては、例えば、9,10-ジアリールアントラセン誘導体、ピレン、コロネン、ペリレン、ルブレン、1,1,4,4-テトラフェニルブタジエン、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム錯体、トリス（4-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム錯体、ビス（8-キノリノラート）亜鉛錯体、トリス（4-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート）アルミニウム錯体、トリス（4-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート）アルミニウム錯体、ビス（2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート）〔4-（4-シアノフェニル）フェノラート〕アルミニウム錯体、ビス（2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート）〔4-（4-シアノフェニル）フェノラート〕アルミニウム錯体、トリス（8-キノリノラート）スカンジウム錯体、ビス〔8-（パラートシル）アミノキノリン〕亜鉛錯体及びカドミウム錯体、1,2,3,4-テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、ポリ-2,5-ジヘプチルオキシ-パラ-フェニレンビニレン、クマリン系蛍光体、ペリレン系蛍光体、ピラン系蛍光体、アンスロン系蛍光体、ポルフィリン系蛍光体、キナクリドン系蛍光体、*N,N'*-ジアルキル置換キナクリドン系蛍光体、ナフタルイ

10

20

30

40

50

ミド系蛍光体、N，N'－ジアリール置換ピロロピロール系蛍光体等、Ir錯体等の燐光性発光体などの低分子系発光材料や、ポリフルオレン、ポリパラフェニレンビニレン、ポリチオフェン、ポリスピロなどの高分子材料や、これら高分子材料に前記低分子材料の分散または共重合した材料や、その他既存の蛍光発光材料や燐光発光材料を用いることができる。

#### 【0027】

有機発光媒体層6の電子輸送材料の例としては、2－（4－ビフェニルイル）－5－（4－t－ブチルフェニル）－1，3，4－オキサジアゾール、2，5－ビス（1－ナフチル）－1，3，4－オキサジアゾール、オキサジアゾール誘導体やビス（10－ヒドロキシベンゾ[h]キノリノラート）ベリリウム錯体、トリアゾール化合物等を用いることができる。また、これらの電子輸送材料に、ナトリウムやバリウム、リチウムといった仕事関数が低いアルカリ金属、アルカリ土類金属を少量ドーピングすることにより、電子注入層としてもよい。

#### 【0028】

有機発光媒体層6の厚さは、有機発光媒体層6を単層または積層により形成する場合においても、1 μm以下であり、好ましくは0.02～0.2 μm程度である。有機発光媒体層6の形成方法としては、材料に応じて、例えば真空蒸着法や、スリットコート、スピコート、スプレーコート、ノズルコート、フレキソ、グラビア、マイクログラビア、凹版オフセットなどのコーティング法や印刷法、インクジェット法などを用いることができる。

#### 【0029】

##### （7）第二電極7

次に、有機発光媒体層6上に第二電極7を形成する。第二電極7を陰極とする場合には、有機発光媒体層6への電子注入効率の高い、仕事関数の低い物質を第二電極7として用いる。具体的には、Mg、Al、Yb等の金属単体を用いたり、発光媒体と接する界面にLiや酸化Li、LiF等の化合物を1 nm程度挟んで、安定性・導電性の高いAlやCuを積層して用いてもよい。または、電子注入効率と安定性を両立させるため、仕事関数が低いLi、Mg、Ca、Sr、La、Ce、Er、Eu、Sc、Y、Yb等の金属1種以上と、安定なAg、Al、Cu等の金属元素との合金系を用いてもよい。具体的には、MgAg、AlLi、CuLi等の合金を使用できる。第二電極7側から光を取り出す、いわゆるトップエミッション構造とする場合には、第二電極7に透光性のある材料を選択する必要がある。第一電極4に用いたITO等の金属複合酸化物を第二電極7として用いることができる。第二電極7としてITOを用いる場合には、第二電極7と有機発光媒体層6との間にLiや酸化Li、LiF等の化合物を形成してもよい。第二電極7の形成方法は、材料に応じて、例えば抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法を用いることができる。第二電極7の厚さに特に制限はないが、50 nm～1000 nm程度が望ましい。

以上のようにして形成された、基板1上に設けられたパターン状の第一電極4と、第一電極4の端部を被覆する隔壁5と、第一電極4上であって隔壁5で区画された領域に設けられた有機発光媒体層6と、有機発光媒体層6を挟んで第一電極4に対向する第二電極7とを備えた基板を、以降、有機EL素子基板20と称する。

#### 【0030】

##### （8）封止基板10

封止基板10としては、気密状態を維持し、所定の強度を有するものであれば特に限定されるものではないが、好ましくは平板状である。透光性基材を用いることで封止基材10側から光を取り出す上面発光素子の封止構造としても使用可能である。封止基板10の材料としては、例えば、ガラスや石英、樹脂等を用いることができる。なお、ガラス平板を用いることで、安価でしかも薄型の有機ELディスプレイとすることができる。このようなガラス材として、コストの面からアルカリガラスが好ましいが、その他、ソーダ石灰ガラス、鉛アルカリガラス、ホウケイ酸ガラス、アルミノケイ酸ガラス、シリカガラス等



のガラス組成のものも好ましい。封止基板 10 としては、ガラス板以外にも、耐湿性フィルムを用いることもできる。この耐湿性フィルムの例としては、プラスチック基材の両面に  $\text{SiO}_x$  を CVD 法で形成したフィルムや、透過性の小さいフィルム、吸水性のあるフィルムまたは吸水剤を塗布した重合体フィルムなどがある。なお、この耐湿性フィルムの水蒸気透過率は、 $10^{-6} \text{ g/m}^2/\text{day}$  以下であることが好ましい。

### 【0031】

#### (9) シール剤 11

シール剤 11 は、有機 EL 素子基板 20 と封止基板 10 とを対向配置した際に、有機 EL 発光領域の周囲を取り囲む位置にあれば有機 EL 素子基板 20、封止基板 10 のどちらに形成しても構わないが、シール剤 11 の内側に後述する無機充填剤 12 を充填させるためには封止基板 10 側の方が簡便なので好ましい。シール剤 11 としては、有機光硬化型接着剤や熱硬化型接着剤を適宜用いることができる。具体的には、例えば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接着剤、エポキシ系などの熱及び化学硬化型（二液混合）等の接着剤、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤等を用いることができる。但し、無機充填剤 12 の形成に溶媒を使用し、溶媒除去のため基板 1 に熱をかける場合は熱硬化型接着剤を使用することができない。シール剤 11 の形成方法は、不活性ガス雰囲気下で行い、例えばスクリーン印刷、ディスペンス法等を用いることができる。

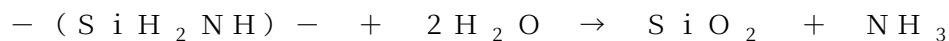
### 【0032】

#### (10) 無機充填剤 12

無機充填剤 12 には、少なくともポリシラザン組成物を含む材料を用いることができる。ポリシラザン組成物とは、例えば、下記式：



で表される繰り返し単位を有するポリシラザンから形成された材料である。ポリシラザンは、下記反応によって水と反応してシリカ ( $\text{SiO}_2$ ) を生成する。この反応により、ポリシラザン組成物は水分を吸収する能力を発揮する。



### 【0033】

なお、ポリシラザン組成物を構成するポリシラザンは、上記繰り返し単位を有するものに限られるものではなく、水分を吸収する機能を持つものであれば他の繰り返し単位を有するものであっても構わない。例えば、 $-(\text{SiH}_2\text{NH})-$ 、 $-(\text{SiRHNH})-$ 、 $-(\text{SiR}_2\text{NH})-$ 、及び  $-(\text{SiBNH})-$ （なお、式中の R は、メチル基、エチル基などの炭化水素を表す。）から選ばれる少なくとも 1 つの繰り返し単位を有するポリシラザンであれば、同様な効果を発揮する。

### 【0034】

無機充填剤 12 は、シール剤 11 の内側領域に形成されている。この無機充填剤 12 を、シール剤 11 を形成する前に封止基板 10 に形成してもよいし、シール剤 11 を形成した後に封止基板 10 に形成してもよい。無機充填剤 12 の形成は、不活性ガス雰囲気下で行われ、ポリシラザン組成物と、ポリシラザン組成物を溶解する溶媒とを含有する溶液の層を、例えばスクリーン印刷、スプレーコート、ノズルプリンティング、凸版印刷、ディスペンス等の方法を用いて形成する。次に、形成された溶液の層から溶媒を除去することにより、無機充填剤 12 を形成することができる。使用する溶媒としては、ポリシラザン組成物と容易に反応してしまう様なアルコール系や水分を含有するものを用いることは好ましくない。具体的には、例えば脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素等の炭化水素溶媒、ハロゲン化炭化水素溶媒、脂肪族エーテル、脂環式エーテル等のエーテル類が使用することができる。無機充填剤 12 の厚みは、 $0.1 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$  が望ましく、より好ましくは  $1 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$  である。

### 【0035】

以上のようにして形成した有機 EL 素子基板 20 と封止基板 10 とを最後に貼り合わせ

る。有機EL素子基板20と封止基板10との貼合わせは、貼合安定性、貼合部内への気泡混入防止、可撓性封止基板の平面性保持等を考慮し、 $10 \sim 1 \times 10^{-5}$  Paの減圧条件で行うことが好ましい。

また、有機EL素子基板20と封止基板10との貼合わせは、不活性ガス雰囲気下で行われるのが好ましい。このようにすることで、貼合わせ後の無機充填剤12は、ポリシラザン組成物のままであり、水分を吸湿する能力を備えることができる。

#### 【0036】

また、有機EL素子基板20と封止基板10とを貼合わせる際には、図3(a)、(b)に示すように、無機充填剤12及びシール剤11を有機EL素子基板20と封止基板10とで挟むようにして貼り合わせる。ここで、図3(a)は、有機EL素子基板20と封止基板10とを貼り合わせる前の様子を示す図である。また、図3(b)は、有機EL素子基板20と封止基板10とを貼り合わせた後の様子を示す図である。

#### 【0037】

##### (11) 保護膜13

第二電極7上には保護膜13が形成されている(図2を参照)。換言すると、第二電極7と無機充填剤12との間には、保護膜13が形成されている。この保護膜13は、電気絶縁性を有し、水分、酸素および低分子成分に対するバリア性を有する材料で形成される。保護膜13の材料には、例えば、酸化ケイ素、酸化アルミ、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化錫、インジウム錫オキシド(ITO)及びチッ化ケイ素からなる群から選ばれる少なくとも1種以上の無機材料を使用できる。保護膜13の形成方法としては、例えばスパッタリング法、CVD法、及び真空蒸着法などを用いることができる。ポリシラザン組成物からなる無機充填剤12の吸湿能力と、保護膜13を組み合わせることで一層顕著な防湿効果が得られる。また、保護膜13は、ポリシラザン組成物が水分と反応してシリカ膜になる際に発生する $H_2$ や $NH_3$ を防ぐことができる。保護膜13の厚みは、膜の防湿性によるため限定されるものではないが、 $0.2 \mu m \sim 10 \mu m$ が望ましい。

なお、この保護膜13は、有機EL素子基板20と封止基板10とを不活性ガス雰囲気下で貼り合わせる前に、第二電極7上に形成されるものである。

#### 【0038】

##### <実施形態の効果>

以上のように、本実施形態に係る有機ELディスプレイの製造方法であれば、封止基板10の一方の面に少なくともシール剤11と無機充填剤12とを形成している。そして、この無機充填剤12にはポリシラザン組成物を含む材料が使用されている。さらに、この無機充填剤12が形成された封止基板10と有機EL素子基板20との貼合わせを不活性ガス雰囲気下で行うので、貼合わせ後の無機充填剤12は、ポリシラザン組成物のままであり、水分を吸湿する能力を備えている。なお、この無機充填剤12は、シール剤11またはシール剤11/基板1界面を透過してきた水分と反応してシリカ膜になる。

#### 【0039】

また、本実施形態に係る有機ELディスプレイの製造方法であれば、ポリシラザン組成物と、ポリシラザン組成物を溶解する溶媒とを含有する溶液のコーティングやベーキング処理は封止基板10側で行う。このため、有機EL素子基板20が溶剤や熱による影響を受けることのない。よって、光学特性を劣化させることはない。有機EL素子基板20に外部から水分が透過してくると、有機EL素子基板20と封止基板10はシリカ膜を介して密着することになるので非常に防湿性が高くなる。また、第二電極7上にさらに保護膜13を設けると、一層の防湿効果が得られるし、ポリシラザン組成物が水分と反応してシリカ膜になる際に発生する $H_2$ や $NH_3$ を防ぐことができる。

#### 【0040】

以下、本発明の実施例及び比較例について説明する。

##### (実施例1)

本実施例では、基板1上に設けられた薄膜トランジスタ2と、画素電極(第一電極4)とを備えた厚さ $0.7 \text{ mm}$ のアクティブマトリクス基板を用いた。このアクティブマトリ

クス基板のサイズは、対角 5 インチであり、画素数は、 $320 \times 240$  である。画素電極の端部を被覆し画素を区画するような形状で隔壁 5 を形成した。隔壁 5 は、日本ゼオン社製、商品名「ZWD6216-6」で表示されるポジレジストをスピコート法を用いてアクティブマトリクス基板の全面に高さ（厚み） $2\text{ }\mu\text{m}$  で形成した。その後、フォトリソグラフィ法を用いて、幅  $40\text{ }\mu\text{m}$  の隔壁 5 を形成した。これによりサブピクセル数  $960 \times 240$  ドット、 $0.12\text{ mm} \times 0.36\text{ mm}$  ピッチの画素領域が区画された。

#### 【0041】

次に、画素電極上に正孔輸送層を成膜した。正孔輸送層には、スパッタリング法でメタルマスクを用いて厚み  $30\text{ nm}$  の酸化モリブデンを成膜した。

次に、隔壁 5 に挟まれた画素電極の真上に、ラインパターンに合わせてインターレイヤ層を凸版印刷法で印刷を行った。インターレイヤ層の材料であるポリビニルカルbazool誘導体を濃度 0.7% になるようにトルエンに溶解させたインキを用いて、印刷を行った。印刷、乾燥後のインターレイヤ層の膜厚は、 $20\text{ nm}$  となった。

#### 【0042】

次に、隔壁 5 に挟まれた画素電極の真上に、ラインパターンに合わせて有機発光層を凸版印刷法で印刷を行った。有機発光層の材料であるポリフェニレンビニレン誘導体を濃度 1% になるようにトルエンに溶解させた有機発光インキを用いて、印刷を行った。印刷、乾燥後の有機発光層の膜厚は、 $70\text{ nm}$  となった。

次に、対向電極（第二電極 7）として真空蒸着法でメタルマスクを用いて厚み  $20\text{ nm}$  のカルシウムを成膜し、続いてメタルマスクを用いて厚み  $200\text{ nm}$  のアルミニウムを成膜した。

#### 【0043】

次に、窒素雰囲気からなるグローブBOXで、封止ガラス（日本電気硝子社製、OA10G ガラス、 $0.7\text{ mm}$  t）にシール剤 11 である紫外線硬化型樹脂（長瀬産業社製、XNR5516Z、スペーサー 1% 含有、スペーサー径  $10\text{ }\mu\text{m}$ ）をディスペンス法で塗布した。紫外線硬化型樹脂は、有機EL素子基板と封止基板 10 を対向配置した際に、有機EL発光領域の周囲を取り囲むように塗布を行った。

#### 【0044】

次に、同環境下でポリシラザン組成物とポリシラザン組成物を溶解する溶媒とを含有する溶液（アットプリード社製、オーラムZ）を紫外線硬化型接着剤の内側領域にディスペンス法で塗布した。その後、グローブBOXと隣接する真空オーブンで溶媒の除去を行い、無機充填剤 12 を形成した。

最後に、第二電極 7 まで形成した有機EL素子基板と、シール剤 11 及び無機充填剤 12 を形成した封止基板 10 とを大気暴露せずに真空貼合わせを行った。貼合わせは、真空度  $1 \times 10^{-2}\text{ Pa}$  で行い、貼合わせた状態で封止基板 10 側から紫外線（ $365\text{ nm}$  波長測定）を  $6000\text{ mJ/cm}^2$  を照射し、紫外線硬化樹脂の硬化を行った。

#### 【0045】

##### （実施例 2）

実施例 1 と同様の方法で第二電極 7 まで形成した有機EL素子基板上に、さらにCVD装置にてSiNx膜を  $2\text{ }\mu\text{m}$  成膜した。SiNx膜は、全圧： $300\text{ Pa}$ 、電力： $1.2\text{ kW}$ 、SiH<sub>4</sub>ガス： $100\text{ sccm}$ 、NH<sub>3</sub>ガス： $0.02\text{ sLm}$ 、N<sub>2</sub>ガス： $0.8\text{ sLm}$  の条件で行った。これを除いて、実施例 1 の手順を繰り返した。

#### 【0046】

##### （比較例 1）

実施例 1 で無機充填剤 12 を形成しない代わりに、外周に形成した紫外線硬化型接着剤を全面に形成したことを除いて、実施例 1 の手順を繰り返した。

##### （評価）

実施例 1、2 及び比較例 1 で得られた有機ELディスプレイを  $60^\circ\text{C}$   $90\%$  RH の恒温恒湿槽に  $1000\text{ h}$  入れ、経過時間に対するダークスポットの進行度を測定した。その測定結果を表 1 に示す。表 1 において、「初期」とは  $60^\circ\text{C}$   $90\%$  RH の恒温恒湿槽に有機

10

20

30

40

50

E Lディスプレイを入れる前（つまり、恒温恒湿槽放置前）の状態を指すものである。

【0047】

【表1】

|      | 平均ダークスポットサイズ(μm <sup>2</sup> ) |          |      |
|------|--------------------------------|----------|------|
|      | 初期                             | 恒温恒湿槽放置後 | 拡大度  |
| 実施例1 | 37                             | 67       | 1.8  |
| 実施例2 | 28                             | 33       | 1.2  |
| 比較例1 | 48                             | 871      | 18.1 |

10

【0048】

表1から分かるように、実施例1及び2は、比較例1に比べると断然ダークスポットの拡大度が少ない。実施例2ではダークスポットの拡大が測定誤差程度で、全く拡大していない。よって、恒温恒槽に放置してもダークスポットがほとんど拡大していないことから素子の劣化現象を抑制した有機ELディスプレイを実現できたことが分かる。

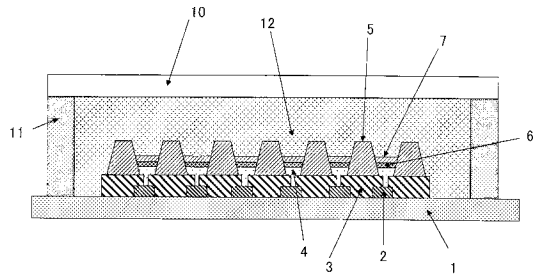
【符号の説明】

【0049】

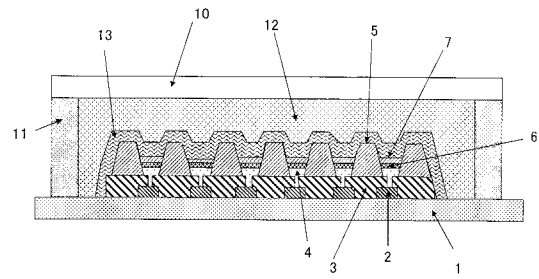
- 1…基板
- 2…薄膜トランジスタ
- 3…平坦化膜層
- 4…第一電極
- 5…隔壁
- 6…有機発光媒体層
- 7…第二電極
- 10…封止基板
- 11…シール剤
- 12…無機充填剤
- 13…保護膜
- 20…有機EL素子基板

20

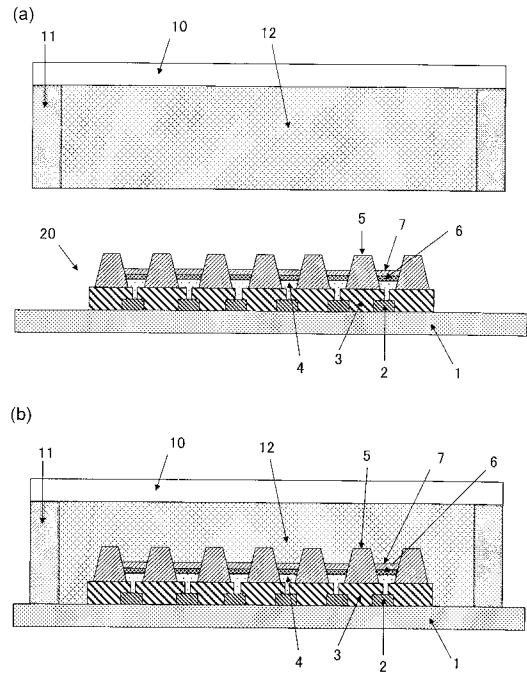
【図 1】



【図 2】



【図 3】



|                |                                                                                                                                                                      |         |            |
|----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|------------|
| 专利名称(译)        | 有机EL显示器的制造方法和有机EL显示器                                                                                                                                                 |         |            |
| 公开(公告)号        | <a href="#">JP2014067599A</a>                                                                                                                                        | 公开(公告)日 | 2014-04-17 |
| 申请号            | JP2012212295                                                                                                                                                         | 申请日     | 2012-09-26 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 凸版印刷株式会社                                                                                                                                                             |         |            |
| 申请(专利权)人(译)    | 凸版印刷株式会社                                                                                                                                                             |         |            |
| [标]发明人         | 越山良樹                                                                                                                                                                 |         |            |
| 发明人            | 越山 良樹                                                                                                                                                                |         |            |
| IPC分类号         | H05B33/10 H05B33/04 H01L51/50 G09F9/30 H01L27/32                                                                                                                     |         |            |
| FI分类号          | H05B33/10 H05B33/04 H05B33/14.A G09F9/30.365.Z G09F9/30.309 G09F9/30.365 H01L27/32                                                                                   |         |            |
| F-TERM分类号      | 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/CC45 3K107/EE42 3K107/EE46 3K107/EE53 3K107/EE55 3K107/FF17 3K107/GG28 3K107/GG37 5C094/AA38 5C094/BA27 5C094/DA07 5C094/GB10 |         |            |
| 代理人(译)         | 廣瀬 一<br>宮坂 彻                                                                                                                                                         |         |            |
| 外部链接           | <a href="#">Espacenet</a>                                                                                                                                            |         |            |

#### 摘要(译)

摘要：要解决的问题：提供一种在不损害EL元件的光学特性的情况下具有优异防潮性能的有机EL显示器及其制造方法。解决方案：在通过将密封基板10粘附到包括设置在基板1上的图案形状的第一电极4的有机EL元件基板而形成的有机EL显示器的制造方法中，覆盖第一电极的端部的阻挡板5如图4所示，有机发光介质层6设置在位于第一电极4上并由阻挡板5分隔的区域中，有机发光介质层6与第一电极4相对，第二电极7与第二电极之间放置有机发光介质层6如图7所示，在密封基板10的一个表面上设置至少无机填料12和密封剂11，并且在惰性气氛中将有机EL基板粘附到密封基板10上以保持无机填料12和有机EL基板和密封基板10之间的密封剂11。

