

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A) (11)特許出願公開番号

特開2002 - 158089

(P2002 - 158089A)

(43)公開日 平成14年5月31日(2002.5.31)

(51)Int.Cl.⁷

H 0 5 B 33/10

33/14

識別記号

F I

H 0 5 B 33/10

33/14

テ-マ-コ-ト* (参考)

3 K 0 0 7

A

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 数)

(21)出願番号 特願2000 - 354053(P2000 - 354053)

(22)出願日 平成12年11月21日(2000.11.21)

(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

(72)発明者 井ノ口 大輔

東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内

(72)発明者 関根 徳政

東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内

(72)発明者 甲斐 輝彦

東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内

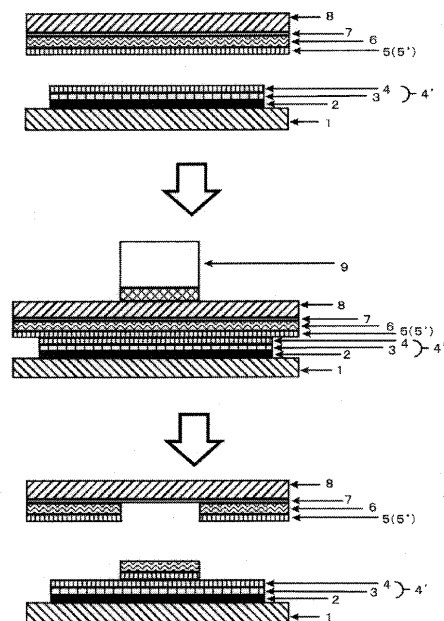
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス表示素子及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】容易にパターンニングすることができ、接合面の接着性を改善すると同時に、生産性の良い有機 E L 表示素子の製造方法を提供する。

【解決手段】基材 1 上に、第一電極層 2 と第一有機 E L 層を順次形成し、一方で支持体 8 上に、第二電極層 6 と第二有機 E L 層を順次形成する。次に、基材 1 と支持体 8 を、それぞれの上にすでに形成した第一の接合層と第二の接合層が対向するように配置し、支持体の所定箇所を、サーマルヘッド 9 など熱圧押し、支持体 8 上に形成した第二電極層 6、第二有機 E L 層を、基材上に形成した第一電極層 2、第一有機 E L 層上に転写パターンニングする。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基材上に、第一電極層と有機エレクトロルミネッセンス層と第二電極層を有する有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法において、前記基材上に前記第一電極層と前記有機エレクトロルミネッセンス層のうち第一の接合層までからなる第一有機エレクトロルミネッセンス層を順次積層形成する工程、剥離性を有する支持体上に前記第二電極層と前記有機エレクトロルミネッセンス層のうち前記第二電極層に隣接する層から第二の接合層までからなる第二有機エレクトロルミネッセンス層を順次積層形成する工程、前記第一の接合層と前記第二の接合層とを対向密着させて前記支持体の所定箇所を加熱押圧することにより前記第二電極層と前記第二有機エレクトロルミネッセンス層の所定箇所を前記第一電極層および前記第一有機エレクトロルミネッセンス層を有する基材上に転写する工程、を含むことを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法。

【請求項 2】 前記第一の接合層と前記第二の接合層が、同一材料からなることを特徴とした請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法。

【請求項 3】 前記有機エレクトロルミネッセンス層は、塗布法により形成されることを特徴とした請求項 1 ~ 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法。

【請求項 4】 前記第一電極層が陽極層、前記第二電極層が陰極層であることを特徴とした請求項 1 ~ 3 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法。

【請求項 5】 請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の製造方法により製造することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス表示素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 発光層が有機化合物から構成される有機エレクトロルミネッセンス表示素子（以下、有機 EL 表示素子）は、低電圧駆動の大面积表示素子を実現するものとして注目されている。Tangらは素子の高効率化のため、キャリア輸送性の異なる有機化合物を積層し、ホールと電子がそれぞれ陽極層、陰極層よりバランスよく注入される構造とし、しかも有機エレクトロルミネッセンス層（以下有機 EL 層）の膜厚を 2000 以下とすることで、10V 以下の印加電圧で 1000 cd/m² と高輝度、高効率を得ることに成功した。（Applied Physics Letters, 51, 913 (1987).）

【0003】 一般的な素子構造はガラスなどの透光性絶縁基板上に形成したITO（酸化インジウムスズ）など

の陽極層となる透明電極上に有機発光層を真空蒸着法や溶液からの塗布により形成し、その上部に陰極層を真空蒸着法等で形成する。陽極層あるいは陰極層、あるいはその両方をパターンニングすることにより、所定の発光パターンを得ることが可能である。

【0004】 陽極層のパターンニングの一般的な方法は、フォトリソグラフィ法及びウェットエッチング法や、ドライエッチング法などがある。これらのパターンニング法は、特に問題はない。しかし、陰極層のパターンニングの一般的な方法に、メタルマスクを併用した真空蒸着法があげられる。すなわち、陽極層をパターンニングした基板に、正孔輸送層と有機発光層と同じパターンに形成し、さらに、陰極層を別のパターンに形成する。

【0005】 しかし、前述した方法を用いてパターンニングするには、真空中においてメタルマスクを用いる必要があった。すなわち、通常の真空蒸着法においては、有機発光層や正孔輸送層、電子輸送層、陰極層を形成する際に、メタルマスクを用いる必要があった。このため、従来の方法においては、一つの層を所定のパターンに形成する度に、メタルマスクの位置合わせ基板の移動を高精度に行う必要があり、生産性が悪いという問題がある。

【0006】 この問題を解決する方法として、特開 2000 - 150150 号公報等に記載されているように、支持体の表部に形成された、陰極層、電子輸送層、有機発光層、正孔輸送層を、陽極層および層間絶縁膜を有する基板の上に転写する技術が開示されている。

【0007】 これらは支持体の表部に形成された、陰極層、電子輸送層、有機発光層、正孔輸送層を、陽極層および層間絶縁膜を有する基板の上に転写することにより形成される。しかし転写の際、接合面が有機層と無機層の間であり、異なる物性を持つ層間であるため、熱膨張率やガラス転移温度等の特性が異なり、その結果接合面の接着性が悪いという問題がある。このため、電圧を印加すると接合面が剥離したり、発光不良が生じるという問題がある。

【発明が解決しようとしている課題】 本発明は、これらの問題点を解決するためになされたものであり、容易にパターンニングすることができ、接合面の接着性を改善すると同時に、生産性の良い有機 EL 表示素子の製造方法を提供する。

【0008】

【課題を解決するための手段】 請求項 1 の発明は、基材上に、第一電極層と有機エレクトロルミネッセンス層と第二電極層を有する有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法において、前記基材上に前記第一電極層と前記有機エレクトロルミネッセンス層のうち第一の接合層までからなる第一有機エレクトロルミネッセンス層を順次積層形成する工程、支持体上に剥離層と前記第二

電極層と前記有機エレクトロルミネッセンス層のうち前記第二電極層に隣接する層から第二の接合層までからなる第二有機エレクトロルミネッセンス層を順次積層形成する工程、前記第一の接合層と前記第二の接合層とを対向密着させて前記支持体の所定箇所を加熱押圧することにより前記第二電極層と前記第二有機エレクトロルミネッセンス層の所定箇所を前記第一電極層および前記第一有機エレクトロルミネッセンス層を有する基材上に転写する工程、とからなることを特徴とした有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法である。

【0009】また、請求項2の発明は、前記第一の接合層と前記第二の接合層が、同一材料からなることを特徴とした請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法である。

【0010】また、請求項3の発明は、前記有機エレクトロルミネッセンス層は、塗布法により形成されることを特徴とした請求項1～2記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法である。

【0011】また、請求項4の発明は、前記第一電極層が陽極層、前記第二電極層が陰極層であることを特徴とした請求項1～3記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子の製造方法である。

【0012】また、請求項5の発明は、請求項1～4のいずれかに記載の製造方法により製造することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示素子である。

【0013】

【発明実施の形態】以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。

【0014】本発明における基材としては、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、ポリアミド、シクロオレフィンポリマー、ポリエーテルサルホン、エポキシ樹脂やポリプロピレン、ポリカーボネートなどのプラスチック製のプレートやフィルム、またはガラス基板、石英基板等が使用できる。

【0015】本発明における陽極層の材料としては、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等の透明電極材料が使用できる。

【0016】なお、抵抗を下げるために陽極層には銅、クロム、アルミニウム、チタン等の金属もしくはこれらの積層物を補助電極として部分的に併設させることができる。

【0017】本発明における有機エレクトロルミネッセンス層は、蛍光物質を含む単層構造、あるいは多層構造で形成することができる。多層構造で形成する場合の有機エレクトロルミネッセンス層の構成例は、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／有機発光層／電子輸送層からなる3層構成等がある。さらにより多層で形成することも可能である。

【0018】正孔輸送層材料の例としては、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輸送層や、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化合物を用いることができる。

【0019】有機発光材料の例としては、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-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-ジヘブチルオキシ-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、ボ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、ナフタリイミド系蛍光体、N,N'-ジアリール置換ピロロピロール系蛍光体等が挙げられ、これらを単独、またはポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリビニルカルバゾールなどの高分子中に溶解させたものや、ポリアリールビニレン系やポリフルオレン系等の高分子蛍光体を用いることができる。

【0020】電子輸送材料の例としては、2-（4-ビフィニルイル）-5-（4-t-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール、及び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が挙げられる。

【0021】陰極層の材料としては電子注入効率の高い物質を用いる。具体的にはBa、Ca、Mg、Al、Yb等の金属単体を用いたり、有機EL層と接する界面に

Liや酸化Li、LiF等の化合物を1nm程度挟んで、安定性・導電性の高いAlやCuを積層して用いる。または電子注入効率と安定性を両立させるため、低仕事関数である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が用いられる。具体的にはMgAg、AlLi、CuLi等の合金が使用できる。

【0022】本発明における支持体としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、シクロオレフィンポリマー、ポリアミド、ポリエーテルサルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネートなどのプラスチックフィルムなどを用いることができる。

【0023】本発明における有機EL表示素子の製造方法は、まず基材上に材料に応じて、抵抗加熱法、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、スパッタリング法等により陽極層を形成する。その後、必要に応じてフォトリソグラフィ法及びウェットエッチング法や、ドライエッチング法などの既存の手段で陽極層のパターンニングを行ったり、UV処理、プラズマ処理などにより表面の活性化を行ってもよい。また、フォトリソグラフィ法及びウェットエッチング法や、ドライエッチング法などの既存の手段の代わりにニトロセルロース、ポリアミド、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、などを絶縁層として印刷し、パターンニングを行ってもよい。

【0024】次に、第一有機EL層を形成する。基材がガラス等のプレートの場合は、スピンコート、ロールコート、スプレーコート、スロットコート、フレキソ、オフセット、凹版オフセット等の塗布方法を用いることができる。基材として巻き取りフィルムを用いる場合には、フレキソ、グラビア、グラビアオフセット、マイクログラビア、ダイコート、ロールコートなどの各種塗布方法を用いることができる。第一有機EL層の膜厚は、素子構造によるが0.001から5μm、好ましくは0.01から0.15μmが好適である。

【0025】一方で、支持体上に陰極層を、材料に応じて、真空蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法などを用いて形成する。陰極層の厚さは、0.01から1μm程度、好ましくは0.15から0.3μmが好適である。なお、陰極層を形成する前に、弱シリコン系剥離材からなる剥離層を形成することができる。

【0026】次に、第二有機EL層を形成する。第二有機EL層の形成方法は、フレキソ、グラビア、グラビアオフセット、マイクログラビア、ダイコート、ロールコートなどの各種塗布方法を用いることができる。第二有機EL層の膜厚は、素子構造によるが0.1から5μm、好ましくは0.3から0.5μmが好適である。

【0027】また、有機EL層を2層以上の複数層とす

る場合には、各層を構成する材料の溶解性を鑑み、例えば、水溶性と油溶性の樹脂を選択するなどの溶解性の差を利用したり、コーティングから乾燥までの時間を短くして、実質的に下層に影響を与えないように塗布条件を選定しても良い。

【0028】次に、基材と支持体を、それぞれの上すでに形成した第一の接合層と第二の接合層が対向密着するように配置する。次に、支持体の所定箇所を、サーマルヘッドなどで熱圧押し、支持体上に形成した陰極層、第二有機EL層を、基材上に形成した陽極層、第一有機EL層上に転写する。ここで、陰極層、第二有機EL層は、サーマルヘッドにより熱圧押された部分のみ転写される。

【0029】ここで第一の接合層と第二の接合層は、それぞれ第一有機EL層、第二有機EL層とからなり、第一の接合層と第二の接合層が接合することにより有機EL表示素子が形成される。また第一の接合層と第二の接合層は、異なる材料で形成しても、同一材料で形成してもよい。第一の接合層と第二の接合層を異なる材料で形成しても有機層同士で熱膨張率やガラス転移温度等の特性が類似しているため効果は得られるが、同一材料で形成すると、前記熱膨張率やガラス転移温度等の特性を合わせることができ、親和性も良好である。このため、第一有機EL層と第二有機EL層の接着性を向上することができることから、第一の接合層と第二の接合層は同一材料であることが最も好ましい。

【0030】最後に、有機発光層及び電子注入電極の大気中の水分、酸素による劣化を抑制するため、有機EL表示素子を封止することができる。具体的には、ガラスや石英または、金属等からなる封止ケース等を、Ar、He、N₂等の不活性ガスからなる封止ガス及びゼオライト、活性アルミ、シリカゲル、水素化カルシウム、水素化アルミニウムリチウム等の乾燥剤を封入した後に、透光性絶縁基板上に密着固定して外部と遮断することができる。また、三フッ化塩化エチレン等からなる防湿フィルムやナイロン6等からなる吸湿フィルムや金属箔等をラミネート法等を用いて有機EL表示素子に貼り合わせ、封止することもできる。以上の工程により、有機EL表示素子は完成する。

【0031】以下に詳細な実施例を示すが、これに限定されるものではない。

【実施例】[実施例1]本発明の実施例を図1に従って説明する。まず、ポリエチレンテレフタレートフィルムからなる基材1上にスパッタリング法で陽極層2としてITO膜を形成した。

【0032】次に、正孔輸送層3としてポリ(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をマイクログラビアにて膜厚20nmで塗布した後、第一有機発光層4としてポリ[2-メトキシ-5-(2'-エチル-ヘキシロキシ)-1,4-フェ

ニレン ビニレン] (以下、MEH-PPVという。) をマイクログラビアにて膜厚 45 nm で塗布した。ここで、上記第一有機発光層 4 が、第一の接合層になる。

【0033】一方で、ポリエチレンテレフタレートフィルムからなる支持体 8 上に、剥離層 7 として信越化学社製 X62-980 に信越化学社製キャタリスト PS80 を 5% 添加した混合溶液を、マイクログラビアにて膜厚 0.1 μm で形成し、その後陰極層 6 として Ag、Ca を順に 200 nm、6 nm の膜厚で真空蒸着した。

【0034】次に、第二有機 EL 層となる第二有機発光層 5 として、第一有機発光層 4 と同一材料である MEH-PPV をマイクログラビアにて膜厚 45 nm で塗布した。ここで、第二有機発光層 5 が第二の接合層になる。

【0035】次に、第一の接合層と第二の接合層を対向させて配置し、支持体 8 の所定箇所を、サーマルヘッド 9 で熱圧押し、基材 1 に形成された陽極層 2、正孔輸送層 3、第一発光層 4 上に転写した。ここで、陰極層 6、第二発光層 5 は、サーマルヘッドにより熱圧押しされた部分のみ転写される。最後に、ポリエチレンテレフタレート、ナイロン、Al、未延伸ポリプロピレン、AT152050 を積層したフィルムを、熱圧着し有機 EL 表示素子を封止した。

【0036】この製造方法で得られた有機 EL 表示素子に、5 V の電圧を印加したところ、所定箇所に 70 cd/m² の均一な発光が観察された。

【0037】

【発明の効果】本発明によれば、基材上に第一電極層、第一有機 EL 層を形成し、剥離性を有する支持体上に第二電極層、第二有機 EL 層を形成した後、同一材料である第一の接合層と第二の接合層間でサーマルヘッドなどにより所定箇所、熱圧押しする工程により、容易にパターンニングすることができ、接合面の接着性を改善することができると同時に、生産性の良い、有機 EL 表示素子の製造方法を提供することができる。

【0038】

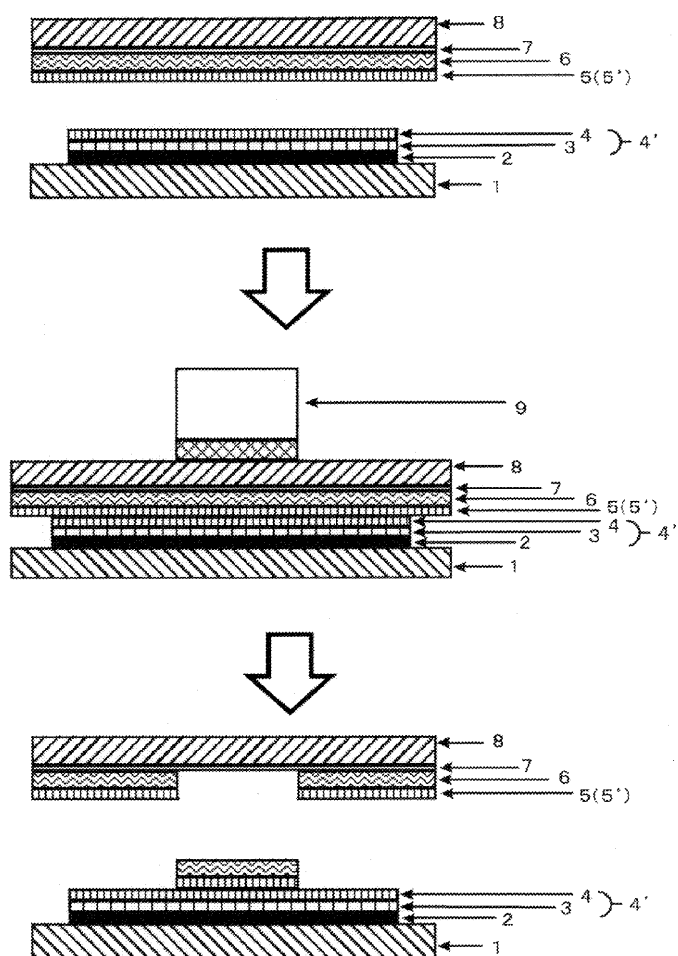
【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の有機 EL 表示素子の製造方法の一例を説明する概略図である。

【符号の説明】

- 1 基材
- 2 第一電極層 (陽極層)
- 3 正孔輸送層
- 4 第一有機発光層 (第一の接合層)
- 4' 第一有機エレクトロルミネッセンス層
- 5 第二有機発光層 (第二の接合層)
- 5' 第二有機エレクトロルミネッセンス層
- 6 第二電極層 (陰極層)
- 7 剥離層
- 8 支持体
- 9 サーマルヘッド

【図1】



专利名称(译)	有机电致发光显示装置及其制造方法		
公开(公告)号	JP2002158089A	公开(公告)日	2002-05-31
申请号	JP2000354053	申请日	2000-11-21
[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	井ノ口大輔 関根徳政 甲斐輝彦		
发明人	井ノ口 大輔 関根 徳政 甲斐 輝彦		
IPC分类号	H05B33/10 H01L51/50 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/14.A		
F-TERM分类号	3K007/AB18 3K007/CA06 3K007/CB01 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EA01 3K007/EB00 3K007/FA01 3K007/FA02 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC25 3K107/CC35 3K107/CC45 3K107/GG06 3K107/GG09 3K107/GG28		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供一种高生产率的有机EL显示元件的制造方法，其中图案化容易并且接合面的粘合性得到改善。解决方案：在基板1上依次形成第一电极层2和第一有机EL层，另一方面，在支撑体8上依次形成第二电极层6和第二EL层。衬底1和支撑体8排列成使得已经形成在它们上的第一接合层和第二接合层彼此面对，并且形成在支撑体8上的第二电极层6和第二有机EL层通过以下方式转录：在第一电极层2和形成在基板上的第一有机EL层上形成图案，因为支撑体的给定位置用热头9等热压。

