

(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2003 - 178868

(P2003 - 178868A)

(43)公開日 平成15年6月27日(2003.6.27)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マコード* (参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
33/14		33/14	B

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 12数)

(21)出願番号	特願2001 - 334858(P2001 - 334858)	(71)出願人	000005201 富士写真フイルム株式会社 神奈川県南足柄市中沼210番地
(22)出願日	平成13年10月31日(2001.10.31)	(72)発明者	立石 朋美 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真フ イルム株式会社内
(31)優先権主張番号	特願2001 - 305429(P2001 - 305429)	(74)代理人	100080012 弁理士 高石 橘馬
(32)優先日	平成13年10月1日(2001.10.1)	F ターム (参考)	3K007 AB18 DA04 DB03 EA01 FA01
(33)優先権主張国	日本(JP)		

(54)【発明の名称】 転写材料及び有機薄膜素子の製造方法

(57)【要約】

【課題】 発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた剥離転写法による有機EL素子の転写材料、及びそれを用いた有機薄膜素子の製造方法を提供する。

【解決手段】 本発明の転写材料は、仮支持体上に少なくとも1層の有機薄膜層を形成してなる転写材料において、有機薄膜層側が基板の被成膜面に対面するように転写材料を基板に重ねて加熱及び／又は加圧し、仮支持体を引き剥がすことにより有機薄膜層を基板の被成膜面に転写して有機薄膜素子を製造する剥離転写法に使用する転写材料であって、仮支持体表面の表面粗さが最大高さRmax (JIS B 0601-1982により規定される) で、有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 仮支持体上に少なくとも1層の有機薄膜層を形成してなる転写材料において、前記有機薄膜層側が基板の被成膜面に対面するように前記転写材料を前記基板に重ねて加熱及び／又は加圧し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板の被成膜面に転写して有機薄膜素子を製造する剥離転写法に使用する転写材料であって、前記仮支持体表面の表面粗さが最大高さ R_{max} （JIS B 0601-1982により規定される）で、前記有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする転写材料。

【請求項2】 請求項1に記載の転写材料において、前記有機薄膜層が少なくとも発光性化合物及び／又はキャリア輸送性化合物を含有することを特徴とする転写材料。

【請求項3】 請求項1又は2に記載の転写材料において、連続ウェブ状であることを特徴とする転写材料。

【請求項4】 仮支持体上に少なくとも1層の有機薄膜層を有する転写材料を使用し、前記有機薄膜層側が基板の被成膜面に対面するように前記転写材料を前記基板に重ねて加熱及び／又は加圧し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板の被成膜面に転写する有機薄膜素子の製造方法であって、前記仮支持体表面の表面粗さが最大高さ R_{max} （JIS B 0601-1982により規定される）で、前記有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項5】 請求項4に記載の有機薄膜素子の製造方法において、少なくとも発光性化合物及び／又はキャリア輸送性化合物を含有する有機薄膜層を使用することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項6】 請求項4又は5に記載の有機薄膜素子の製造方法において、基板側から順にホール輸送性有機薄膜層、発光性有機薄膜層及び電子輸送性有機薄膜層を転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項7】 請求項4～6のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、基板支持体とその上に形成された透明導電膜からなる基板を使用することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項8】 請求項4～7のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記転写材料及び／又は前記基板が連続ウェブであることを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は有機薄膜素子の転写材料、及びそれを用いた有機薄膜素子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】有機EL

素子等の有機発光素子は容易に面状発光素子に適用し得るため、新たな光デバイスとして注目されている。具体的には、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、多くの開発が行われている。一般に有機発光素子は、発光層及び前記発光層を挟んだ一対の対向電極（背面電極及び透明電極）から構成されている。前記有機発光素子において、一対の対向電極間に電界が印加されると、有機発光素子内に背面電極から電子が注入されるとともに、透明電極から正孔が注入される。電子と正孔とが前記発光層中で再結合し、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が光として放出され、発光する。

【0003】有機EL素子の有機薄膜形成の多くは蒸着法により製造されている。特開平9-167684号及び特開2000-195665号は、マイカ又はフィルムの仮基板上に予め有機層を均一に蒸着法により形成し、次いで基板と有機層を近接させ、加熱蒸着する方法を提案している。しかしながらこれらの方法には、蒸着法を用いるために製造効率が悪いという問題がある。また有機薄膜用に低分子有機化合物しか使用できないため、フレキシブルなディスプレイ用途等に用いると耐屈曲性や膜強度等の耐久性が不十分であるという問題があり、特に大面積化した場合に問題になる。

【0004】また緑色の発光を示すポリパラフェニレンビニレン（「ネイチャー」、347巻、539頁、1990年）、赤橙色の発光を示すポリ3-アルキルチオフェン（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1938頁、1991年）、青色発光素子としてポリアルキルフルオレン（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1941頁、1991年）等の高分子の発光薄膜や、低分子化合物をバインダー樹脂に分散させた発光薄膜を用いた高分子型素子も知られている。これらの高分子型素子は大面積化にも有利であり、フレキシブルなディスプレイ用途として期待されているが、有機発光薄膜の形成に蒸着法を適応できない。そのため、通常湿式法により薄膜形成が基板上に直接行われている。

【0005】しかし湿式法では、溶液の表面張力により有機薄膜の膜厚均一性が不十分になることや、有機薄膜層を積層する場合に各有機薄膜層が界面で溶解してしまうという問題がある。このため、この方法により得られた有機薄膜素子には発光効率や素子耐久性に劣るという問題があった。

【0006】W000/41893号は、有機薄膜と光熱変換層を有するドナーシートを用いて、レーザにより熱転写する方法を提案している。ところがW000/41893号のような熱転写の場合、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みの問題がある。有機薄膜層の界面の状態により、有機EL素子の発光効率や耐久性、更に発光面状の均一性が異なり、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みがある

と、素子機能は悪化する。

【0007】またプリント技術分野で利用されている熱ヘッドやレーザを用いたパターン状の熱書き込みの場合、熱拡散性によりパターンの周辺に温度分布が生じて、有機薄膜パターンの輪郭がきれいにドナー側から切断されない。このため発光量のばらつきが生じたり、また電氣的不良や薄膜破片による欠陥が起こり、更に耐久性も悪くなるという問題がある。また基板と熱ヘッドやレーザとの位置合わせの不良により、歩留まり低下の問題もある。

【0008】従って本発明の目的は、有機薄膜層を簡便な製造装置で安価に基板上に形成できるとともに、均一性及び良好な接合界面を有する有機薄膜素子を製造する方法を提供することであり、特に仮支持体上に均一な有機薄膜層を形成することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を効率良く製造する方法、それに用いる転写材料を提供することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者は、有機薄膜素子を構成する少なくとも1層の有機薄膜層を仮支持体上に設け、その有機薄膜層を基板に転写することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を低コストで製造できることを発見し、本発明に想到した。

【0010】すなわち、本発明の転写材料は、仮支持体上に少なくとも1層の有機薄膜層を形成してなる転写材料において、有機薄膜層側が基板の被成膜面に対面するように転写材料を基板に重ねて加熱及び/又は加圧し、仮支持体を引き剥がすことにより有機薄膜層を基板の被成膜面に転写して有機薄膜素子を製造する剥離転写法に使用する転写材料であって、仮支持体表面の表面粗さが最大高さ R_{max} （JIS B0601-1982により規定される）で、有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする。

【0011】本発明の有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に少なくとも1層の有機薄膜層を有する転写材料を使用し、有機薄膜層側が基板の被成膜面に対面するように転写材料を基板に重ねて加熱及び/又は加圧し、仮支持体を引き剥がすことにより有機薄膜層を基板の被成膜面に転写する有機薄膜素子の製造方法であって、仮支持体表面の表面粗さが最大高さ R_{max} （JIS B0601-1982により規定される）で、有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする。

【0012】少なくとも発光性化合物及び/又はキャリア輸送性化合物を含有する有機薄膜層を使用するのが好ましい。また基板側から順にホール輸送性有機薄膜層、発光性有機薄膜層及び電子輸送性有機薄膜層を転写する

透明導電膜からなるのが好ましい。

【0013】転写材料及び/又は前記基板は連続ウエブであるのが好ましい。

【0014】

【発明の実施の形態】まず本発明の有機薄膜層転写材料を説明し、次いで有機薄膜素子の製造方法を説明し、最後に有機薄膜素子を説明する。

【0015】[1] 転写材料

(1) 構成

10 有機薄膜層は仮支持体上に湿式法で作製する。有機薄膜層を設けた転写材料は、個々独立した転写材料として作製してもよいし、図1に示すように面順次に複数の有機薄膜層を設けてもよい。すなわち、進行方向順に112a, 112b, 112cと複数の有機薄膜層を1枚の仮支持体に設けてもよい。この場合、転写材料の交換の必要なしに、複数の有機薄膜層を連続的に形成することができる。

【0016】また仮支持体上に2層以上の有機薄膜層を予め積層した転写材料を使用すれば、1回の転写工程で基板の被成膜面に多層膜を積層することができる。仮支持体上に予め積層する場合、積層される各有機薄膜層の界面が均一でないと正孔や電子の移動にムラが生じてしまうので、界面を均一にするために溶剤を慎重に選ぶ必要があり、またその溶剤に可溶な有機薄膜層用の有機化合物を選択する必要がある。

【0017】(2) 仮支持体

本発明の転写材料に使用する仮支持体の表面は、表面粗さでJIS B0601-1982で規定される最大高さ R_{max} が、転写材料の有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であり、0以上25以下であるのが好ましく、0.0001以上10以下であるのが特に好ましい。50を超えると有機薄膜層の膜質が低下したり（製膜性、膜強度が低下する等）、発光が不均一になるので好ましくない。

【0018】JIS B0601-1982で規定される最大高さ R_{max} とは、図2に示すように断面曲線から基準長さの部分抜き取り、その抜き取り部分の平均線に平行な2直線（山頂線と谷底線）で抜き取り部分を挟んだとき、この2直線の間隔を縦倍率の方向（Z軸方向）に測定した値をいい、本発明の転写材料では単位をnmで表示する。

【0019】最大高さ R_{max} を測定する方法としては、原子間力顕微鏡法、共焦点顕微鏡法、触針法、光学顕微干涉法、多重干渉法、光切断法等が挙げられるが、原子間力顕微鏡法及び共焦点顕微鏡法によるのが好ましい。

【0020】仮支持体は、化学的及び熱的に安定であって、可撓性を有する材料により構成されるべきであり、具体的にはフッ素樹脂〔例えば4フッ化エチレン樹脂（PTFE）、3フッ化塩化エチレン樹脂（PCTFE）〕、ポリエステル（例えば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（PEN））、ポリアリレート、ポリカーボネート、ポリオレフィン（例えばポリエチレン、ポリプロピレン）、ポリエーテルスルホン（PES）

等の薄いシート、又はこれらの積層体が好ましい。仮支持体の厚さは1 μm ~300 μm が適当であり、更に3 μm ~200 μm が好ましく、特に5 μm ~150 μm であるのが好ましい。

【0021】また、仮支持体の構成は単層体及び積層体のいずれでもよい。積層体の場合は、基体の有機薄膜層を設ける側に少なくとも1層の平滑層を形成することにより仮支持体を作製することができる。平滑層は、上述したJIS B 0601-1982で規定される最大高さ R_{max} を満たす層であればよく、構成する素材は特に限定されないが、上記仮支持体に用いる材料が好ましい。

【0022】(3) 仮支持体への有機薄膜層の形成
バインダーとして高分子化合物を含む有機薄膜層は、湿式法により仮支持体に形成するのが好ましい。これには、有機薄膜層用材料を有機溶剤に所望の濃度に溶解し、得られた溶液を仮支持体に塗布する。塗布法としては、有機薄膜層の乾燥膜厚が200 nm以下で均一な膜厚分布が得られれば特に制限はなく、スピンコート法、グラビアコート法、ディップコート法、キャスト法、ダイコート法、ロールコート法、バーコート法、エクストルー

ジェンコート法、インクジェット塗布法等が挙げられる。中でも、ロールツーロールによる生産性の高いエクストルージェンコート法が好ましい。

【0023】(4) 有機薄膜層
有機薄膜層は有機薄膜素子を構成する層であり、発光性有機薄膜層、電子輸送性有機薄膜層、ホール輸送性有機薄膜層、電子注入層、ホール注入層等が挙げられる。本発明の転写材料は、これらの層のいずれか1種又は複数の層を含むことができる。また発色性を向上するための種々の層を挙げることができる。各層に用いる化合物の具体例については、例えば「月刊ディスプレイ」1998年10月号別冊の「有機ELディスプレイ」(テクノタイムズ社)等に記載されている。

【0024】(a) 発光性有機薄膜層
発光性有機薄膜層は少なくとも一種の発光性化合物を含む。発光性化合物は特に限定的ではなく、蛍光発光性化合物であっても燐光発光性化合物であっても良い。また蛍光発光性化合物及び燐光発光性化合物を同時に用いても良い。本発明においては、発光輝度及び発光効率の点から燐光発光性化合物を用いるのが好ましい。

【0025】蛍光発光性化合物としては、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、スチリルアミン誘導体、芳

香族ジメチリデン化合物、金属錯体(8-キノリノール誘導体の金属錯体、希土類錯体等)、高分子発光性化合物(ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等)等が使用できる。これらは単独で用いても2種以上を混合して用いてもよい。

【0026】燐光発光性化合物は、好ましくは三重項励起子から発光することができる化合物であり、オルトメタル化錯体及びポルフィリン錯体が好ましい。ポルフィリン錯体の中ではポルフィリン白金錯体が好ましい。燐光発光性化合物は単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

【0027】本発明でいうオルトメタル化錯体とは、山本明夫著「有機金属化学 基礎と応用」, 150頁及び232頁, 裳華房社(1982年)、H. Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」, 71~77頁及び135~146頁, Springer-Verlag社(1987年)等に記載されている化合物群の総称である。オルトメタル化錯体を形成する配位子は特に限定されないが、2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体又は2-フェニルキノリン誘導体であるのが好ましい。これら誘導体は置換基を有してもよい。またこれらのオルトメタル化錯体形成に必須の配位子以外に他の配位子を有していてもよい。オルトメタル化錯体を形成する中心金属としては、遷移金属であればいずれも使用可能であり、本発明ではロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。このようなオルトメタル化錯体を含む有機化合物層は、発光輝度及び発光効率に優れている。オルトメタル化錯体については、特願2000-254171号に具体例が記載されている。

【0028】本発明で用いるオルトメタル化錯体は、Inorg. Chem., 30, 1685, 1991、Inorg. Chem., 27, 3464, 1988、Inorg. Chem., 33, 545, 1994、Inorg. Chim. Acta, 181, 245, 1991、J. Organomet. Chem., 335, 293, 1987、J. Am. Chem. Soc., 107, 1431, 1985等に記載の公知の方法により合成することができる。

【0029】発光性有機薄膜層中の発光性化合物の含有量は特に制限されないが、例えば0.1~70質量%であるのが好ましく、1~20質量%であるのがより好ましい。発光性化合物の含有量が0.1質量%未満であるか又は70質量%を超えると、その効果が十分に発揮されないことがある。

【0030】発光性有機薄膜層は必要に応じてホスト化合物、ホール輸送材料、電子輸送材料、電気的に不活性なポリマーバインダー等を含有してもよい。なおこれらの材料の機能は1つの化合物により同時に達成できることがある。例えば、カルバゾール誘導体はホスト化合物として機能するのみならず、ホール輸送材料としても機

能する。

【0031】ホスト化合物とは、その励起状態から発光性化合物へエネルギー移動が起こり、その結果その発光性化合物を発光させる化合物である。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、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、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、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化合物、ポルフィリン化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキsid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、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等を配位子とする金属錯体、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、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、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。ホスト化合物は1種単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

【0032】ホール輸送材料は、陽極からホールを注入する機能、ホールを輸送する機能、及び陰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特に限定されず、低分子材料であっても高分子材料であってもよい。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、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、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、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化合物、ポルフィリン化合物、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、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、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。これらは単独で使用しても2種以上を混合して使用してもよい。

【0033】電子輸送材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、及び陽極から注入されたホールを障壁する機能のいずれかを有しているものであれ

ば特に限定されない。その具体例としては、例えば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、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキsid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等の金属錯体、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等を配位子とする金属錯体、アニリン共重合体、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、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。

【0034】ポリマーバインダーとしては、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sid、ポリブタジエン、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、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリビニルブチラル、ポリビニルアセタール等が使用可能である。ポリマーバインダーを含有する発光性有機薄膜層は、湿式製膜法により容易に大面積に塗布形成することができる。

【0035】発光性有機薄膜層の厚さは10~200 nmとするのが好ましく、20~80 nmとするのがより好ましい。厚さが200 nmを超えると駆動電圧が上昇することがある。一方10 nm未満であると有機薄膜素子が短絡することがある。

【0036】(b) ホール輸送性有機薄膜層
有機薄膜素子は、必要に応じて上記ホール輸送材料からなるホール輸送性有機薄膜層を有してよい。ホール輸送性有機薄膜層は上記ポリマーバインダーを含有してもよい。ホール輸送性有機薄膜層の厚さは10~200 nmとするのが好ましく、20~80 nmとするのがより好ましい。厚さが200 nmを超えると駆動電圧が上昇することがあり、10 nm未満であると有機薄膜素子が短絡することがある。

【0037】(c) 電子輸送性有機薄膜層
有機薄膜素子は、必要に応じて上記電子輸送材料からなる電子輸送性有機薄膜層を有してもよい。電子輸送性有機薄膜層は上記ポリマーバインダーを含有してもよい。電子輸送性有機薄膜層の厚さは10~200 nmとするのが好ましく、20~80nmとするのがより好ましい。厚さが200 nmを超えると駆動電圧が上昇することがあり、10 nm未満であると有機薄膜素子が短絡することがある。

【0038】[2] 有機薄膜素子の製造方法
本発明の方法は、仮支持体上に少なくとも1層の有機薄

膜層を形成した転写材料を用いて、剥離転写法により基板上に有機薄膜層を転写する方法であって、仮支持体表面の表面粗さが最大高さ R_{max} (JIS B 0601-1982により規定される)で、有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下であることを特徴とする。剥離転写法は、転写材料を加熱及び/または加圧することにより有機薄膜層を軟化させて、基板の被成膜面に接着させた後、仮支持体を剥離することにより、有機薄膜層だけを被成膜面に残留させる方法(転写方法)である。加熱手段としては、一般に公知の方法を用いることができ、例えばラミネータ、赤外線ヒータ、レーザ、熱ヘッド等を用いることができる。熱ヘッドとしては、例えばファーストラミネータVA-400III(大成ラミネータ(株)製)や、熱転写プリント用の熱ヘッド等を用いることができる。転写用の温度は特に限定的でなく、有機薄膜層の材質や加熱部材によって変更することができるが、一般に40~250 が好ましく、更に50~200 が好ましく、特に60~180 が好ましい。ただし転写用の温度の好ましい範囲は、加熱部材、転写材料及び基板の耐熱性に関係しており、耐熱性が向上すればそれとともなって変化する。

【0039】図3~5を用いて、本発明の有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置の例を示すが、本発明はこれらに限定されることはない。図3において、仮支持体111に有機薄膜層112が設けられた転写材料110は、転写材料巻回用ロール113から供給する。転写装置は加熱(加圧)ロール121及び加圧(加熱)ロール122からなる。加熱(加圧)ロール121と加圧(加熱)ロール122との間に、基板支持体101と透明導電層(陰極又は陽極)102とからなる基板100を配置し、加熱(加圧)ロール121と基板100の透明導電層102との間に、基板100の透明導電層102が転写材料110の有機薄膜層112と接するように、転写材料110を送給する。加熱(加圧)ロール121で加熱又は加圧するか、加熱(加圧)ロール121及び加圧(加熱)ロール122で加圧しながら加熱することにより、有機薄膜層112を基板100の透明導電層102上に転写する。残りの仮支持体111は仮支持体巻回用ロール114で巻き取る。

【0040】図4に示す実施例では、転写材料110を予め加熱する転写材料用プレヒータ123、及び基板用プレヒータ124を設けることにより、送給される転写材料110や環境変化による転写温度の低下による転写不良を防止する。また冷却部材125、126を設けることにより剥離不良を防止する。その他の部分は図3と同じである。

【0041】図5に示す実施例では、加熱(加圧)部材121の前面は後方に傾斜しており、前面下部に丸みを帯びた進入角度調整部127が設けられており、また前面上部の僅かに上流側に回転自在のガイドローラ130が設けられている。進入角度調整部127及びガイドローラ130により、転写材料110はZ字形に進路を変えながら加熱(加圧)部材121と基板100の透明導電層102との間に進

入する。進入角度調整部127で気泡の巻き込みを防止し、かつ転写材料110と透明導電層102との密着性が良好になり、加熱(加圧)部材121の加熱又は加圧による転写材料110の有機薄膜層112の転写性が向上する。良好な気泡の巻き込み防止性を得るためには、進入角度調整部127の進入角度 α は0~90°であるのが好ましい。またガイドローラ130の代わりに丸棒を利用しても良い。

【0042】冷却部材125の後面は前方に傾斜しており、後面下部に丸みを帯びた剥離角度調整部128が設けられており、また後面の途中に回転自在のガイドローラ131が設けられている。剥離角度調整部128及びガイドローラ131により、転写材料110の仮支持体111はZ字形に行路を変えながら進行する。有機薄膜層112との間に大きな剥離角度 β をもたらすので、剥離不良を防止することができる。剥離角度 β としては90~180°が好ましい。またガイドローラ131の代わりに丸棒を利用しても良い。

【0043】本発明は、図3~5に示す転写・剥離工程を繰返し行い、複数の有機薄膜層を基板上に積層してもよい。複数の有機薄膜層は同一の組成であっても異なってもよい。同一組成の場合、転写不良や剥離不良による層の抜けを防止することができるという利点がある。また異なる層を設ける場合、機能を分離して発光効率を向上する設計とすることができ、例えば、本発明の転写法により被成膜面に、透明導電層/発光性有機薄膜層/電子輸送性有機薄膜層/電子注入層/背面電極、透明導電層/ホール注入層/ホール輸送性有機薄膜層/発光性有機薄膜層/電子輸送性有機薄膜層/電子注入層/背面電極を積層することができる。

【0044】基板に転写した有機薄膜層に対して、あるいは先に転写した有機薄膜層に転写した新たな有機薄膜層に対して、必要に応じて再加熱するのが好ましい。再加熱により有機薄膜層は基板又は先に転写した有機薄膜層にいっそう密着する。再加熱時に必要に応じて加圧するのが好ましい。

【0045】先の転写層が次の転写層に逆転写されないように、先の転写工程と次の転写工程の間で、被成膜面に密着力を向上するような表面処理を施してもよい。このような表面処理としては、例えばコロナ放電処理、火炎処理、グロー放電処理、プラズマ処理等の活性化処理が挙げられる。

【0046】[3] 有機薄膜素子

(1) 構成

有機薄膜素子の全体構成は、基板支持体上に透明導電層/発光層/背面電極、透明導電層/発光層/電子輸送層/背面電極、透明導電層/ホール輸送層/発光層/電子輸送層/背面電極、透明導電層/ホール輸送層/発光層/背面電極、透明導電層/発光層/電子輸送層/電子注入層/背面電極、透明導電層/ホール注入層/ホール輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/背面電極等を

この順に積層した構成、これらを逆に積層した構成等であってよい。発光層は蛍光発光性化合物及び/又は燐光発光性化合物を含有し、通常透明導電層から発光が取り出される。各層に用いる化合物の具体例については、例えば「月刊ディスプレイ」1998年10月号別冊の「有機ELディスプレイ」(テクノタイムズ社)等に記載されている。

【0047】(2) 基板

(a) 基板支持体

基板支持体は、ジルコニア安定化イットリウム(YSZ)、ガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステルやポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリクロロトリフルオロエチレン、テフロン(登録商標)、ポリテトラフルオロエチレン-ポリエチレン共重合体等の高分子材料等からなるものであってよい。基板支持体は単一材料で形成しても、2種以上の材料で形成してもよい。中でも、フレキシブルな有機薄膜素子を形成するためには高分子材料が好ましく、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性及び加工性に優れ、且つ低通気性及び低吸湿性であるポリエステル、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホンや、ポリクロロトリフルオロエチレン、テフロン、ポリテトラフルオロエチレン-ポリエチレン共重合体等のフッ素原子を含む高分子材料がより好ましい。

【0048】基板支持体の形状、構造、大きさ等は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。形状は板状とするのが一般的である。構造は単層構造であっても積層構造であってもよい。基板支持体は単一の部材で形成しても、2以上の部材で形成してもよい。また基板支持体は無色透明であっても有色透明であってもよいが、発光層から発せられる光を散乱又は減衰させることがない点で無色透明であるのが好ましい。

【0049】基板支持体の電極側の面、電極と反対側の面又はその両方に透湿防止層(ガスバリア層)を設けてもよい。透湿防止層を構成する材料としては窒化ケイ素、酸化ケイ素等の無機物を用いるのが好ましい。透湿防止層は高周波スパッタリング法等により成膜できる。また基板支持体には必要に応じてハードコート層やアンダーコート層を設けてもよい。

【0050】(3) 電極(陰極又は陽極)

透明導電層も背面電極もどちらでも陰極又は陽極として用いることができ、いずれかは有機薄膜素子の構成によって決まる。

【0051】(a) 透明導電層(透明電極)

透明導電層は有機化合物層にホール(正孔)を供給する陽極としての機能を有するが、陰極として機能させることもできる。以下、透明導電層を陽極とする場合につい

て説明する。

【0052】透明導電層の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。透明導電層を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料を用いる。具体例としては、アンチモンをドーピングした酸化スズ(ATO)、フッ素をドーピングした酸化スズ(FTO)、半導性金属酸化物(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)、酸化亜鉛インジウム(IZO)等)、金属(金、銀、クロム、ニッケル等)、これら金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、無機導電性物質(ヨウ化銅、硫化銅等)、有機導電性材料(ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等)及びこれとITOとの積層物等が挙げられる。

【0053】透明導電層は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD法、プラズマCVD法等の化学的方法等によって基板支持体上に形成することができる。形成方法は透明導電層材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、透明導電層の材料としてITOを用いる場合には、直流又は高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等を用いればよい。また透明導電層の材料として有機導電性材料を用いる場合には、湿式製膜法を用いてよい。

【0054】透明導電層のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザ等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。またマスクを用いた真空蒸着法やスパッタリング法、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0055】透明導電層の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、基板支持体上に形成するのが好ましい。このとき透明導電層は基板支持体の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。

【0056】透明導電層の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10 nm~50 µmであり、好ましくは50 nm~20 µmである。透明導電層の抵抗値は $10^3 \Omega/\square$ 以下とするのが好ましく、 $10^2 \Omega/\square$ 以下とするのがより好ましい。透明導電層は無色透明であっても有色透明であってもよい。透明導電層側から発光を取り出すためには、その透過率は60%以上とするのが好ましく、70%以上とするのがより好ましい。透過率は分光光度計を用いた公知の方法に従って測定することができる。

【0057】また「透明導電膜の新展開」(沢田豊監修、シーエムシー刊、1999年)等に詳細に記載されている電極も本発明に適用できる。特に耐熱性の低いプラスチック基板支持体を用いる場合は、透明導電層材料としてITO又はIZOを使用し、150 °C以下の低温で製膜するの

が好ましい。

【0058】(b) 背面電極

背面電極は有機化合物層に電子を注入する陰極としての機能を有するが、陽極として機能させることもできる。以下、背面電極を陰極とする場合について説明する。

【0059】背面電極の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。背面電極を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4.5 eV以下の材料を用いる。具体例としては、アルカリ金属(Li、Na、K、Cs等)、アルカリ土類金属(Mg、Ca等)、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-銀合金、インジウム、希土類金属(イッテルビウム等)等が挙げられる。これらは単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させるためには2種以上を併用するのが好ましい。これら材料の中で、電子注入性の観点からはアルカリ金属及びアルカリ土類金属が好ましく、保存安定性の観点からはアルミニウムを主体とする材料が好ましい。ここでアルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独のみならず、アルミニウムと0.01~10質量%のアルカリ金属又はアルカリ土類金属との合金又は混合物(リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金等)を指す。背面電極の材料としては、特開平2-15595号、特開平5-121172号等に詳述されているものも使用できる。

【0060】背面電極は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD法、プラズマCVD法等の化学的方法等によって形成することができる。形成方法は背面電極材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば背面電極の材料として2種以上の金属等を用いる場合、その材料を同時又は順次にスパッタして形成できる。また背面電極のパターニングは透明導電層と同様に行なうことができる。

【0061】背面電極の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、有機化合物層上に形成するのが好ましい。このとき背面電極は有機化合物層の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。また背面電極と有機化合物層との間にアルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物等からなる誘電体層を0.1~5 nmの厚さで設置してもよい。誘電体層は真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0062】背面電極の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10 nm~5 μmであり、好ましくは50 nm~1 μmである。背面電極は透明であっても不透明であってもよい。透明背面電極は、上記材料の層を1~10 nmの厚さに薄く製膜し、更にITOやIZO等の透明導電

性材料を積層して形成してもよい。

【0063】(4) パターニング

微細パターン状有機薄膜層の形成には、微細パターン状の開口部を有するマスク(微細マスク)を使用する。マスクの材質は限定的でないが、金属、ガラス、セラミック、耐熱性樹脂等の耐久性があって安価なものが好ましい。またこれらの材料を組み合わせ使用することもできる。また機械的強度及び有機薄膜層の転写精度の観点から、マスクの厚さは2~100 μmであるのが好ましく、5~60 μmがより好ましい。

【0064】転写材料の有機薄膜層が正確にマスクの開口部の形状通りに下地の透明導電層又は他の有機薄膜層に接着するように、マスク開口部は基板側より転写材料側の方が大きくなるようにテーパしているのが好ましい。

【0065】(5) その他の層

有機薄膜素子を構成する層として、発光性能の劣化を防止するために保護層や封止層を設けるのが好ましい。さらに転写材料においては発光性能に影響しなければ、転写性を向上するために仮支持体と有機薄膜層の間に剥離層を設けたり、有機薄膜層と被成膜面の間に接着層を設けてもよい。

【0066】(a) 保護層

有機薄膜素子は、特開平7-85974号、同7-192866号、同8-22891号、同10-275682号、同10-106746号等に記載の保護層を有していてもよい。保護層は有機薄膜素子の最上面に形成する。ここで最上面とは、例えば基板支持体、透明導電層、有機化合物層及び背面電極をこの順に積層する場合には背面電極の外側表面を指し、また例えば基板支持体、背面電極、有機化合物層及び透明導電層をこの順に積層する場合には透明導電層の外側表面を指す。保護層の形状、大きさ、厚さ等は特に限定的でない。保護層をなす材料は、水分や酸素等の有機薄膜素子を劣化させ得るものが素子内に侵入又は透過するのを抑制する機能を有しているものであれば特に限定されず、例えば一酸化ケイ素、二酸化ケイ素、一酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム等が使用できる。

【0067】保護層の形成方法は特に限定はなく、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、プラズマCVD法、レーザCVD法、熱CVD法、コーティング法等が適用できる。

【0068】(b) 封止層

有機薄膜素子には水分や酸素の侵入を防止するための封止層を設けるのが好ましい。封止層を形成する材料としては、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとの共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリ

テトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン又はジクロロジフルオロエチレンと他のモノマーとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質、金属(In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等)、金属酸化物(MgO、SiO₂、Al₂O₃、GeO₂、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等)、金属フッ化物(MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等)、液状フッ素化炭素(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、液状フッ素化炭素に水分や酸素の吸着剤を分散させたもの等が使用可能である。

【0069】外部からの水分や酸素を遮断する目的で、有機化合物層を封止板、封止容器等の封止部材により封止するのが好ましい。封止部材を背面電極側のみに設置しても、発光積層体全体を封止部材で覆ってもよい。有機化合物層を封止でき外部の空気を遮断することができれば、封止部材の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。封止部材に用いる材料としては、ガラス、ステンレススチール、金属(アルミニウム等)、プラスチック(ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリエステル、ポリカーボネート等)、セラミック等が使用できる。

【0070】封止部材を発光積層体に設置する際には、適宜封止剤(接着剤)を用いてもよい。発光積層体全体を封止部材で覆う場合は、封止剤を用いずに封止部材同士を熱融着してもよい。封止剤としては紫外線硬化樹

*脂、熱硬化樹脂、二液型硬化樹脂等が使用可能である。

【0071】さらに封止容器と有機薄膜素子の間の空間に水分吸収剤又は不活性液体を挿入してもよい。水分吸収剤は特に限定されず、具体例としては酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化リン、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等が挙げられる。不活性液体としてはパラフィン類、流動パラフィン類、フッ素系溶剤(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、塩素系溶剤、シリコンオイル類等が使用可能である。

【0072】

【実施例】本発明を以下の実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0073】実施例1~6、比較例1~3

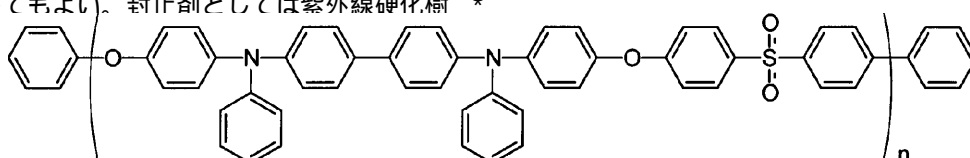
(A) 転写材料A-1~A-3の作製

表1に示す仮支持体(M-1~M-3)のそれぞれの片面上に、下記組成：

PTPDES (Mw=22000、下記構造(化1))： 40質量部
ジクロロエタン： 3500質量部

【0074】

【化1】



【0075】を有する有機薄膜層用塗布液をエクストルージョン型塗布機を用いて塗布し、室温で乾燥させることにより、厚さ30 nmのホール輸送性有機薄膜層を仮支持体(M-1~M-3)上にそれぞれ形成した転写材料A-1~A

-3を作製した[実施例1, 2 (A-1, A-2)、比較例1 (A-3)]。

【0076】

【表1】

仮支持体	構成材料	厚さ	Rmax
M-1	ポリエーテルスルホン (住友ベークライト(株)製)	188 μm	3 nm
M-2	ポリカーボネート (帝人化成(株)製)	180 μm	1 nm
M-3	ポリエチレンテレフタレート (東レ(株)製、ルミラーT60)	50 μm	40nm

【0077】仮支持体表面の最大高さRmaxはJIS B 0601-1982に基づき原子間力顕微鏡法で測定した。測定はセイコーインスツルメンツ(株)製、SPI3800N SPA-400を用いて、20000nm×20000nmの面積を0.05nm毎(ピッチ)で格子状にサンプリングして行った。

【0078】(B) 転写材料B-1~B-3の作製

表1に示す仮支持体(M-1~M-3)のそれぞれの片面上に、下記組成：

ポリビニルカルバゾール(Mw=63000、アルドリッチ社製)： 40質量部

トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体(オルトメタル化錯体): 1質量部

ジクロロエタン: 3500質量部

を有する発光性有機薄膜層用塗布液をバーコータを用いて塗布し、室温で乾燥させることにより、厚さ40 nmの発光性有機薄膜層を仮支持体(M-1~M-3)上にそれぞれ形成した転写材料B-1~B-3を作製した[実施例3, 4(B-1, B-2)、比較例2(B-3)]。

【0079】(C) 転写材料C-1~C-3の作製

表1に示す仮支持体(M-1~M-3)のそれぞれの片面上に、下記組成:

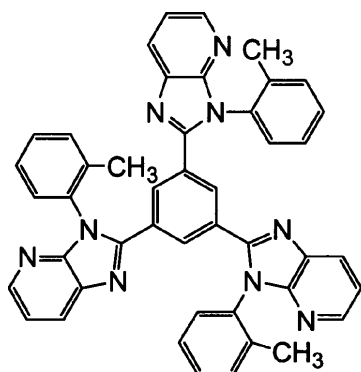
ポリビニルブチラル(Mw=50000、アルドリッチ社製): 10質量部

下記構造(化2)を有する電子輸送性化合物: 20質量部

1-ブタノール: 3500質量部

【0080】

【化2】



【0081】を有する電子輸送性有機薄膜層用塗布液をエクストルージョン型塗布機を用いて塗布し、80℃で2時間真空乾燥させることにより、厚さ60nmの電子輸送性有機薄膜層を仮支持体(M-1~M-3)上にそれぞれ形成した転写材料C-1~C-3を作製した[実施例5, 6(C-1, C-2)、比較例3(C-3)]。

【0082】実施例7~13、比較例4~9

(A) 有機EL素子の作製

(1) 転写材料の作製

実施例1~6及び比較例1~3と同様にして転写材料A-1~A-3、B-1~B-3、及びC-1~C-3を作製した。

(2) 被成膜面の作製

基板支持体として0.5 mm×2.5 cm×2.5 cmのガラス板を用い、この基板支持体を真空チャンバー内に導入し、SnO₂含有率が10質量%のITOターゲット(インジウム: 錫=95: 5(モル比))を用いて、DCマグネトロンスパッタリング(条件: 基板支持体の温度250℃、酸素圧1×10⁻³Pa)により、厚さ0.2 μmのITO薄膜からなる透明電極を形成した。ITO薄膜の表面抵抗は10Ω/□であった。

【0083】透明電極を形成したガラス板を洗浄容器に入れ、イソプロピルアルコール(IPA)により洗浄した

後、酸素プラズマ処理を行った。

【0084】(3) 有機薄膜層を被成膜面に転写
酸素プラズマ処理した透明電極の表面に、ポリエチレンジオキシチオフェンポリスチレンスルホン酸の水性分散液(BAYER社製、Baytron P: 固形分1.3質量%)をスピコートした後、150℃で2時間真空乾燥し、厚さ100 nmのホール輸送性有機薄膜層Dを形成した(実施例7~10、比較例4~7)。

【0085】また、同様に酸素プラズマ処理した透明電極の表面に、転写材料A-1~A-3のホール輸送性有機薄膜層側を重ね、転写材料A-1~A-3の仮支持体側から、0.3 MPaの圧力で加圧した160℃の加熱ローラの間を0.05m/分の速度にて加熱・加圧し、仮支持体を引き剥がすことにより、処理した透明電極の表面にホール輸送性有機薄膜層A-1~A-3を形成した(実施例11~13、比較例8, 9)。

【0086】2種類のホール輸送性有機薄膜層(D及びA-1~A-3)を有する基板の表面に、転写材料B-1~B-3の発光性有機薄膜層側を重ね合わせ、転写材料B-1~B-3の仮支持体側から、0.3 MPaの圧力で加圧した160℃の加熱ローラの間を0.05m/分の速度にて加熱・加圧し、転写材料B-1~B-3の仮支持体側から仮支持体を引き剥がすことにより、ホール輸送性有機薄膜層の上面に発光性有機薄膜層B-1~B-3を形成した(実施例7~13、比較例4, 6~8)。

【0087】同様に、発光性有機薄膜層B-1~B-3を有する基板の表面に転写材料C-1~C-3の電子輸送性有機薄膜層側を重ね、転写材料C-1~C-3の仮支持体側から、0.3 MPaの圧力で加圧した160℃の加熱ローラの間を0.05m/分の速度にて加熱・加圧し、仮支持体を引き剥がすことにより、発光性有機薄膜層の上面に電子輸送性有機薄膜層C-1~C-3を形成した(実施例9, 10, 13、比較例6)。

【0088】また、比較のために、2種類のホール輸送性有機薄膜層(D及びA-1~A-3)を有する基板の表面に、転写材料B-1~B-3を作成した発光性有機薄膜層用塗布液をスピコートを用いて塗布し、室温で乾燥させることにより、厚さ40 nmの発光性有機薄膜層BBを形成した(比較例5, 9)。

【0089】さらに、発光性有機薄膜層B-1を有する基板の表面に、転写材料C-1~C-3を作成した電子輸送性有機薄膜層用塗布液をスピコートを用いて塗布し、80℃で2時間真空乾燥させることにより、厚さ60nmの電子輸送性有機薄膜層CCを発光性有機薄膜層の上面に形成した(比較例7)。

【0090】(4) 背面電極の作製

形成した発光性有機薄膜層(実施例7, 8, 11, 12、比較例4, 5, 8, 9)及び電子輸送性有機薄膜層(実施例9, 10, 13、比較例6, 7)の上にパターンニングした蒸着用のマスク(発光面積が5 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム: 銀=10: 1(モ

ル比)を0.25 μm の厚さに蒸着し、銀を0.3 μm の厚さに蒸着して、背面電極を形成した。透明電極(陽極として機能する)及び背面電極よりそれぞれアルミニウムのリード線を結線し、積層構造体を形成した。

【0091】(5) 封止

得られた積層構造体を、窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤(長瀬チバ(株)製、XNR5493)を用いて封止し、有機EL素子を作製した。

【0092】(B) 評価

得られた有機EL素子を以下の方法により評価した。まずソースメジャーユニット2400型(東洋テクニカ(株))*

*製)を用いて、直流電圧を有機EL素子に印加し、発光させた。200 cd/m^2 で発光させた発光素子について、50倍の顕微鏡で発光ムラを観察した。発光ムラの評価基準は下記の通りである。結果を表2に示す。

9割以上が均一に発光した場合：

発光に濃淡があるが、7割以上が均一に発光した場合：

○

発光に濃淡があり、7割未満しか均一に発光しなかった場合：×

10 【0093】

【表2】

No.	有機薄膜層			発光ムラ	備考
	ホール輸送性	発光性	電子輸送性		
1	D	B-1	—	○	実施例7
2	D	B-2	—	◎	実施例8
3	D	B-1	C-1	○	実施例9
4	D	B-1	C-2	○	実施例10
5	A-1	B-1	—	○	実施例11
6	A-2	B-1	—	○	実施例12
7	A-1	B-1	C-1	○	実施例13
8	D	B-3	—	× すぐにショート	比較例4
9	D	BB	—	×	比較例5
10	D	B-1	C-3	× すぐにショート	比較例6
11	D	B-1	CC	×	比較例7
12	A-3	B-1	—	×	比較例8
13	A-1	BB	—	×	比較例9

【0094】また基板支持体を角ガラス板から厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート(PEET)の連続ウェブに変えた以外、実施例と同じ方法により有機薄膜層の転写を行なったところ、生産性が良く、発光ムラの評価においても同様な結果が得られた。

【0095】

【発明の効果】本発明において、仮支持体表面の最大高さ R_{max} (JIS B 0601-1982で規定される)が有機薄膜層の膜厚を100とした場合に50以下である仮支持体上に、有機薄膜素子を構成する有機薄膜層を形成してなる転写材料を使用し、剥離転写法を行なうことで、層の界面接合が良好となり、積層の過程が蒸着法と比較して簡便か

つ安価となり、発光面・発光量の均一性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を低コストで製造できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例による複数の有機薄膜層を面順次に有する転写材料を示す。

【図2】 JIS B 00601-1982で規定される最大高さ R_{max} を示す。

【図3】 本発明の別の実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。

【図4】 本発明のさらに別の実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。

【図5】 本発明のさらに別の実施例による有機薄膜素

21

子の製造方法を実施するための装置を示す。

【符号の説明】

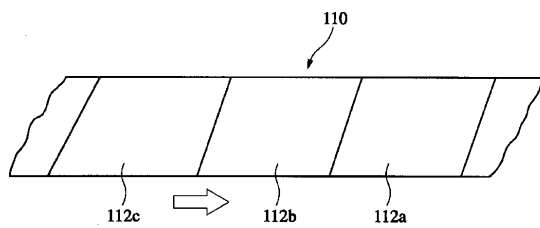
100・・・基板
 101・・・基板支持体
 102・・・陰極又は陽極
 110・・・転写材料
 111・・・仮支持体
 112・・・有機薄膜層
 113・・・転写材料巻回用ロール

22

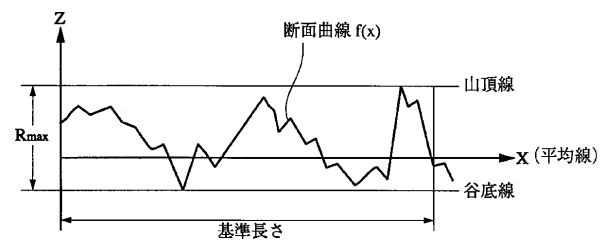
*114・・・仮支持体巻回用ロール
 121・・・加熱（加圧）部材（ロール）
 122・・・加圧（加熱）部材（ロール）
 123・・・転写材料用プレヒータ
 124・・・基板用プレヒータ
 125, 126・・・冷却部
 127・・・挿入角度調整部
 128・・・剥離角度調整部

*

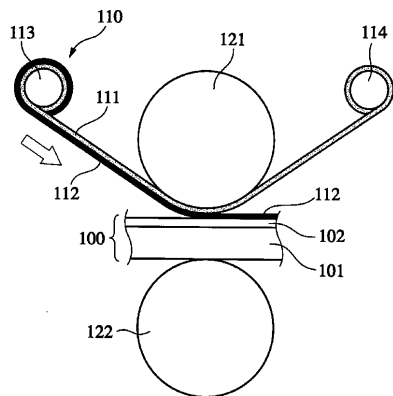
【図1】



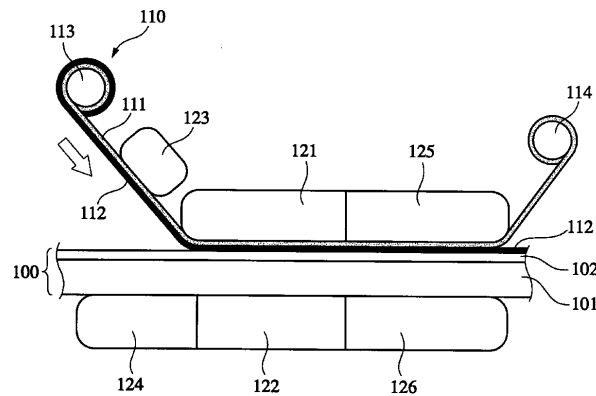
【図2】



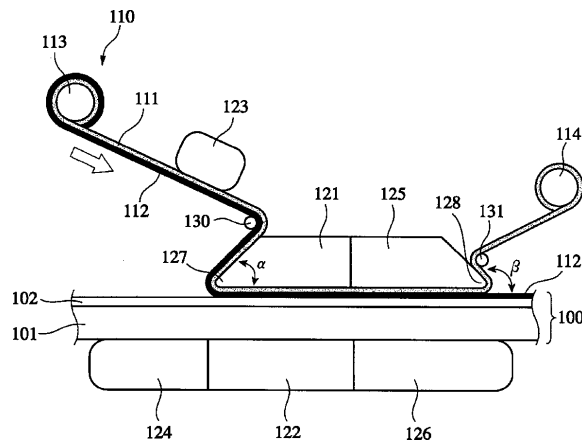
【図3】



【図4】



【図5】



专利名称(译)	转印材料和制造有机薄膜器件的方法		
公开(公告)号	JP2003178868A	公开(公告)日	2003-06-27
申请号	JP2001334858	申请日	2001-10-31
[标]申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士胶片有限公司		
[标]发明人	立石朋美		
发明人	立石 朋美		
IPC分类号	H05B33/10 H01L51/50 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K007/AB18 3K007/DA04 3K007/DB03 3K007/EA01 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC21 3K107/CC33 3K107/CC42 3K107/CC45 3K107/DD17 3K107/DD22 3K107/DD58 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78 3K107/FF08 3K107/GG09		
优先权	2001305429 2001-10-01 JP		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：通过剥离转印方法提供一种有机发光元件用的转印材料，其具有优异的发光效率，发光量的均匀性和耐久性，以及使用该材料制造有机薄膜元件的方法。 本发明的转印材料是其中在临时支撑体上形成至少一个有机薄膜层的转印材料，并且该转印材料使得有机薄膜层侧面对基板的膜形成表面。 在剥离转印法中用于制造有机薄膜元件的转印材料，该剥离材料是通过通过加热和/或在基板上施加压力来剥离临时支撑体而将有机薄膜层转印至基板的膜形成表面而制造的。 临时支撑体的表面粗糙度为最大高度Rmax (由JIS B 0601-1982定义) ，并且当有机薄膜层的厚度为100时为50以下。

上にそれぞれ形成した転写材料A 1～A 【表1】

仮支持体	構成材料	厚さ	Rmax
M-1	ポリエーテルスルホン (住友ベークライト (株) 製)	188 μ m	3 nm
M-2	ポリカーボネート (帝人化成 (株) 製)	180 μ m	1 nm
M-3	ポリエチレンテレフタレート (東レ (株) 製、ルミラーT60)	50 μ m	40nm