

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2009年10月8日(08.10.2009)

PCT

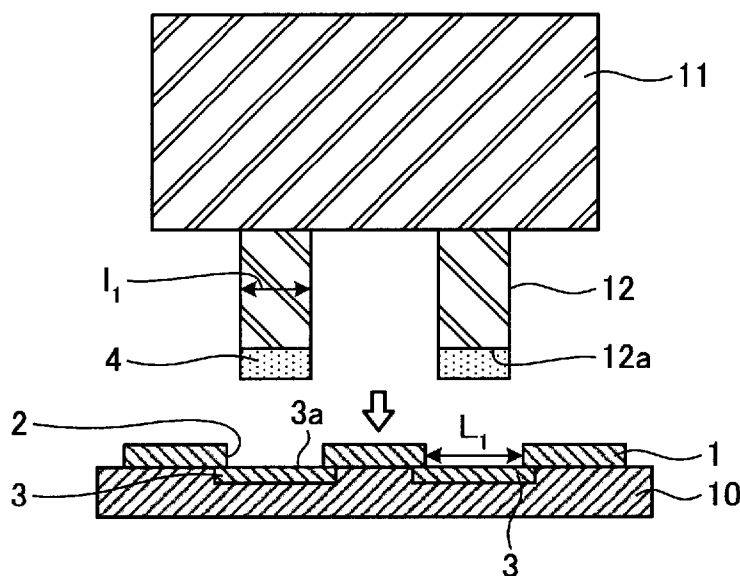
(10) 国際公開番号
WO 2009/122870 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/10 (2006.01) H05B 33/12 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01) H05B 33/22 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/054571
 - (22) 国際出願日: 2009年3月10日(10.03.2009)
 - (25) 国際出願の言語: 日本語
 - (26) 国際公開の言語: 日本語
 - (30) 優先権データ:
特願 2008-091565 2008年3月31日(31.03.2008) JP
 - (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).
 - (72) 発明者; および
 - (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 六原 行一 (ROKUHARA, Kouichi) [JP/JP]; 〒3040823 茨城県下妻市五箇267-2 Ibaraki (JP).
 - (74) 代理人: 酒井 宏明, 外(SAKAI, Hiroaki et al.); 〒1006020 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号 霞が関ビルディング 酒井国際特許事務所 Tokyo (JP).
 - (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
 - (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT, ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置

[図3]



(57) Abstract: An organic EL element manufacturing method is a method for manufacturing an organic electroluminescence element formed by stacking at least a cathode, an anode, and an organic light-emitting layer located between the cathode and the anode on a substrate, which is characterized by comprising a partition wall forming step of defining a pixel region shaped with corners by a partition wall on the substrate provided with one of the electrodes, and an organic light-emitting layer forming step of forming the organic light-emitting layer by applying organic light-emitting ink containing an organic light-emitting material and a solvent into the partition wall installed around the pixel region by a relief printing method. Thus, the aperture ratio of a pixel electrode can be increased without causing any defect in the organic light-emitting layer of the organic EL element.

(57) 要約: 本発明にかかる有機EL素子の製造方法は、基板上に少なくとも陰極と、陽極と、前記陰極および陽極の間に位置する有機発光層とを積層してなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、一方の電極を有する基板上に隔壁によって角部を有する形状の画素領域を画成する隔壁形成工程と、画素領域を囲って設置された隔壁内に、有機発光材料と溶媒とを含む有機発光インキを凸版印刷法で塗布して有機発光層を形成する有機発光層形成工程とを、含むことを特徴とする。本願発明方法により、有機EL素子の有機発光層を膜欠損を生じさせることなく画素電極の開口率を増大させることができる。

WO 2009/122870 A1

明 細 書

有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子と記す場合もある)の製造方法、該製造方法を用いて得られた有機EL素子、および前記有機EL素子を含む表示装置に関する。

背景技術

[0002] 周知のように、有機EL素子は、基本的な構造として、第1の電極(陽極または陰極)および第2の電極(陰極または陽極)と、これらの電極間に設けられる有機発光層とを有している。かかる構造において、前記有機発光層を挟んで相対向する電極間に電流を流すことにより前記有機発光層が発光する。

[0003] 通常、有機EL素子を用いた表示装置では、それぞれ1つの画素として機能する多数の有機EL素子が格子状に配置された表示パネルが用いられる。かかる表示パネルでは、多数の画素を確保するために、前記第1の電極が微細なパターンに形成され、このパターン化された第1の電極上に多数の画素領域を形成するために格子状の隔壁が形成される。この隔壁は、前記第1の電極パターン上にフォトレジスト膜を形成し、このフォトレジスト膜をフォトリソグラフィ技術を用いてパターン化することにより形成される。多数の隔壁により囲まれた内部には、第1の電極が露出しており、この領域が画素領域となる。

[0004] 各画素領域へ100nmオーダーの膜厚で有機発光層を形成する方法としては、真空蒸着法を用いる方法もあるが、通常、高精度かつ効率的な層形成(成膜)が可能であることから、ウェットコーティング法が用いられている。このウェットコーティング法は、有機発光材料を溶剤に溶かして塗布液とし、この塗布液を前記画素領域に選択的に塗布する方法である。この選択的な塗布には、凸版印刷法、インキジェットプリント法などの印刷法が用いられている(例えば特許文献1参照)。

[0005] 特許文献1:特開2006-286243号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0006] 特許文献1に記載のように、画素領域に有機発光インキを凸版印刷法を用いて塗布することで有機発光層を形成する方法は、有機EL素子を効率的に製造するに適した方法であるが、本発明者らの検討によれば、以下のような解決すべき問題点があることが判明した。
- [0007] 隔壁を設ける目的は、異なる画素間に電流が流れることを防ぐために画素間の電気絶縁性(以下、絶縁性という場合がある)を実現すること、および塗布液を各画素領域内において保持可能にし、塗布法で所定の位置に有機発光層を形成可能にすることにある。画素間の絶縁性を確実にするには、隔壁の幅寸法を大きくした方が良く、発光領域となる画素領域を広くするためには、隔壁の幅寸法を小さくした方がよい。かかる相反する要求を実現するために、隔壁は、絶縁性を確保しつつ、できるだけ広い面積の画素領域を画成できるように設計され、形成される。かかる観点から隔壁を設計すると、特許文献1には、隔壁の形状、隔壁により画成される画素領域の形状の詳細についての記載はないが、得られる理想的な画素領域の形状は矩形状となる。
- [0008] しかしながら、従来の有機EL素子では、画素領域は角部を持たない内周面がなだらかな形状に形成されている。それは、隔壁で囲まれた画素領域が角部を有する形状に形成された場合、この画素領域に有機発光インキを塗布した場合、有機発光インキが角部にまで行き届かず、角部に未塗布領域が残るおそれがあるからである。
- [0009] 上述のように画素領域に未塗布領域が残ると、画素領域内に有機発光層で覆われていない部分が存在することになり、その画素領域は発光不良となるおそれがある。そのために、従来の有機EL素子では、隔壁で画成される画素領域を角部のない形状に形成している。その結果、実際の設計の画素領域は、なだらかな内壁面とすることにより減じられた角部の面積分だけ、理想的な画素領域の占有面積から小さくなっている。
- [0010] かかる問題は、印刷法として特にインキジェットプリント法を用いた場合に顕著に現れる。

[0011] また、例えばアクティブマトリクス型有機EL素子では、理想的には、図1に示すように、TFT素子と配線(不図示)とが絶縁性隔壁1で覆われ、該絶縁性隔壁1を除く領域が画素領域2として形成される。隔壁1によって画成された画素領域2の底面には、第1の電極3が露出して画素電極3aを構成する。有機EL素子の配置される領域に対する画素領域の割合(開口率)は、できるだけ高い方が好ましい。なぜなら、開口率が高ければ高いほど、単位面積当たりの発光面積が大きくなり、その結果、複数の有機EL素子を備える装置全体としての発光量を高めることができるからである。そこで、隔壁1により画成する画素領域2の形状は、TFT素子を除いたできるだけ広い面積をカバーするように設計することが好ましいことになる。そのような基準に基づいて設計すると、画素領域2は、図1に示すように、矩形や楕円形といった単純な形状ではなく、矩形のいずれかの辺及び／又は角部にさらに小面積の矩形が接続した異形状となる場合が多い。このような画素領域2の異形状は、全体に多くの角部cを有する形状と定義し得る。

[0012] しかしながら、前述した理由と同様の理由で、図2に示すように、前記角部cを多く有する形状の画素領域2に有機発光インキ4を印刷すると、画素領域2の多数の角部cは、インキ未塗布部分として残ってしまう。

[0013] したがって、角部を面取してなだらかにすると、開口率が低下することになるが、従来、アクティブマトリクス型の有機EL素子の場合でも、隔壁で画成される画素領域の形状は、通常、なだらかな内壁面を有する角部のない形状に形成されている。

[0014] 本発明は、上記従来の事情に鑑みてなされたもので、その課題は、未塗布部分を生じることなく、開口率を増大させることのできる有機EL素子の製造方法と、該製造方法により得られる有機EL素子および表示装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0015] 上記課題を解決するために、本発明者は、鋭意、実験、検討を重ねたところ、未塗布部分を生じることなく角部を有する画素領域に有機発光インキを塗布することは、通常、困難であると考えられるが、数ある塗布法のなかでも有機発光材料と溶媒とを含む有機発光インキを凸版印刷法で塗布すると、未塗布部分を生じることなく角部を有する画素領域に有機発光インキを塗布することができることを見出した。

- [0016] 本発明は、上述した課題を解決するために、上記知見に基づき、下記の構成を採用した有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置を提供する。
- [0017] [1] 基板上に少なくとも陰極と、陽極と、前記陰極および陽極の間に位置する有機発光層とが積層されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、一方の電極を有する基板上に隔壁によって角部を有する形状の画素領域を画成する隔壁形成工程と、画素領域を囲って設置された隔壁内に、有機発光材料と溶媒とを含む有機発光インキを凸版印刷法で塗布して有機発光層を形成する有機発光層形成工程とを、含む有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0018] [2] 前記有機発光インキに沸点温度200°C以上の溶媒を用いるとともに、前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法より小さく設定する、上記[1]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0019] [3] 前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法 l_1 を前記画素領域の幅寸法 L_1 の99%~50%に設定する、上記[2]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0020] [4] 前記有機発光インキに沸点温度200°C未満の溶媒を用いるとともに、前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法よりも大きく設定する、上記[1]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0021] [5] 前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法 l_2 を、前記画素領域の幅寸法 L_1 よりも大きく、 $\{(前記幅寸法L_1) + (前記隔壁の幅寸法L_2) / 2\}$ 未満に設定する、上記[4]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0022] [6] 前記凸版印刷に用いる版の凸面が、被印刷物に順次押圧される方向に沿ってストライプ状に形成されている、上記[1]~[5]のいずれか一つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [0023] [7] 有機発光層形成工程では、前記有機発光インキとして多色に対応した多種のインキを所定の隔壁内に選択的に塗布し、少なくとも赤、緑、青の三色の画素を構成する有機発光層をそれぞれ形成する、上記[1]~[6]のいずれか一つに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

[0024] [8] 上記[1]～[7]のいずれか一つに記載の製造方法を用いて得られた有機エレクトロルミネッセンス素子。

[0025] [9] 上記[8]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を含む表示装置。

発明の効果

[0026] 本発明にかかる製造方法により、例えば、画素電極の開口率を高めるために角部を有する形状とした画素領域へ有機発光インキを塗布漏れを生じさせることなく、画素領域の全面に限無く塗布することができる。したがって、本発明によれば、発光面における発光むらや発光不良を生じさせることなく、単位面積あたりの発光量が増大した発光特性に優れた有機EL素子および表示装置を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]図1は、有機EL素子の製造において画素電極の開口率を最大になるように絶縁性隔壁のパターンを設計した場合に得られる画素領域の形状の一例を示す隔壁形成面の平面構成図である。

[図2]図2は、図1の要部拡大図である。

[図3]図3は、本発明の有機EL素子の製造方法における有機発光層の形成を、乾燥速度の遅い有機発光インキを用いるとともに、フレキシ印刷版の凸部の凸面の幅を画素領域の幅寸法より小さく設定して行う場合の印刷工程を説明するためのもので、画素領域に対してインキを接触させる前の状態を示す図である。

[図4]図4は、本発明の有機EL素子の製造方法における有機発光層の形成を、乾燥速度の遅い有機発光インキを用いるとともに、フレキシ印刷版の凸部の凸面の幅を画素領域の幅寸法より小さく設定して行う場合の印刷工程を説明するためのもので、画素領域に対してインキを接触させ、印刷版の凸面で押し付けた状態を示す図である。

。

[図5]図5は、図4に示した工程の後のインキ塗布状態を示す画素領域の平面図である。

[図6]図6は、図4に示した工程の後、フレキシ印刷版が離され、インキが乾燥された状態を示す有機EL素子の基板の側断面図である。

[図7]図7は、本発明の有機EL素子の製造方法における有機発光層の形成を、乾燥

速度の速い有機発光インキを用いるとともに、フレキシ印刷版の凸部の凸面の幅を画素領域の幅寸法より大きく設定して行う場合の印刷工程を説明するためのもので、画素領域に対してインキを接触させる前の状態を示す図である。

[図8]図8は、本発明の有機EL素子の製造方法における有機発光層の形成を、乾燥速度の速い有機発光インキを用いるとともに、フレキシ印刷版の凸部の凸面の幅を画素領域の幅寸法より大きく設定して行う場合の印刷工程を説明するためのもので、画素領域に対してインキを接触させ、印刷版の凸面で押し付けた状態を示す図である。

。

符号の説明

- [0028]
- 1 絶縁性隔壁
 - 2 画素領域
 - 3 第1の電極(陽極)
 - 3a 画素電極
 - 4 有機発光インキ
 - 10 基板
 - 11、21 凸版印刷版
 - 12、22 凸版印刷版の凸部
 - 12a、22a 凸部の凸面
 - c 画素領域の角部
 - l_1, l_2 凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法
 - L_1 画素領域の幅寸法
 - L_2 絶縁性隔壁の幅寸法

発明を実施するための最良の形態

- [0029] 以下に、本発明方法が対象とする有機EL素子の構造について説明し、その後、本発明にかかる有機EL素子の製造方法について、さらに詳しく説明する。なお、以下の説明において示す図面における各部材の縮尺は実際と異なる場合がある。また、有機EL素子には電極のリード線などの部材も存在するが、本発明の説明として直接的に関係はないために記載および図示を省略している。かかる点は、先述の図面お

よびその説明においても同様である。

[0030] 前述のように、本発明にかかる有機EL素子の製造方法は、基板上に少なくとも陰極と、陽極と、前記陰極および陽極の間に位置する有機発光層とをそれぞれ積層することで有機エレクトロルミネッセンス素子を製造する方法であって、基板の厚み方向の一方から見て画素の形成される画素領域を囲って設置された隔壁内に、有機発光材料と溶媒とを含む有機発光インキを凸版印刷法で塗布して有機発光層を形成する有機発光層形成工程を含み、前記画素領域が角部を有する形状であることを特徴とする。なお画素領域は、隔壁の内周面によって規定される領域である。

[0031] (基板)

有機EL素子に用いる基板は、電極を形成し、有機物の層を形成する際に変化しないものであればよく、例えば、ガラス、プラスチック、高分子フィルム、シリコン基板、これらを積層したものなどが用いられる。さらに、プラスチック、高分子フィルムなどに低透水化処理を施したものをを用いてもよい。前記基板としては、市販のものを使用可能であり、また公知の方法により製造してもよい。

[0032] (電極および発光層)

有機EL素子は、少なくとも陽極と、陰極と、前記陽極および陰極の間に位置する有機発光層とが積層されて構成される。また少なくとも陽極および陰極のうちのいずれか一方が光透過性を有する電極からなる。前記発光層には低分子および／または高分子の有機発光材料が用いられる。

[0033] 有機EL素子において、陽極および陰極の間には、複数の発光層が設けられてもよく、また発光層以外の層が設けられてもよい。以下、陰極と発光層との間に設けるものを陰極側インターレイヤー、陽極と発光層との間に設ける層を陽極側インターレイヤーという場合がある。

[0034] 陽極と発光層との間に設ける陽極側インターレイヤーとしては、正孔注入層・正孔輸送層、電子ブロック層等が挙げられる。

[0035] 上記正孔注入層は、陰極からの正孔注入効率を改善する機能を有する層であり、上記正孔輸送層とは、正孔注入層または陽極により近い層(正孔輸送層)からの正孔注入を改善する機能を有する層である。また、正孔注入層または正孔輸送層が電

子の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層を電子ブロック層と称することがある。電子の輸送を堰き止める機能を有することは、例えば、電子電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少で堰き止める効果を確認することが可能である。

[0036] 陰極と発光層の間に設ける陰極側インターレイヤーとしては、電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層等が挙げられる。

[0037] 上記電子注入層は、陰極からの電子注入効率を改善する機能を有する層であり、上記電子輸送層は、電子注入層または陰極により近い層(電子輸送層)からの電子注入を改善する機能を有する層である。また、電子注入層もしくは電子輸送層が正孔の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層を正孔ブロック層と称することがある。正孔の輸送を堰き止める機能を有することは、例えば、ホール電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少で堰き止める効果を確認することが可能である。

[0038] 上記のような陽極と陰極との間に設けられる各層の積層構成としては、陽極と発光層との間に正孔輸送層を設けた構成、陰極と発光層との間に電子輸送層を設けた構成、陰極と発光層との間に電子輸送層を設け、かつ陽極と発光層との間に正孔輸送層を設けた構成等が挙げられる。例えば、具体的には以下のa)～d)の積層構造が例示される。

a)陽極／発光層／陰極

b)陽極／正孔輸送層／発光層／陰極

c)陽極／発光層／電子輸送層／陰極

d)陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

(ここで、／は各層が隣接して積層されていることを示す。以下同様。)

[0039] 上記構成において、先述のように、発光層とは発光する機能を有する層であり、正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する層であり、電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する層である。なお、電子輸送層と正孔輸送層を総称して電荷輸送層と呼ぶ場合もある。発光層、正孔輸送層、電子輸送層は、それぞれ独立に2層以上用いてもよい。また、電極に隣接して設けた電荷輸送層のうち、電極からの電荷注入効

率を改善する機能を有し、素子の駆動電圧を下げる効果を有するものは、特に電荷注入層(正孔注入層、電子注入層)と呼ばれることがある。

[0040] さらに、電極との密着性向上や電極からの電荷注入の改善のために、電極に隣接して前記電荷注入層または膜厚2nm以下の絶縁層を設けてもよく、また、界面の密着性向上や混合の防止等のために電荷輸送層や発光層の界面に薄いバッファ層を挿入してもよい。積層する層の順番や数および各層の厚さについては、発光効率や素子寿命を勘案して適宜に設定すればよい。

[0041] また、電荷注入層(電子注入層、正孔注入層)を設けた有機EL素子としては、陰極に隣接して電荷注入層を設けた有機EL素子、陽極に隣接して電荷注入層を設けた有機EL素子が挙げられる。例えば、具体的には、以下のe)～p)の構造が挙げられる。

e)陽極／電荷注入層／発光層／陰極

f)陽極／発光層／電荷注入層／陰極

g)陽極／電荷注入層／発光層／電荷注入層／陰極

h)陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／陰極

i)陽極／正孔輸送層／発光層／電荷注入層／陰極

j)陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電荷注入層／陰極

k)陽極／電荷注入層／発光層／電荷輸送層／陰極

l)陽極／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極

m)陽極／電荷注入層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極

n)陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電荷輸送層／陰極

o)陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極

p)陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極

[0042] (陽極)

上記陽極には、例えば、透明電極または半透明電極として、電気伝導度の高い金属酸化物、金属硫化物や金属の薄膜を用いてもよく、透過率が高いものが好適であり、用いる有機層により適宜、選択して用いる。具体的には、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、インジウムスズ酸化物(Indium

Tin Oxide:略称ITO)、インジウム亜鉛酸化物(Indium Zinc Oxide:略称IZO)、金、白金、銀、および銅等から成る薄膜が用いられ、これらのなかでも、ITO、IZO、酸化スズが好ましい。

[0043] また、該陽極として、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体などの有機の透明導電膜を用いてもよい。また、前記有機の透明導電膜に用いられる材料、金属酸化物、金属硫化物、金属、およびカーボンナノチューブなどの炭素材料からなる群から選ばれる少なくとも一種以上を含む混合物からなる薄膜を、陽極に用いてもよい。

[0044] さらに、該陽極に、光を反射させる材料を用いてもよく、かかる材料としては、仕事関数が3.0eV以上の金属、金属酸化物、金属硫化物が好ましい。

[0045] 陽極の作製方法としては、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法等が挙げられる。

[0046] 陽極の膜厚は、光の透過性と電気伝導度とを考慮して、適宜選択することができ、例えば5nm~10 μ mであり、好ましくは10nm~1 μ mであり、さらに好ましくは20nm~500nmである。

[0047] (陽極側インターレイヤー)

上述のように、前記陽極と発光層との間に、必要に応じて、正孔注入層、正孔輸送層などの陽極側インターレイヤーが積層される。

[0048] (正孔注入層)

正孔注入層は、上述のように、陽極と正孔輸送層との間、または陽極と発光層との間に設けてもよい。正孔注入層を形成する材料としては、公知の材料を適宜用いてもよく、特に制限はない。例えば、フェニルアミン系、スターバースト型アミン系、フタロシアニン系、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、アミノ基を有するオキサジアゾール誘導体、酸化バナジウム、酸化タンタル、酸化タングステン、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化アルミニウム等の酸化物、アモルファスカーボン、ポリアニリン、ポリチオフェン誘導体等が挙げられる。

[0049] また、このような正孔注入層の厚みとしては、5~300nm程度であることが好ましい。この厚みが5nm未満では、製造が困難になる傾向があり、他方、300nmを超える

と、駆動電圧、および正孔注入層に印加される電圧が大きくなる傾向となる。

[0050] (正孔輸送層)

正孔輸送層を構成する材料としては、特に制限はないが、例えば、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)4, 4'-ジアミノビフェニル(TPD)、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPB)等の芳香族アミン誘導体、ポリビニルカルバゾールもしくはその誘導体、ポリシランもしくはその誘導体、側鎖もしくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフエンもしくはその誘導体、ポリアリールアミンもしくはその誘導体、ポリピロールもしくはその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)もしくはその誘導体、またはポリ(2, 5-チエニレンビニレン)もしくはその誘導体などが挙げられる。

[0051] これらの中で、正孔輸送層に用いる正孔輸送材料として、ポリビニルカルバゾールもしくはその誘導体、ポリシランもしくはその誘導体、側鎖もしくは主鎖に芳香族アミン化合物基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフエンもしくはその誘導体、ポリアリールアミンもしくはその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)もしくはその誘導体、またはポリ(2, 5-チエニレンビニレン)もしくはその誘導体等の高分子正孔輸送材料が好ましく、さらに好ましくは、ポリビニルカルバゾールもしくはその誘導体、ポリシランもしくはその誘導体、側鎖もしくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体である。低分子の正孔輸送材料の場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

[0052] 正孔輸送層の厚みは、特に制限されないが、目的とする設計に応じて適宜変更することができ、1~1000nm程度であることが好ましい。この厚みが前記下限値未満となると、製造が困難になる、または正孔輸送の効果が十分に得られないなどの傾向があり、他方、前記上限値を超えると、駆動電圧および正孔輸送層に印加される電圧が大きくなる傾向がある。したがって、正孔輸送層の厚みは、上述のように、好ましくは、1~1000nmであるが、より好ましくは、2nm~500nmであり、さらに好ましくは、5nm~200nmである。

[0053] (有機発光層)

有機発光層は、通常、主として蛍光または燐光を発光する有機物(低分子化合物および高分子化合物)を含む。なお、さらにドーパント材料を含んでいてもよい。本発明において用いることができる有機発光層を形成する材料としては、例えば、以下の色素系材料、金属錯体系材料、高分子系材料、およびドーパント材料などが挙げられる。

[0054] 上記色素系材料としては、例えば、シクロペンダミン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体化合物、トリフェニルアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、ピロール誘導体、チオフェン環化合物、ピリジン環化合物、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマーなどが挙げられる。

[0055] 上記金属錯体系材料としては、例えば、イリジウム錯体、白金錯体等の三重項励起状態からの発光を有する金属錯体、アルミキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾリル亜鉛錯体、ベンゾチアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、ユーロピウム錯体など、中心金属に、Al、Zn、BeなどまたはTb、Eu、Dyなどの希土類金属を有し、配位子にオキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダゾール、キノリン構造などを有する金属錯体などが挙げられる。

[0056] 上記高分子系材料としては、例えば、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素体や金属錯体系発光材料を高分子化したものなどが挙げられる。

[0057] 上記有機発光層形成材料のうち青色に発光する材料としては、例えば、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、およびそれらの重合体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが挙げられる。なかでも高分子材料のポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体やポリフルオレン誘導体などが好ましい。

[0058] また、上記有機発光層形成材料のうち緑色に発光する材料としては、例えば、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、およびそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが挙げられる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが好ましい。

[0059] また、上記発光層形成材料のうち赤色に発光する材料としては、例えば、クマリン誘導体、チオフェン環化合物、およびそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが挙げられる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが好ましい。

[0060] 上記有機発光層中に発光効率の向上や発光波長を変化させるなどの目的で、ドーパントを添加してもよい。このようなドーパントとしては、例えば、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、スクアリウム誘導体、ポルフィリン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾロン誘導体、デカシクレン、フェノキサゾンなどが挙げられる。

なお、かかる有機発光層の厚さは、通常、2nm～200nmである。

[0061] (陰極側インターレイヤー)

上述のように、前記発光層と後述の陰極との間に、必要に応じて、電子注入層、電子輸送層などの陰極側インターレイヤーが積層される。

[0062] (電子輸送層)

電子輸送層を形成する材料としては、公知のものが使用でき、例えば、オキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタンもしくはその誘導体、ベンゾキノンもしくはその誘導体、ナフトキノンもしくはその誘導体、アントラキノンもしくはその誘導体、テトラシアノアンストラキノジメタンもしくはその誘導体、フルオレン誘導体、ジフェニルジシアノエチレンもしくはその誘導体、ジフェノキノン誘導体、または8-ヒドロキシキノリンもしくはその誘導体の金属錯体、ポリキノリンもしくはその誘導体、ポリキノキサリンもしくはその誘導体、ポリフルオレンもしくはその誘導体等が挙げられる。

[0063] これらのうち、オキサジアゾール誘導体、ベンゾキノンもしくはその誘導体、アントラキノンもしくはその誘導体、または8-ヒドロキシキノリンもしくはその誘導体の金属錯

体、ポリキノリンもしくはその誘導体、ポリキノキサリンもしくはその誘導体、ポリフルオレンもしくはその誘導体が好ましく、2-(4-ビフェニル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、ベンゾキノン、アントラキノン、トリス(8-キノリール)アルミニウム、ポリキノリンがさらに好ましい。

[0064] (電子注入層)

電子注入層は、先に述べたように、電子輸送層と陰極との間、または発光層と陰極との間に設けられる。電子注入層としては、発光層の種類に応じて、アルカリ金属やアルカリ土類金属、あるいは前記金属を一種類以上含む合金、あるいは前記金属の酸化物、ハロゲン化物および炭酸化物、あるいは前記物質の混合物などが挙げられる。

[0065] 前記アルカリ金属またはその酸化物、ハロゲン化物、炭酸化物の例としては、例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、酸化リチウム、フッ化リチウム、酸化ナトリウム、フッ化ナトリウム、酸化カリウム、フッ化カリウム、酸化ルビジウム、フッ化ルビジウム、酸化セシウム、フッ化セシウム、炭酸リチウム等が挙げられる。

[0066] 前記アルカリ土類金属またはその酸化物、ハロゲン化物、炭酸化物の例としては、例えば、マグネシウム、カルシウム、バリウム、ストロンチウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム、酸化カルシウム、フッ化カルシウム、酸化バリウム、フッ化バリウム、酸化ストロンチウム、フッ化ストロンチウム、炭酸マグネシウムなどが挙げられる。

[0067] さらに、金属、金属酸化物、金属塩をドーピングした有機金属化合物、および有機金属錯体化合物、またはこれらの混合物も、電子注入層の材料として用いてもよい。

[0068] この電子注入層は、2層以上を積層した積層構造あってもよい。具体的には、Li/Caなどが挙げられる。この電子注入層は、蒸着法、スパッタリング法、印刷法などにより形成される。

この電子注入層の膜厚としては、1nm~1 μ m程度が好ましい。

[0069] (陰極)

陰極の材料としては、仕事関数が小さく、発光層への電子注入が容易な材料および/または電気伝導度が高い材料および/または可視光反射率の高い材料が好ま

しい。かかる陰極材料としては、具体的には、金属、金属酸化物、合金、グラファイトまたはグラファイト層間化合物、酸化亜鉛 (ZnO) 等の無機半導体などが挙げられる。

[0070] 上記金属としては、例えば、アルカリ金属やアルカリ土類金属、遷移金属や周期表13族金属等を用いることができる。これら金属の具体的例としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、金、銀、白金、銅、マンガン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫、アルミニウム、スカンジウム、バナジウム、亜鉛、イットリウム、インジウム、セリウム、サマリウム、ユーロピウム、テルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。

[0071] また、合金としては、上記金属の少なくとも一種を含む合金が挙げられ、具体的には、例えば、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、インジウム-銀合金、リチウム-アルミニウム合金、リチウム-マグネシウム合金、リチウム-インジウム合金、カルシウム-アルミニウム合金等が挙げられる。

[0072] 陰極は、必要に応じて透明電極もしくは半透明電極とされるが、それらの材料としては、例えば、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、ITO、IZOなどの導電性酸化物；ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体などの導電性有機物が挙げられる。

[0073] なお、陰極を2層以上の積層構造としてもよい。また、電子注入層が陰極として用いられる場合もある。

[0074] 陰極の膜厚は、電気伝導度や耐久性を考慮して、適宜選択することができるが、例えば、10nm~10 μ mであり、好ましくは、20nm~1 μ mであり、さらに好ましくは、50nm~500nmである。

[0075] (上部封止膜)

上述のように陰極が形成された後、基本構造として陽極-発光層-陰極を有してなる発光機能部を保護するために、該発光機能部を封止する上部封止膜が形成される。この上部封止膜は、通常、少なくとも一つの無機層と少なくとも一つの有機層を有する。積層数は、必要に応じて決定され、基本的には、無機層と有機層は交互に積層される。

[0076] なお、前記基板としてプラスチック基板が用いられる場合は、基板および上部封止膜により発光機能部が被包されていても、プラスチック基板がガラス基板に比べて、ガスおよび液体の透過性が高く、有機発光層などの発光物質は、酸化されやすく、水と接触することにより劣化しやすいため、プラスチック基板上にガスおよび液体に対するバリア性の高い下部封止膜を積層し、その後、この下部封止膜の上に上記発光機能部を積層する。この下部封止膜は、通常、上記上部封止膜と同様の構成、同様の材料にて形成される。

[0077] [有機EL素子の製造方法]

以下、本発明にかかる有機EL素子の製造方法について、さらに詳しく説明する。

[0078] (陽極形成工程)

前述のいずれかの基板材料からなる基板を準備する。ガスおよび液体の透過性が高いプラスチック基板を用いる場合は、必要に応じて、基板上に下部封止膜を形成しておく。

[0079] 次に、準備した基板上に前述のいずれかの陽極材料を用いて、陽極をパターン形成する。この陽極を透明電極とする場合には、前述のように、ITO、IZO、酸化錫、酸化亜鉛、酸化インジウム、亜鉛アルミニウム複合酸化物等の透明電極材料を使用する。電極のパターン形成は、例えば、ITOを用いる場合、スパッタリング法により基板上に均一な堆積膜として形成され、続いて、フォトリソグラフィによりライン状にパターンニングされる。

[0080] (隔壁形成工程)

ライン状の陽極を形成後、陽極が形成された基板上に感光性材料を塗布してフォトレジスト膜を積層する。この感光性材料(フォトレジスト組成物)の塗布は、例えば、スピンコーター、バーコーター、ロールコーター、ダイコーター、グラビアコーター、スリットコーター等を用いたコーティング法により行うことができる。次に、このフォトレジスト膜を、フォトリソグラフィによりパターンニングして絶縁性を示す隔壁を形成する。この隔壁形成のパターンニングに用いるフォトマスクは、画素電極の開口率を可能な限り大きくした画素領域を得るための隔壁形状を設計し、それに基づいて、作成される。通常、隔壁で画成される画素領域は、矩形となるが、作製対象の有機EL素子がアクテ

ィブマトリクス型の基板に用いられる素子の場合には、上記基準に基づいて設計された画素領域の形状は、通常、図1または図2に示すような多数の角部cを有する異形状形状となる。このような多数の角部cを有する異形状形状の領域が画素領域2となり、この画素領域2により規定される画素電極3aの開口率は、配線、TFT素子の絶縁被覆、および電極間の絶縁などの必要な絶縁を行うという制約の下で最大値となるように設計される。

[0081] 上記絶縁性隔壁1を形成する絶縁性の感光性材料は、ポジ型レジスト、ネガ型レジストのどちらであってもよい。隔壁は、絶縁性を示すことが重要であり、絶縁性を有さない場合には、互いに異なる画素間に電流が流れてしまい表示不良が発生するおそれがある。

[0082] この隔壁1を構成する感光性材料としては、具体的には、例えば、ポリイミド系、アクリル樹脂系、ノボラック樹脂系の各感光性化合物が挙げられる。なお、この感光性材料には、有機EL素子の表示品位を上げる目的で、光遮光性を示す材料を含有させてもよい。

[0083] この絶縁性隔壁1の表面に撥インキ性を付与するために、隔壁形成用の感光性材料に撥インキ性物質を加えてもよい。あるいは、絶縁性隔壁を形成した後、その表面に撥インキ性物質を被覆させることにより、隔壁表面に撥インキ性を付与してもよい。この撥インキ性は、後述のインターレイヤー用のインキに対しても、有機発光層用のインキに対しても、撥性であることが好ましい。

[0084] 前記感光性材料に撥インキ性物質を添加する場合に用いる撥インキ性化合物としては、シリコーン系化合物またはフッ素含有化合物が用いられる。これらの撥インキ性化合物は、後述の有機発光層形成に用いる有機発光インキ(塗布液)と、正孔輸送層などのインターレイヤー用の有機材料インキ(塗布液)の両方に撥インキ性を示すため、好適に用いることができる。

[0085] 隔壁1を形成した後に隔壁1の表面に撥インキ性被膜を形成する方法としては、撥インキ性成分を含む塗布液を隔壁表面に塗布する方法、隔壁表面の有機材料の官能基をフッ素で置換することにより表面を改質する方法、撥インキ性成分を気化させて隔壁表面に堆積させる方法などを挙げるることができる。具体的には、CF₄ガスを導

入ガスとして用いるプラズマ処理を挙げることができる。基板および電極などに比べると、有機物の隔壁は CF_4 ガスによってフッ化され易く、プラズマ処理を行うことで隔壁表面を選択的に撥インキ化することができる。

[0086] (陽極側インターレイヤー形成工程)

絶縁性隔壁形成後、必要に応じて、前述の正孔輸送層などの有機材料層(陽極側インターレイヤー)を形成する。

[0087] 陽極側インターレイヤーの成膜方法としては、特に制限はないが、低分子材料では、例えば、高分子バインダーとの混合溶液からの成膜による方法が挙げられる。また、高分子材料では、例えば、溶液からの成膜による方法が挙げられる。

[0088] 溶液からの成膜に用いる溶媒としては、前述の陽極側インターレイヤー用の材料を溶解させるものであれば、特に制限はない。かかる溶媒として、例えば、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒が挙げられる。

[0089] 上記溶液からの成膜方法としては、例えば、溶液からのスピコート法、キャストイング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレーコート法、ノズルコート法などのコート法、グラビア印刷、スクリーン印刷法、フレキシソ印刷法、オフセット印刷法、反転印刷法、インキジェットプリント法等の印刷法などの塗布法が挙げられる。パターン形成が容易であるという点で、グラビア印刷法、スクリーン印刷法、フレキシソ印刷法、オフセット印刷法、反転印刷法、インキジェットプリント法などの印刷法が好ましく、中でも、後述の有機発光層の形成時の有機発光インキの塗布に用いる凸版印刷が、特に好ましい。

[0090] 混合する高分子バインダーとしては、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、また、可視光に対する吸収が強くないものが好適に用いられる。かかる高分子バインダーとして、例えば、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサン等が挙げられる。

- [0091] 上記塗布方法により塗布液を基板全面に塗布した場合、塗布液が上記隔壁上に塗布される場合があるが、その場合、隔壁上の塗布液は、隔壁の表面によりはじかれて、隔壁により画成された画素領域内に落ち込み、各画素領域内に塗布膜として形成される。各画素領域内の塗布膜は、その後、乾燥することによりインターレイヤーとして機能する。
- [0092] (有機発光層形成工程)
- 次に有機発光層の形成工程が実行される。この有機発光層形成工程の特徴は、前記隔壁形成工程によって形成した角部を有する形状の画素領域の全域に有機発光インキを塗布するために、凸版印刷法を用いることにある。この凸版印刷は、より好ましくはフレキソ印刷である。
- [0093] 上記凸版印刷を用いるに際して、具体的な手順として、下記2つの好適な方法のいずれかを用いることが好ましい。
- [0094] 上記好適な凸版印刷の第1の方法は、前記有機発光インキに沸点温度200°C以上の溶媒を用いるとともに、凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法より小さく設定する。具体的には、図3に示すように、電極(陽極または陰極のいずれか一方)3がパターンニングされた基板10上に前述のように隔壁1が形成されて得られた画素領域2へ有機発光インキ4を塗布するために凸版印刷を行うに際して、用いる凸版11の凸部12の凸面12aの幅寸法 l_1 を前記画素領域2の幅寸法 L_1 の99%~50%に設定する。ここで、凸面12aの幅とは、凸版11が被印刷物(基板)に順次押圧される方向に垂直な方向の幅であり、例えば凸版11が円筒状であり、軸線まわりに回転する場合、該凸版11の周方向に垂直な軸線方向の幅である。また画素領域2の幅とは、有機発光インキが印刷される方向に垂直な幅である。
- [0095] 有機発光インキ4の溶媒として200°C以上の高沸点溶媒を含む乾燥速度の遅いフレキソ印刷用インキを用いる場合に、上述のように、凸版印刷版11の凸面12aの幅寸法を画素領域2の幅寸法 L_1 より小さく設定し、図4に示すように、前記凸版印刷版11を用いて有機発光インキ4を画素領域2に塗布する。凸版印刷版11の凸面12aに付着していた有機発光インキ4は、画素領域2の底面に接触し、画素領域2の底面と前記凸面12aとに挟まれて、図5に示すように、画素領域2の全ての角部cを含めた

全面に押し広げられる。その結果、画素領域2の全面にわたってインキ4が塗布される。その後、図6に示すように、凸版印刷版11が基板から離れると、インキ4の表面が表面張力によりなだらかになる。そして、その後の乾燥(溶媒の蒸発)によっても、インキ4の粘度が高いために、インキ4の画素領域2に対する接触線があまり移動せず、良好な有機発光層が形成される。

[0096] 上記好適な凸版印刷の第2の方法は、前記有機発光インキに沸点温度200°C未満の溶媒を用いるとともに、凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法より大きく設定する。具体的には、図7に示すように、凸版印刷に用いる版21の凸部22の凸面22aの幅寸法 l_2 を、前記画素領域2の幅寸法 L_1 よりも大きく、 $\{(前記幅寸法L_1) + (前記隔壁1の幅寸法L_2) / 2\}$ 未満に設定する。

[0097] 有機発光インキ4の溶媒として200°C未満の低沸点溶媒を含む乾燥速度の速い有機発光インキを用いる場合に、上述のように、凸版印刷版21の凸面22aの幅寸法を画素領域2の幅寸法 L_1 よりも大きく設定し、図8に示すように、前記凸版印刷版21を用いて有機発光インキ4を画素領域2に塗布させる。凸版印刷版21の凸面22aに付着していた有機発光インキ4は、画素領域2の底面に接触し、画素領域2の底面と前記凸面22aとに挟まれて、図5に示すように、画素領域2の全ての角部cを含めた全面に押し広げられる。その結果、上記第1の方法と同様に、画素領域2の全面に隈無くインキ4が塗布される。

[0098] この方法では、上記第1の方法の場合と異なり、版21の凸面22a上の速乾性のインキ4が画素領域2に塗布する前に半乾燥状態となる。そのため、インキ4の展延性が下がるので、凸面22aの幅寸法 l_2 を画素領域2の幅寸法 L_1 より大きくしている。したがって、半乾燥状態で画素領域2に押し付けられたインキ4は、展延性が低下していても、幅の広い凸面22aによって画素領域2全面に押し広げられる。その後、半乾燥状態で高粘度なインキ4の乾燥速度は緩やかであるため、溶媒蒸発時の接触線がほとんど動かず、良好な有機発光層を形成する。

[0099] 上記有機発光インキは、有機発光材料を溶剤に溶解または安定に分散させて調製する。この有機発光材料を溶解または分散する溶剤としては、例えば、トルエン、キシレン、アセトン、アニソール、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキ

サノン等の単独またはこれらの混合溶剤が挙げられる。中でも、トルエン、キシレン、アニソールといった芳香族有機溶剤が、有機発光材料の良好な溶解性を有することから好ましい。

- [0100] 上記溶剤の内、沸点が200°C以上の溶剤は、テトラリン、シクロヘキシルベンゼンなどであり、沸点が200°C未満の溶剤は、トルエン、キシレン、アニソールなどである。上記第1の凸版印刷方法において用いる有機発光インキの溶媒に占める「沸点が200°C以上の溶媒」の配合量は、使用する有機発光材料や画素領域の形状等の条件により適宜に決定される。同様に、上記第2の凸版印刷方法において用いる有機発光インキの溶媒に占める「沸点が200°C未満の溶媒」の配合量は、使用する有機発光材料や画素領域の形状等の条件により適宜に決定される。
- [0101] なお、有機発光インキには、必要に応じて、界面活性剤、酸化防止剤、粘度調整剤、紫外線吸収剤等を添加してもよい。
- [0102] さらに、隔壁が格子状に形成されている場合、前記凸版印刷に用いる版の凸面が、被印刷物に順次押圧される方向に沿ってストライプ状に形成されて版を用いて、有機発光インキを塗布することが好ましい。すなわち、被印刷物に順次押圧される方向が各凸面の長手方向に略一致するように、各凸面の長手方向に沿って各凸面がそれぞれ配置される。例えば凸版が円筒状であり、軸線まわりに回転する場合、該凸版の周方向が、被印刷物に順次押圧される方向に相当し、各凸面は、この周方向と各凸面の長手方向とを略一致させて、周方向に沿ってストライプ状に配置する。
- [0103] また有機発光層形成工程では、前記有機発光インキとして多色に対応した多種のインキを所定の隔壁内に選択的に塗布し、少なくとも赤、緑、青の三色の画素を構成する有機発光層をそれぞれ形成することが好ましい。具体的には、例えば、赤色を発光する有機発光インキを凸版印刷で塗布し、次に緑色を発光する有機発光インキを凸版印刷で塗布し、次に青色を発光する有機発光インキを凸版印刷で塗布してもよく、また赤、緑、青のそれぞれを発光する有機発光インキを凸版の所定の凸面に付着させ、さらに有機発光インキを転写するようにしてもよい。
- [0104] (陰極側インターレイヤー形成工程)

上記有機発光層の形成後、必要に応じて、電子輸送層や電子注入層などの陰極

側インターレイヤーを形成する。

この陰極側インターレイヤーの形成方法は、電子輸送層の場合、特に制限はないが、低分子電子輸送材料では、粉末からの真空蒸着法、または溶液もしくは熔融状態からの成膜による方法が例示され、高分子電子輸送材料では、溶液または熔融状態からの成膜による方法が例示される。溶液または熔融状態からの成膜時には、高分子バインダーを併用してもよい。溶液から電子輸送層を成膜する方法としては、前述の溶液から正孔輸送層を成膜する方法と同様の成膜法を用いてもよい。

また、電子注入層の場合、蒸着法、スパッタリング法、印刷法等を用いて形成される。

[0105] (陰極形成工程)

陰極は、前述のいずれかの材料を用い、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、CVD法、イオンプレーティング法、レーザーアブレーション法、および金属薄膜を圧着するラミネート法などにより形成する。

[0106] 前述のようにして、陰極を形成した後、基本構造として陽極－発光層－陰極を有してなる発光機能部を保護するために、上部封止膜を形成する。この上部封止膜は、必要に応じて、少なくとも一つの無機層と少なくとも一つの有機層とから構成する。これらの積層数は、必要に応じて決定し、基本的には、無機層と有機層は交互に積層する。

[0107] 本実施の形態の有機EL素子は、面状光源、セグメント表示装置およびドットマトリクス表示装置の光源、並びに液晶表示装置のバックライトとして用いることができる。

[0108] 本実施の形態の有機EL素子を面状光源として用いる場合には、例えば面状の陽極と陰極とを積層方向の一方から見て重なり合うように配置すればよい。

[0109] また、セグメント表示装置の光源としてパターン状に発光する有機EL素子を構成するには、光を通す窓がパターン状に形成されたマスクを前記面状光源の表面に設置する方法、消光すべき部位の有機物層を極端に厚く形成して実質的に非発光とする方法、陽極および陰極のうちの少なくともいずれか一方の電極をパターン状に形成する方法がある。これらの方法でパターン状に発光する有機EL素子を形成するとともに、いくつかの電極に対して選択的に電圧を印加できるように配線を施すことによ

って、数字や文字、簡単な記号などを表示可能なセグメントタイプ表示装置を実現することができる。ドットマトリクス表示装置の光源とするためには、陽極と陰極とをそれぞれストライプ状に形成して、積層方向の一方からみて互いに直交するように配置すればよい。

[0110] また、部分カラー表示、マルチカラー表示が可能なドットマトリクス表示装置を実現するためには、発光色の異なる複数の種類の発光材料を塗り分ける方法、並びにカラーフィルターおよび蛍光変換フィルターなどを用いる方法を用いればよい。ドットマトリクス表示装置は、パッシブ駆動してもよく、TFTなどと組み合わせてアクティブ駆動してもよい。

[0111] 上述の表示装置は、コンピュータ、テレビ、携帯端末、携帯電話、カーナビゲーション、ビデオカメラのビューファインダーなどの表示装置として有用である。

[0112] さらに、前記面状光源は、自発光薄型であり、液晶表示装置のバックライト、あるいは面状の照明用光源として有用である。また、フレキシブルな基板を用いれば、曲面状の光源や表示装置としても有用である。

実施例

[0113] 以下、本発明の実施例を示すが、以下に示す実施例は、本発明を説明するための好適な例示であって、なんら本発明を限定するものではない。

[0114] 以下に示す実施例は、アクティブマトリクス型有機EL素子を対象として実施したが本発明にかかる有機EL素子の製造方法は、この駆動方式の有機EL素子に限定されるものではなく、パッシブマトリクス型などの他の駆動方式の有機EL素子に対しても同様に適用することができる。

[0115] (実施例1)

(基板の準備および陽極の形成)

まず、200mm(縦)×200mm(横)×0.7mm(厚み)の透明ガラス板上にTFTアレイと陽極(画素電極)が形成された基板を準備した。ITO薄膜を形成し、さらにパターニングを行ってストライプ状の陽極を形成した。陽極の繰り返し間隔(ピッチ)は、80 μ mで、陽極の幅(ライン幅)70 μ mに対して陽極間隔(スペース幅)は10 μ mであった(ライン/スペース=70 μ m/10 μ m)。基板の厚み方向の一方から見て

画素の形成される画素領域は、一方向に伸びるITO薄膜上において、前記一方向に所定の間隔をあけて島状に設定される。

[0116] (隔壁の形成)

次に、上記基板上の全面に、ポジ型フォトレジスト(東京応化工業(株)製、商品名「OFPR-800」)をスピニング法により塗布し、この塗膜を乾燥させて、膜厚 $1\mu\text{m}$ のフォトレジスト層を形成した。

次に、TFT素子およびその他の配線を覆うという制約の下で画素領域が最大となるように設計されたフォトマスクを上記フォトレジスト層の上に配置し、アライメント露光機(大日本スクリーン製造社製、商品名「MA1300」)から前記フォトマスクを介して前記フォトレジスト層に紫外線を照射した(露光工程)。

前記露光工程に続いて、レジスト現像液(東京応化工業(株)製、商品名「NMD-3」)を用いて、前記フォトレジスト層の露光部を除去した(現像工程)。

続いて、上記ガラス基板をホットプレート上で 230°C で1時間加熱処理を行なって、上記現像後のフォトレジスト層を完全に加熱硬化させた(熱硬化工程)。

上記一連のフォトリソグラフィ工程により、画素の形成される画素領域を囲う隔壁(有機絶縁層)が形成され、この隔壁の内部で陽極が露出する。得られた隔壁ラインの幅寸法は、 $20\mu\text{m}$ であり、高さ寸法は、 $1\mu\text{m}$ であった。また、各画素領域は多数の角部を有し最大幅 $50\mu\text{m}$ ×最大長さ $150\mu\text{m}$ の異形状であった。

[0117] 次に、 CF_4 ガスを用いた真空プラズマ装置(サムコインターナショナル研究社製、商品名「RIE-200L」)を用いて、隔壁に撥液処理を行った。

[0118] (陽極側インターレイヤーの形成)

次に、ポリ(3, 4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリスチレンスルホン酸(Bayer社製、商品名「BaytronP AI4083」)の懸濁液を調製し、この懸濁液を $0.2\mu\text{m}$ メンブランフィルターで濾過した。この濾過液をノズルコート法により上記画素領域に塗布した。続いて、この塗布層を 200°C ×20分間、加熱処理して、 60nm 厚の正孔注入層を形成した。

[0119] (有機発光層の形成)

アニソールとシクロヘキシルベンゼンとを重量比7:3で混合した混合溶媒に、有機

発光材料として高分子発光材料(サメイション社製、商品名「RP158」)を溶解させた有機発光インキ(高分子発光材料の濃度:1重量%)を準備した。なお、使用した混合溶媒中のシクロヘキシルベンゼンの沸点は200°C以上であり、アニソールの沸点は200°C未満である。

[0120] 使用するフレキソ印刷版(材質:ポリエステル系樹脂、凸版凸部の高さ100 μ m)のストライプ形状凸部の凸面の幅寸法を、上記各画素領域の最大幅(画素電極開口部の幅)50 μ mの60%に相当する30 μ mに設定した。この凸版を用いて、フレキソ印刷装置(日本写真印刷社製、商品名「SDR-10」)により、画素領域に凸版の凸部に付着させた上記有機発光インキが押し当てるように位置調整をして印刷した。印刷後の有機発光インキは上記凸面による押圧により広がり、有機発光インキにより異形状の画素領域内の画素電極の全面が覆われ、乾燥後も、塗り残し部の発生がなかった。

[0121] 上記塗り残し部の有無の確認は、各画素領域内に形成された有機発光層の形状を光学顕微鏡(ニコン社製、商品名「オブチフォト88」、対物レンズ倍率:50倍)にて観察することにより行った。画素領域を画成している隔壁および陽極側インターレイヤーから有機発光インキがはじかれた痕跡はなく、有機発光層は異形状の画素領域の全ての角部を含む全域に成膜していることが確認された。

[0122] (陰極の形成)

次に、上記有機発光層の上に、陰極として、カルシウムを100 Åの厚さで蒸着し、さらに、酸化保護層としてアルミニウムを2000 Åの厚さで蒸着した。これにより、ボトムエミッション構造の有機EL素子を作製した。

[0123] 上述のようにして得た有機EL素子を発光させたところ、発光強度は、発光面全面に亘って均一であり、単位面積あたりの発光量も、従来品に比較して向上していることが確認された。

[0124] (実施例2)

基板の準備から隔壁形成による画素領域の形成を行い、正孔注入層を形成するまでは、上記実施例と同様に実施したので、それらの工程の詳細は省略し、その後の有機発光層の形成以降を以下に説明する。

[0125] (有機発光層の形成)

有機発光材料として高分子発光材料(サメイション社製、商品名「RP158」)をキシレン単独溶媒に溶解させた有機発光インキ(濃度:1重量%、粘度:10cp)を準備した。なお、使用したキシレンの沸点は200°C未満である。

[0126] 使用するフレキシ印刷版(材質:ポリエステル系樹脂、凸版凸部の高さ100 μ m)のストライプ形状凸部の凸面の幅寸法を、上記各画素領域の最大幅(画素電極開口部の幅)50 μ mより広い60 μ mに設定した。この凸版を用いて、フレキシ印刷装置(日本写真印刷社製、商品名「SDR-10」)により、画素領域の電極露出部に凸版の凸部に付着させた上記有機発光インキが押し当てられるように位置調整をして印刷した。印刷後の有機発光インキは上記凸面による押圧により広がり、有機発光インキにより異形状の画素領域内の画素電極の全面が覆われ、乾燥後も、塗り残し部の発生がなかった。

[0127] 上記塗り残し部の有無の確認は、各画素領域内に形成された有機発光層の形状を光学顕微鏡(ニコン社製、商品名「オブチフォト88」、対物レンズ倍率:50倍)にて観察することにより行った。画素領域を画成している隔壁および陽極側インターレイヤーから有機発光インキがはじかれた痕跡はなく、有機発光層は異形状の画素領域の全ての角部を含む全域に成膜していることが確認された。

[0128] (第2電極の形成)

次に、上記有機発光層の上に、第2電極(陰極)として、カルシウムを100 Åの厚さで蒸着し、さらに、酸化保護層としてアルミニウムを2000 Åの厚さで蒸着した。これにより、ボトムエミッション構造の有機EL素子を作製した。

[0129] 上述のようにして得た有機EL素子を発光させたところ、発光強度は、発光面全面に亘って均一であり、単位面積あたりの発光量も、従来品に比較して向上していることが確認された。

産業上の利用可能性

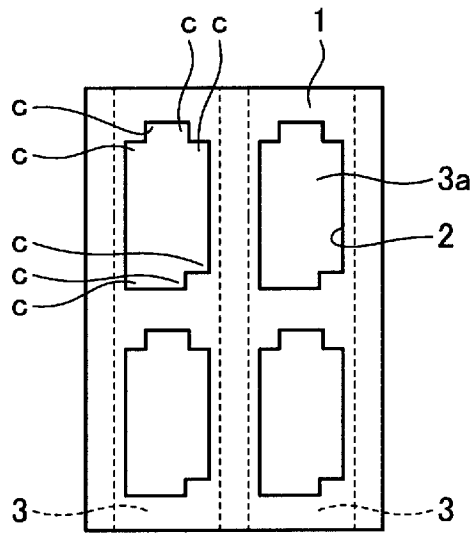
[0130] 以上のように、本発明にかかる有機EL素子の製造方法は、有機発光層の塗布むらを生じることなく画素電極の開口率を増大させた有機EL素子を製造することができる。本発明にかかる有機EL素子の製造方法を用いることにより単位面積あたりの発光

量が増大した発光特性に優れた有機EL素子および表示装置を得ることができる。

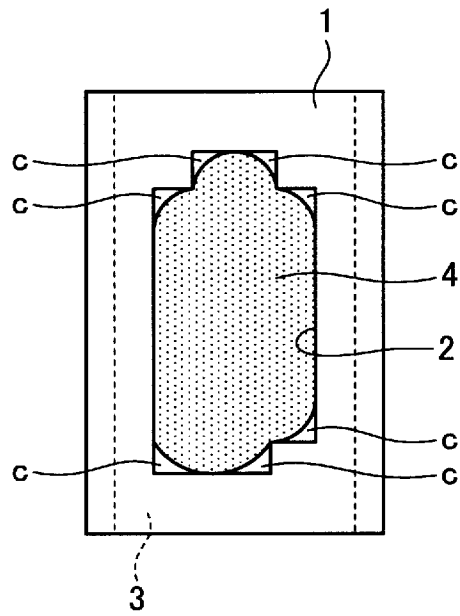
請求の範囲

- [1] 基板上に少なくとも陰極と、陽極と、前記陰極および陽極の間に位置する有機発光層とが積層されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、
一方の電極を有する基板上に隔壁によって角部を有する形状の画素領域を画成する隔壁形成工程と、
画素領域を囲って設置された隔壁内に、有機発光材料と溶媒とを含む有機発光インキを凸版印刷法で塗布して有機発光層を形成する有機発光層形成工程とを、
を含む有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [2] 前記有機発光インキに沸点温度200℃以上の溶媒を用いるとともに、前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法より小さく設定する請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [3] 前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法 L_1 を前記画素領域の幅寸法 L_1 の99%～50%に設定する請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [4] 前記有機発光インキに沸点温度200℃未満の溶媒を用いるとともに、前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法を前記画素領域の幅寸法よりも大きく設定する請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [5] 前記凸版印刷に用いる版の凸面の幅寸法 L_2 を、前記画素領域の幅寸法 L_1 よりも大きく、 $\{(前記幅寸法L_1) + (前記隔壁の幅寸法L_2) / 2\}$ 未満に設定する請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [6] 前記凸版印刷に用いる版の凸面が、被印刷物に順次押圧される方向に沿ってストライプ状に形成されている請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [7] 有機発光層形成工程では、前記有機発光インキとして多色に対応した多種のインキを所定の隔壁内に選択的に塗布し、少なくとも赤、緑、青の三色の画素を構成する有機発光層をそれぞれ形成する請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [8] 請求項1に記載の製造方法を用いて得られた有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [9] 請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を含む表示装置。

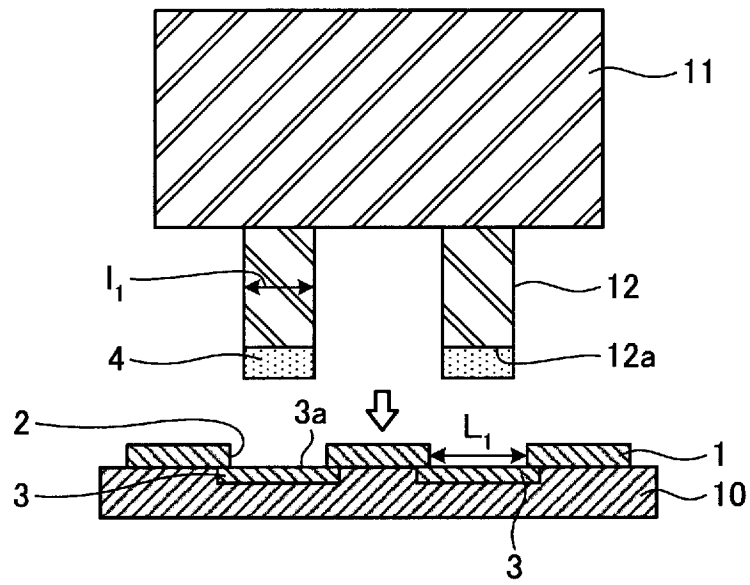
[図1]



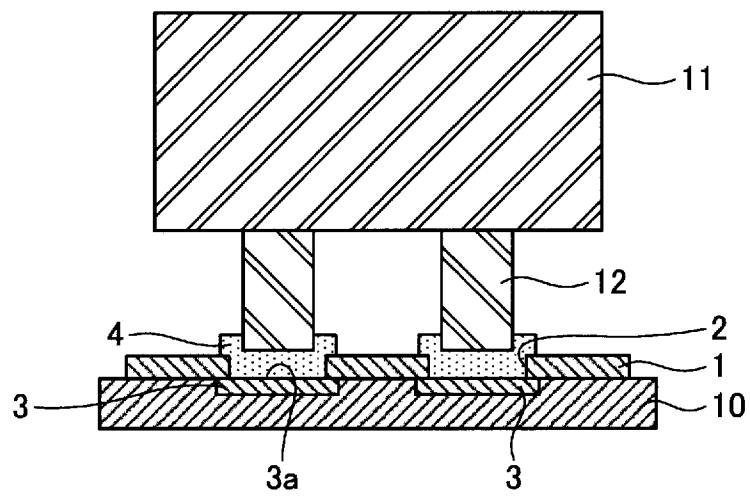
[図2]



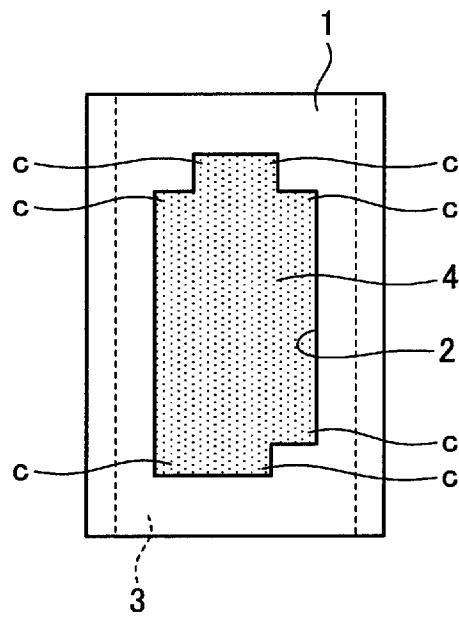
[図3]



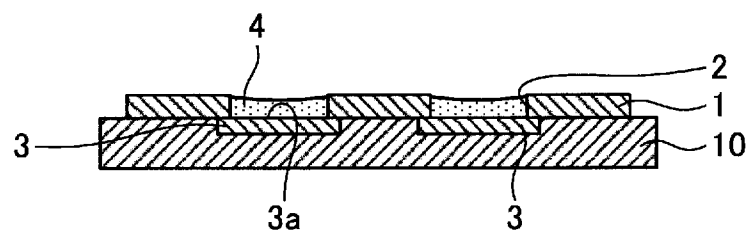
[図4]



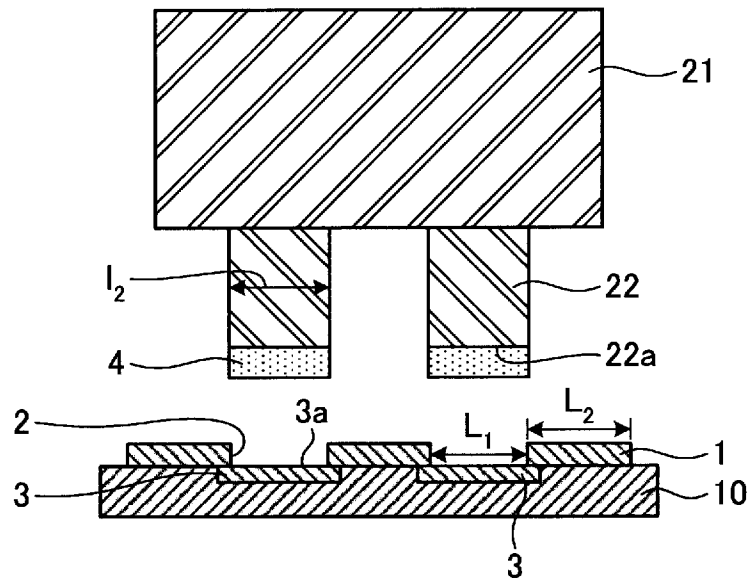
[図5]



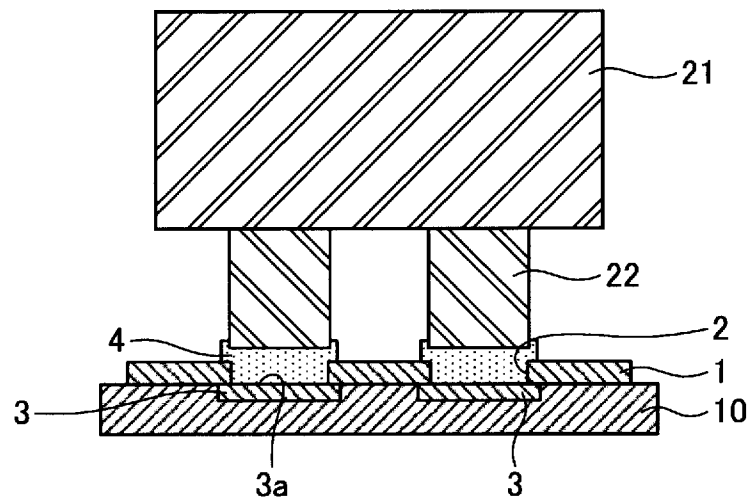
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/054571

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/10(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/12(2006.01)i, H05B33/22(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H05B33/10, H01L51/50, H05B33/12, H05B33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-155858 A (Sharp Corp.), 08 June, 2001 (08.06.01), Claims; Par. Nos. [0006], [0011] to [0049]; all drawings & US 6582504 B1 & EP 1103590 A2	1-3, 6-9 4, 5
X Y	JP 2007-250298 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 27 September, 2007 (27.09.07), Claims; Par. Nos. [0067] to [0073]; all drawings (Family: none)	1, 4, 5, 7-9 2, 3, 6
Y	JP 2007-090597 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 12 April, 2007 (12.04.07), Claims 5 to 7; Fig. 1 (Family: none)	6

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
13 April, 2009 (13.04.09)Date of mailing of the international search report
21 April, 2009 (21.04.09)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/054571

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-305465 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 22 November, 2007 (22.11.07), Claim 1 & US 2007/0281575 A1	1-3

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H05B33/10(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/12(2006.01)i, H05B33/22(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H05B33/10, H01L51/50, H05B33/12, H05B33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2009年
 日本国実用新案登録公報 1996-2009年
 日本国登録実用新案公報 1994-2009年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 2001-155858 A (シャープ株式会社) 2001.06.08, 【特許請求の 範囲】、【0006】、【0011】 - 【0049】、全図 & US 6582504 B1 & EP 1103590 A2	1-3, 6-9 4, 5
X Y	JP 2007-250298 A (凸版印刷株式会社) 2007.09.27, 【特許請求の 範囲】、【0067】 - 【0073】、全図 (ファミリーなし)	1, 4, 5, 7-9 2, 3, 6
Y	JP 2007-090597 A (凸版印刷株式会社) 2007.04.12, 【請求項 5-7】、 【図 1】 (ファミリーなし)	6

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 13.04.2009	国際調査報告の発送日 21.04.2009
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 渡邊 勇 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2007-305465 A (凸版印刷株式会社) 2007. 11. 22, 【請求項 1】 & US 2007/0281575 A1	1-3