

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005年2月3日 (03.02.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/011332 A1

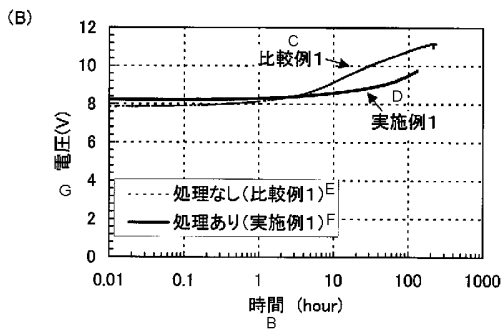
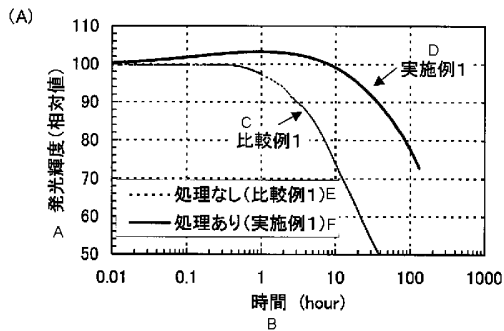
- (51) 国際特許分類7: H05B 33/10, 33/14
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/010187
- (22) 国際出願日: 2004年7月16日 (16.07.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2003-279355 2003年7月24日 (24.07.2003) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 株式会社
半導体エネルギー研究所 (SEMICONDUCTOR EN-
ERGY LABORATORY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2430036
神奈川県厚木市長谷398番地 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 土屋 薫

- (TSUCHIYA, Kaoru) [JP/JP]; 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (JP). 池田 寿雄 (IKEDA, Hisao) [JP/JP]; 〒2430036 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内 Kanagawa (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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,

[続葉有]

(54) Title: METHOD OF PRODUCING LIGHT EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 発光素子の作製方法



A...LIGHT EMISSION LUMINANCE (RELATIVE VALUE)
 B...TIME (hour)
 C...COMPARATIVE EXAMPLE 1
 D...EMBODIMENT 1
 E...NOT TREATED (COMPARATIVE EXAMPLE 1)
 F...TREATED (EMBODIMENT 1)
 G...VOLTAGE (V)

(57) Abstract: A method of producing a light emitting element capable of preventing a time-dependent decrease in the light emission efficiency of a light emitting element having a structure in which an organic compound is held between a pair of electrodes, and prolonging its service life. A method of producing a light emitting element having a plurality of organic-compound layers between a pair of electrodes, characterized by comprising the step of exposing to an atmosphere containing an electron accepting gas at least one layer out of the layers before or after it is formed. The plurality of layers include a light emitting layer, and comprises the light emitting layer and one or at least two layers selected from among a hole injection layer, a hole transportation layer, a hole inhibition layer, an electron transportation layer and an electron injection layer.

(57) 要約: 一対の電極間に有機化合物が挟まれた構造を有する発光素子の発光効率の経時的低下を抑制し、長寿命化できる発光素子の製造方法について提供することを課題とする。一対の電極間に有機化合物からなる複数の層を有する発光素子の作製方法であって、前記複数の層のうち、少なくとも一の層の形成後または形成前に、電子受容性ガスを含む雰囲気中に曝す処理をすることを特徴としている。なお、前記複数の層は、発光層を含むものであり、当該発光層と、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層から選ばれた一または二以上の層とで構成された層である。

WO 2005/011332 A1



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, HU, IE, IT, LU, MC, NL, 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:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

発光素子の作製方法

技術分野

[0001] 本発明は、発光素子の作製方法に関し、特に、一对の電極間に有機化合物が挟まれた構造を有する発光素子の作製方法に関する。

背景技術

[0002] エレクトロルミネッセンス素子(EL;Electro Luminescence)からの発光を利用した発光装置は、表示用あるいは照明用の装置として注目され、開発が進められている。

[0003] 発光装置の開発において、発光素子の発光輝度の経時的な低下を抑制し、長寿命化することは、非常に重要な課題である。

[0004] そのため、長寿命化が可能な発光材料や、発光材料の劣化を低減できるような封止技術の開発がおこなわれている。また、例えば特許文献1に記載されているように、無機化合物で形成されている発光層を酸化処理した後、真空中で400～500度の熱処理をすることにより長寿命化することも試みられている。

[0005] しかし、特許文献1に示されているような酸化処理は、250～450度の熱処理を必要としている。このような処理は、無機化合物と比較して分解温度が低く、耐熱性の低い有機化合物を発光層として用いた発光素子には不適だと考えられる。

[0006] 従って、有機化合物を発光層として用いた発光素子の長寿命化を図ることができる、新たな手段を開発する必要があった。

[0007] 特許文献1:特開平7-45367号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、一对の電極間に有機化合物が挟まれた構造を有する発光素子の発光効率の経時的低下を抑制し、長寿命化できる発光素子の製造方法について提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

- [0009] 本発明は、一対の電極間に有機化合物からなる複数の層を有する発光素子の作製方法であって、前記複数の層のうち、少なくとも一の層の形成後または形成前に、電子受容性ガスを含む雰囲気曝露処理をすることを特徴としている。
- [0010] 前記複数の層は、発光層を含むものであり、当該発光層と、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層から選ばれた一または二以上の層とで構成された層である。
- [0011] 例えば、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\正孔阻止層\電子輸送層\電子注入層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\正孔阻止層\電子輸送層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\電子輸送層\電子注入層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\電子輸送層\電子注入層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\電子輸送層のような構成である。但し、これら以外の構成のものでもよい。
- [0012] 発光層、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層は同一の物質で形成されていてもよく、または同一の物質を含むものでもよい。また、有機金属錯体等のような無機物を含む物質であってもよい。
- [0013] なお、前記複数の層は必ずしも全ての層が有機化合物のみで形成されている必要はなく、例えば電子輸送層を、アルカリ金属またはアルカリ土類金属から選ばれた一または二以上の元素の酸化物、窒化物、或いはフッ化物等の無機化合物で形成してもよい。この他、錫(Sn)、亜鉛(Zn)、バナジウム(V)、ルテニウム(Ru)、サマリウム(Sm)、インジウム(In)等の化合物であってもよい。
- [0014] 電子受容性ガスとしては、例えば酸素が挙げられる。電子受容性ガスを含む雰囲気曝露処理は、電子受容性ガスが導入された処理室内に、室温(20-25度)で、一定時間、作製中の素子を曝露方法で行えばよい。
- [0015] また、電子受容性ガスを含む雰囲気曝露処理は、上記の層(発光層、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層)のうち、任意の層の形成前、または形成後に行えばよい。例えば、発光層の形成前でもよいし、形成後でもよい。また正孔注入層の形成前でもよいし、形成後でもよい。或いは、正孔注入層の形成前と、発光層の形成前とのように、複数の工程部位で行っても構わない。
- [0016] さらに、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入

層は、それぞれ積層構造を有するものでもよい。従って、これらの層がそれぞれ積層構造を有する場合は、積層する各層の形成前または形成後に、電子受容性ガスを含む雰囲気曝露処理をおこなってもよい。

- [0017] なお、複数の層が、例えば、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\正孔阻止層\電子輸送層\電子注入層のような構成である場合、正孔注入層から順に形成してもよいし、または電子注入層から順に形成しても構わない。この他の層構成を有する場合にも同様に、積層順については特に限定されない。

発明の効果

- [0018] 本発明を適用して発光素子を作製することにより、一定の電流密度で発光素子に電流を流し、発光させ続けたときの、発光輝度の経時的低下が少なくなり、発光素子の長寿命化を図ることができる。また、一定の電流密度で発光素子に電流を流し、発光させ続けたときの、発光素子の駆動電圧の上昇が抑制され、発光素子の低消費電力化も図ることができる。さらに、本発明を適用して作製した発光素子を用いた発光装置においても、長寿命化または低消費電力化が図れる。

図面の簡単な説明

- [0019] [図1]図1は、本発明を適用して作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した結果である。
- [図2]図2は、本発明を適用して作製する発光素子の一態様について説明する図である。
- [図3]図3は、本発明を適用して作製する発光素子を用いた発光装置の一態様について説明する図である。
- [図4]図4は、本発明を適用して作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した結果である。
- [図5]図5は、本発明を適用して作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した結果である。
- [図6]図6は、本発明を適用して作製する発光素子を用いた発光装置の一態様について説明する図である。
- [図7]図7は、本発明を適用して作製した発光装置を搭載した電子機器について説

明する図である。

符号の説明

- [0020] 10-基板, 11-TFT, 12-TFT, 13-発光素子, 14-第1の電極,
15-発光物質を含む層, 16-第2の電極, 17-配線, 201-基板, 201a-基板, 201b-
基板, 201c- 基板, 202-第1の電極, 203-正孔注入層,
204-正孔輸送層, 205-発光層, 206- 電子輸送層, 207-第2の電極, 401-ソー
ス側駆動回路, 402-画素部, 403-ゲート側駆動回路,
404-封止基板, 405-シール剤, 407-空間, 408-配線, 409-FPC(フレキシブル
プリントサーキット), 410-素子基板, 411-スイッチング用TFT,
412-電流制御用TFT, 413-第1の電極, 414-絶縁物, 416-発光物質を含む層,
417-第2の電極, 418-発光素子, 423-nチャンネル型TFT,
424-pチャンネル型TFT, 5501-筐体, 5502-支持台, 5503-表示部, 5511-本体,
5512-表示部, 5513-音声入力, 5514-操作スイッチ,
5515-バッテリー, 5516-受像部, 5521-本体, 5522-筐体, 5523-表示部, 5524
-キーボード, 5531-本体, 5532-スタイラス,
5533-表示部, 5534-操作ボタン, 5535-外部インターフェイス, 5551-本体, 555
2-表示部(A), 5553-接眼部, 5554-操作スイッチ,
5555-表示部(B), 5556-バッテリー, 5561-本体, 5562-音声出力部, 5564-表
示部, 5565-操作スイッチ, 5566-アンテナ

発明を実施するための最良の形態

- [0021] 本形態では、図2で表されるような、一対の電極間に、有機化合物からなる複数の層を有する構造の発光素子の作製方法について説明する。
- [0022] 先ず基板201上に第1の電極(陽極)202を形成する。ここで、基板201としては、ガラス、またはプラスチックなどを用いることができる。なお、発光素子を形成するための支持体として機能するものであれば、これら以外のものでもよい。また、第1の電極202を形成する物質としては、仕事関数の大きい(仕事関数4.0eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、インジウム錫酸化物(ITO:Indium Tin Oxide)、酸化インジウムに2-20

%の酸化亜鉛(ZnO)を混合したIZO(Indium Zinc Oxide)の他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、または金属材料の窒化物(TiN)等を用いることができる。

- [0023] 次に、真空中で、第1の電極(陽極)202が成膜された基板201を熱処理する。
- [0024] 次に、第1の電極202まで形成した基板201を、電子受容性ガスを含む処理室内に、室温(20-25度)で、一定時間、放置する。なお、電子受容性ガスとしては、例えば酸素が挙げられる。
- [0025] 次に第1の電極202の上に、正孔注入層203を形成する。正孔注入層203を形成する物質としては、フタロシアニン系の化合物を用いることができる。例えば、フタロシアニン(略称:H₂Pc)、銅フタロシアニン(略称:CuPc)等を用いることができる。この他、ポリスチレンスルホン酸(PSS)とポリエチレンジオキシチオフェン(PEDOT)とを混合した高分子材料等も用いることができる。なお、正孔注入層203は、上記物質からなる層が、それぞれ積層したものでも構わない。
- [0026] 次に正孔注入層203の上に、正孔輸送層204を形成する。正孔輸送層204を形成する物質としては、芳香族アミン系(即ち、ベンゼン環-窒素の結合を有するもの)の化合物を用いることができる。広く用いられている材料として、例えば、4, 4'-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル(略称:TPD)の他、その誘導体である4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル(略称:α-NPD)、あるいは4, 4', 4''-トリス(N, N-ジフェニル-アミノ)-トリフェニルアミン(略称:TDATA)、4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-トリフェニルアミン(略称:MTDATA)などのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。なお、正孔輸送層204は、上記物質からなる層が、それぞれ積層したものでも構わない。
- [0027] 次に正孔輸送層204の上に、発光層205を形成する。発光層としては、例えば9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)のような発光能力が高く、またキャリア輸送性を有する発光材料を用いることができる。また、発光材料であるN, N'-ジメチルキナクリドン(略称:DMQd)をゲスト材料とし、Alq₃のような成膜性がよく(結晶化

しにくく)、キャリア輸送性の高いホスト材料と共蒸着したもの等も用いることができる。

[0028] 次に発光層205の上に、電子輸送層206を形成する。電子輸送層206を形成する物質としては、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Alq₃)、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Almq₃)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト)ベリリウム(略称:BeBq₂)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-アルミニウム(略称:BAIq)など、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体を用いることができる。また、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト]亜鉛(略称:Zn(BOX)₂)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト]亜鉛(略称:Zn(BTZ)₂)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体もある。さらに、金属錯体以外にも、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称:PBD)や、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン(略称:OXD-7)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称:TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称:p-EtTAZ)、バソフェナントロリン(略称:BPhe n)、バソキュプロイン(略称:BCP)なども用いることができる。なお、電子輸送層206は、上記物質からなる層が、それぞれ積層したものでも構わない。

[0029] 電子輸送層206の上に、第2の電極(陰極)207を形成する。第2の電極207を形成する物質としては、仕事関数の小さい(仕事関数3.8eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。このような陰極材料の具体例としては、元素周期表の1族または2族に属する元素、すなわちリチウム(Li)やセシウム(Cs)等のアルカリ金属、およびマグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、ストロンチウム(Sr)等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金(Mg:Ag, Al:Li)が挙げられる。しかしながら、第2の電極207と発光層との間に、電子注入を促す機能を有する層を、当該第2の電極と積層して設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO等様々な導電性材料を第2の電極207として用いることができる。

[0030] なお、電子注入を促す機能を有する層としては、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシ

ウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF₂)等のようなアルカリ金属又はアルカリ土類金属の化合物を用いることができる。また、この他、電子輸送性を有する材料中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属を含有させたもの、例えばAlq中にマグネシウム(Mg)を含有させたもの等を用いることができる。

[0031] なお、正孔注入層203、正孔輸送層204、発光層205、電子輸送層206の形成方法は、蒸着法、インクジェット法またはスピコート法のいずれの方法を用いても構わない。また、上記に示した物質以外の物質を用いて形成しても構わない。

[0032] 発光素子の構造は、上記のものに限定されるものではなく、第1の電極202と第2の電極207との間に、上記とは異なる積層構造を有する構造の発光素子でも構わない。例えば、発光層と電子輸送層との間に正孔阻止層などを有する構造でも構わない。また、発光層以外に、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層、正孔輸送層、正孔注入層等の層を自由に組み合わせて設け、第1の電極202と第2の電極207との間に、正孔注入層／発光層／電子輸送層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\正孔阻止層\電子輸送層\電子注入層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\正孔阻止層\電子輸送層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\電子輸送層\電子注入層、正孔注入層\正孔輸送層\発光層\電子輸送層等の積層構造を有する発光素子でも構わない。

[0033] なお、正孔阻止層を形成するための物質としては、BAIq、OXD-7、TAZ、p-EtTAZ、BPhen、BCP等を用いることができる。

[0034] さらに、酸素を含む雰囲気曝露処理は、第1の電極202を形成後、第2の電極を形成前であれば、どの工程段階で行っても構わない。例えば、上記のように正孔注入層の形成前でもよいし、正孔注入層の形成後でもよい。また、正孔輸送層の形成前でもよいし形成後でもよい。また、発光層の形成前でもよいし、形成後でもよい。また正孔阻止層の形成前でもよいし、形成後でもよい。また、電子輸送層の形成前でもよいし、形成後でもよい。また電子注入層の形成前でもよいし、形成後でもよい。また、例えば、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層は、それぞれ積層構造を有する層である場合には、積層する各層の形成前または形成後に、酸素を含む雰囲気曝露処理をおこなってもよい。例えば、正孔注入層

が二層構造である場合には、一層目を形成後、酸素を含む雰囲気曝露処理をし、その後二層目を形成してもよい。また、酸素を含む雰囲気曝露処理は、異なる工程段階で、複数回行って構わない。

[0035] 本実施の形態においては、ガラス、プラスチックなどからなる基板201上に発光素子を作製している。一基板上にこのような発光素子を複数作製することで、パッシブ型の発光装置を作製することができる。また、ガラス、プラスチックなどからなる基板以外に、例えば図3に示すように、薄膜トランジスタ(TFT)アレイ基板上に発光素子を作製してもよい。これにより、TFTによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置を作製できる。図3において、基板10上には、TFT11、12が設けられている。また、TFT11、12が設けられた層の上には第1の電極14と第2の電極16との間に発光物質を含む層15を有する発光素子13が設けられ、第1の電極14とTFT11とは配線17を介して接続している。なお、TFTの構造は、特に限定されない。

[0036] 上記のように、有機化合物に酸素を含む雰囲気曝露処理を行って、発光素子を作製することにより、一定の電流密度で電流を流し発光させ続けたときの、発光輝度の経時的低下が少ない発光素子を作製できる。つまり、発光素子の長寿命化を図ることができる。

実施例 1

[0037] 本実施例では、図2で表される発光素子の作製方法について説明する。本実施例では、正孔注入層の形成前に酸素を含む雰囲気曝露処理をして作製した発光装置について説明する。

[0038] 先ず、基板201上に、ITOをスパッタリング法により成膜し、第1の電極202を形成した。

[0039] 次に、 1×10^{-5} Paに保った真空中で、150度、30分間、ITOが成膜された基板201を熱処理した。

[0040] 次に、第1の電極202迄形成された基板201を、酸素を含む雰囲気曝露処理をした。具体的には、真空度を 1×10^{-5} Paに保った処理室内に25sccmの酸素を流し、1.0Pa、室温(20〜25度)に保った処理室内に5分間曝した。なお、当該処理は、

室温で行うため、熱によって有機化合物が分解してしまう恐れがない。

[0041] 次に、第1の電極202の上にCuPCを20nmの膜厚で成膜して正孔注入層203を形成し、さらに正孔注入層203の上に α -NPDを40nmの膜厚で成膜して正孔輸送層204を形成した。

[0042] 次に、正孔輸送層204の上にDNAを30nmの膜厚で成膜して発光層205を形成した。

[0043] 次に、発光層205の上にAlq₃を30nmの膜厚で成膜して電子輸送層206を形成した後、電子輸送層206の上にフッ化カルシウム(CaF₂)とアルミニウム(Al)をそれぞれ1nmと200nmの膜厚で形成して、二層の膜からなる第2の電極207を形成した。なお、CaF₂は電子注入を促す機能をもつ。

[0044] 以上のようにして作製した発光素子において、第1の電極202は陽極として、第2の電極207は陰極として、それぞれ機能する。第1の電極202と第2の電極207との間に電圧を印加して電流を流すことにより、発光層205で正孔と電子とが再結合し、発光する。

[0045] 図1(A)に、本実施例で作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した測定結果を示す。図1(A)において、横軸は経過時間(hour)、縦軸は発光輝度を表している。なお、発光輝度は初期輝度を100としたときの初期輝度に対する相対値で表している。また、比較例として、第1の電極202形成後の酸素を含む雰囲気曝す処理をせずに作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化の測定結果も図1中に示している(比較例1)。

[0046] なお、発光輝度の経時的な変化の測定は、一定の電流密度の電流を発光素子に流し続け、任意の時間ごとに、発光素子の輝度を測定する方法で行った。なお、電流密度は、初期輝度が200cdとなるときに用いた。

[0047] 図1(A)より、第1の電極202形成後に酸素を含む雰囲気曝す処理をした方が、発光輝度の経時的な低下が少なく、良好な特性を示していることが分かる。

[0048] また、図1(B)は、上記測定において、発光素子に一定の電流密度の電流を流すために印加する電圧の経時的な変化を示すものである。図1(B)において、横軸は経過時間(hour)、縦軸は電圧値を表している。比較例として、第1の電極202形成

後の酸素を含む雰囲気曝露処理をせず、その他の工程は本実施例に記載のとおりにより作製した発光素子に印加する電圧の経時的な変化の測定結果も図1(B)中に示している。

[0049] 図1(B)より、第1の電極202形成後に酸素を含む雰囲気曝露処理をした方が、発光素子に印加する電圧値の経時的な上昇が少ないことが分かる。つまり、第1の電極202形成後に酸素を含む雰囲気曝露処理をした発光素子の方が、発光素子の駆動電圧の上昇が抑制されていることが分かる。

[0050] 以上に示したように、本発明を適用して発光素子を作製することにより、一定の電流密度で発光素子に電流を流し、発光させ続けたときの、発光輝度の経時的低下が少なくなり、発光素子の長寿命化を図ることができる。また、一定の電流密度で発光素子に電流を流し、発光させ続けたときの、発光素子の駆動電圧の上昇が抑制され、発光素子の低消費電力化も図ることができる。

実施例 2

[0051] 本実施例では、実施例1で示したような図2で表される発光素子であり、正孔注入層を形成する物質が実施例1で用いたものと異なる発光素子について説明する。また、本実施例では、実施例1と同様に正孔注入層の形成前に酸素を含む雰囲気曝露処理をして発光素子を作製した。

[0052] 本実施例では、PEDOTとPSSとの混合物質をスピコート法によって形成したものを、正孔注入層203として用いた。なお、第1の電極202、正孔輸送層204、発光層205、電子輸送層206、第2の電極207に関しては物質、膜厚、形成方法ともに、実施例1に示したものと、同様である。

[0053] 先ず、基板201上に、ITOをスパッタリング法により成膜し、第1の電極202を形成した。

[0054] 次に、 1×10^{-5} Paに保った真空中で、150度、30分間、ITOが成膜された基板201を熱処理した。

[0055] 次に、第1の電極202迄形成された基板201を、酸素を含む雰囲気曝露処理をした。具体的には、真空度を 1×10^{-5} Paに保った処理室内に25sccmの酸素を流し、1.0Pa、室温(20〜25度)に保った処理室内に5分間曝した。

[0056] 次に、第1の電極202の上にPEDOTとPSSとの混合物質を成膜して正孔注入層203を形成し、さらに正孔注入層203の上に α -NPDを40nmの膜厚で成膜して正孔輸送層204を形成した。なお、本実施例では、PEDOTとPSSとの混合物質からなる膜の膜厚が異なる二種類の発光素子を作製した。PEDOTとPSSとの混合物質からなる膜の膜厚はそれぞれ30nm(実施例2-1)と90nm(実施例2-2)である。

[0057] 次に、正孔輸送層204の上にDNAを30nmの膜厚で成膜して発光層205を形成した。

[0058] 次に、発光層205の上に Alq_3 を30nmの膜厚で成膜して電子輸送層206を形成した後、電子輸送層206の上にフッ化カルシウム CaF_2 とアルミニウムAlをそれぞれ1nmと200nmの膜厚で形成して、二層の膜からなる第2の電極207を形成した。なお、 CaF_2 は電子注入を促す機能をもつ。

[0059] 以上のようにして作製した発光素子において、第1の電極202は陽極として、第2の電極207は陰極として、それぞれ機能する。第1の電極202と第2の電極207との間に電圧を印加して電流を流すことにより、発光層205で正孔と電子とが再結合し、発光する。

[0060] 図4に、本実施例で作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した測定結果を示す。図4において、横軸は経過時間(hour)、縦軸は発光輝度を表している。なお、発光輝度は初期輝度を100としたときの初期輝度に対する相対値で表している。また、比較例として、第1の電極202形成後の酸素を含む雰囲気曝露処理をせずに作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化の測定結果も図4中に示している。なお、実施例2-1に対応した比較例は比較例2-1であり、実施例2-2に対応した比較例は比較例2-2である。測定方法は、実施例1に記載の通りである。

[0061] 図4より、第1の電極202形成後に酸素を含む雰囲気曝露処理をした方が、発光輝度の経時的な低下が少なく、良好な特性を示していることが分かる。

実施例 3

[0062] 本実施例では、実施例1で示したような図2で表される発光素子であり、発光層に用いる物質が実施例1に示したものと異なる発光素子について説明する。

[0063] 本実施例では、DMQdをゲスト材料として Alq_3 と共蒸着したものを発光層205とし

て用いた。また、電子輸送層206は、実施例1と同様にAlq₃を蒸着法により成膜したものをういたが、本実施例では膜厚を37.5nmとした。なお、第1の電極202、正孔注入層203、正孔輸送層204、第2の電極207に関しては物質、膜厚、形成方法ともに、実施例1に示したものと、同様である。

- [0064] また、本実施例では、物質、膜厚、形成方法が同じで、酸素を含む雰囲気曝す処理を行う工程部位が異なる三つの発光素子を作製した。三つの発光素子は、それぞれ第1の基板201a、第2の基板201b、第3の基板201c上に形成されるものとする。なお、第1〜第3の基板は、同一の材質のものを用いた。なお、下記に示すそれぞれの工程は、特に明記しない限り、いずれの基板に対してもおこなうものとする。
- [0065] 先ず、第1〜第3の基板201(201a、201b、201c)上に、ITOをスパッタリング法により成膜し、第1の電極202をそれぞれの基板上に形成した。
- [0066] 次に、 1×10^{-5} Paに保った真空中で、150度、30分間、ITOが成膜された基板201(201a、201b、201c)を熱処理した。
- [0067] 次に、第1の電極202迄形成された第1の基板201aを、酸素を含む雰囲気曝す処理をした(実施例3-1)。具体的には、真空度を 1×10^{-5} Paに保った処理室内に25sccmの酸素を流し、1.0Pa、室温(20〜25度)に保った処理室内に5分間曝した。
- [0068] 次に、第1の電極202の上にCuPCを20nmの膜厚で成膜して正孔注入層203を形成した。
- [0069] 次に、正孔注入層203迄形成された第2の基板201bを、酸素を含む雰囲気曝す処理をした(実施例3-2)。具体的には、真空度を 1×10^{-5} Paに保った処理室内に25sccmの酸素を流し、1.0Pa、室温(20〜25度)に保った処理室内に5分間曝した。
- [0070] 次に、正孔注入層203の上に α -NPDを40nmの膜厚で成膜して正孔輸送層204を形成した。
- [0071] 次に、正孔輸送層204の上にDMQdとAlq₃とを共蒸着して37.5nmの膜厚で成膜し、発光層205を形成した。なお、DMQdは緑色発光をするゲスト材料として用いている。

- [0072] 次に、発光層205の上にAlq₃を37.5nmの膜厚で成膜して電子輸送層206を形成した。
- [0073] 次に、電子輸送層206迄形成された第3の基板201cを、酸素を含む雰囲気曝す処理をした(実施例3-2)。具体的には、真空度を 1×10^{-5} Paに保った処理室内に25sccmの酸素を流し、1.0Pa、室温(20~25度)に保った処理室内に5分間曝した。
- [0074] 電子輸送層206の上にフッ化カルシウムCaF₂とアルミニウムAlをそれぞれ1nmと200nmの膜厚で形成して、二層の膜からなる第2の電極207を形成した。なお、CaF₂は電子注入を促す機能をもつ。
- [0075] 以上のようにして作製した発光素子において、第1の電極202は陽極として、第2の電極207は陰極として、それぞれ機能する。第1の電極202と第2の電極207との間に電圧を印加して電流を流すことにより、発光層205で正孔と電子とが再結合し、発光する。
- [0076] 図5に、本実施例で作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化について測定した測定結果を示す。図5において、横軸は経過時間(hour)、縦軸は発光輝度を表している。なお、発光輝度は初期輝度を100としたときの初期輝度に対する相対値で表している。また、比較例として、第1の電極202形成後の酸素を含む雰囲気曝す処理をせずに作製した発光素子の発光輝度の経時的な変化の測定結果も図5中に示している(比較例3)。測定方法は、実施例1に記載の通りである。
- [0077] 図5より、第1の電極202形成後に酸素を含む雰囲気曝す処理をした方が、発光輝度の経時的な低下が少なく、良好な特性を示していることが分かる。

実施例 4

- [0078] 本実施例では、画素部に本発明の発光素子を有する発光装置について図6を用いて説明する。なお、図6(A)は、発光装置を示す上面図、図6(B)は図6(A)をA-A'で切断した断面図である。点線で示された401は駆動回路部(ソース側駆動回路)、402は画素部、403は駆動回路部(ゲート側駆動回路)である。また、404は封止基板、405はシール剤であり、シール剤405で囲まれた内側は、空間407になっている。

- [0079] なお、408はソース側駆動回路401及びゲート側駆動回路403に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)409からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤(PWB)が取り付けられていてもよい。本実施例における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。
- [0080] 次に、断面構造について図6(B)を用いて説明する。基板410上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路401と、画素部402が示されている。
- [0081] なお、ソース側駆動回路401はnチャンネル型TFT423とpチャンネル型TFT424とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。
- [0082] また、画素部402はスイッチング用TFT411と、電流制御用TFT412とそのドレインに電氣的に接続された第1の電極413とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極413の端部を覆って絶縁物414が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。
- [0083] また、カバレッジを良好なものとするため、絶縁物414の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物414の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物414の上端部のみに曲率半径(0.2 μ m \sim 3 μ m)を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物414として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。
- [0084] 第1の電極413上には、発光物質を含む層416、および第2の電極417がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極413に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO(インジウムスズ酸化物)膜、インジウム亜鉛酸化物(IZO)膜、窒化チタン膜、クロム膜、タングステン膜、Z

n膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタンとアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

[0085] また、発光物質を含む層416は、蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法によって形成される。発光物質を含む層416に、用いることのできる材料としては、低分子系材料であっても高分子系材料であってもよい。また、発光物質を含む層416に用いる材料としては、通常、有機化合物を単層もしくは積層で用いる場合が多いが、本実施例においては、有機化合物からなる膜の一部に無機化合物を用いる構成も含めることとする。なお、発光物質を含む層416を形成するときは、当該発光物質を含む層416を構成する有機化合物層の形成前または形成後に、酸素を含む雰囲気中に曝す処理がされている。

[0086] なお、複数の色からなる表示画像を得たい場合には、マスクや隔壁層などを利用して、発光物質を含む層を、発光色の異なるものごとにそれぞれ分離して形成すればよい。この場合、各発光色を呈する発光物質を含む層ごとに、異なる積層構造を有しても構わない。

[0087] さらに、発光物質を含む層416上に形成される第2の電極(陰極)417に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料(Al、Ag、Li、Ca、またはこれらの合金MgAg、MgIn、Al-Li、 CaF_2 、またはCaN)を用いればよい。なお、発光物質を含む層416で生じた光が第2の電極417を透過させる場合には、第2の電極(陰極)417として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜(ITO(インジウム錫酸化物)、酸化インジウム酸化亜鉛合金(In_2O_3 -ZnO)、酸化亜鉛(ZnO)等)との積層を用いるのがよい。

[0088] さらにシール剤405で封止基板404を素子基板410と貼り合わせることで、素子基板410、封止基板404、およびシール剤405で囲まれた空間407に発光素子418が備えられた構造になっている。なお、空間407には、不活性気体(窒素やアルゴン等)が充填される場合の他、シール剤405で充填される構成も含むものとする。

[0089] なお、シール剤405にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板

404に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP (Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF (ポリビニルフルオライド)、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

[0090] 以上のようにして、本発明を適用して作製した発光素子を有する発光装置を得ることができる。

実施例 5

[0091] 本実施例では、本発明を適用した電子機器について、図7を用いて説明する。本発明を適用することにより、発光素子が長寿命化するため、例えば下記に示すような電子機器において、表示機能の長寿命化が図れる。また、発光素子の駆動電圧の経時的な上昇が抑制されるため、低消費電力化が図れる。

[0092] 図7(A)は表示装置であり、筐体5501、支持台5502、表示部5503を含む。実施例4に示した発光装置を表示装置に組み込むことで表示装置を完成できる。

[0093] 図7(B)はビデオカメラであり、本体5511、表示部5512、音声入力5513、操作スイッチ5514、バッテリー5515、受像部5516などによって構成されている。実施例4に示した発光装置をビデオカメラに組み込むことで表示装置を完成できる。

[0094] 図7(C)は、本発明を適用して作製したノート型のパーソナルコンピュータであり、本体5521、筐体5522、表示部5523、キーボード5524などによって構成されている。実施例4に示した発光装置をパーソナルコンピュータに組み込むことで表示装置を完成できる。

[0095] 図7(D)は、本発明を適用して作製した携帯情報端末(PDA)であり、本体5531には表示部5533と、外部インターフェイス5535と、操作ボタン5534等が設けられている。また操作用の付属品としてスタイラス5532がある。実施例4に示した発光装置を携帯情報端末(PDA)に組み込むことで表示装置を完成できる。

[0096] 図7(E)はデジタルカメラであり、本体5551、表示部(A)5552、接眼部5553、操作スイッチ5554、表示部(B)5555、バッテリー5556などによって構成されている。実施例4に示した発光装置をデジタルビデオカメラに組み込むことで表示装置を完成できる。

[0097] 図7(F)は、本発明を適用して作製した携帯電話である。本体5561には表示部55

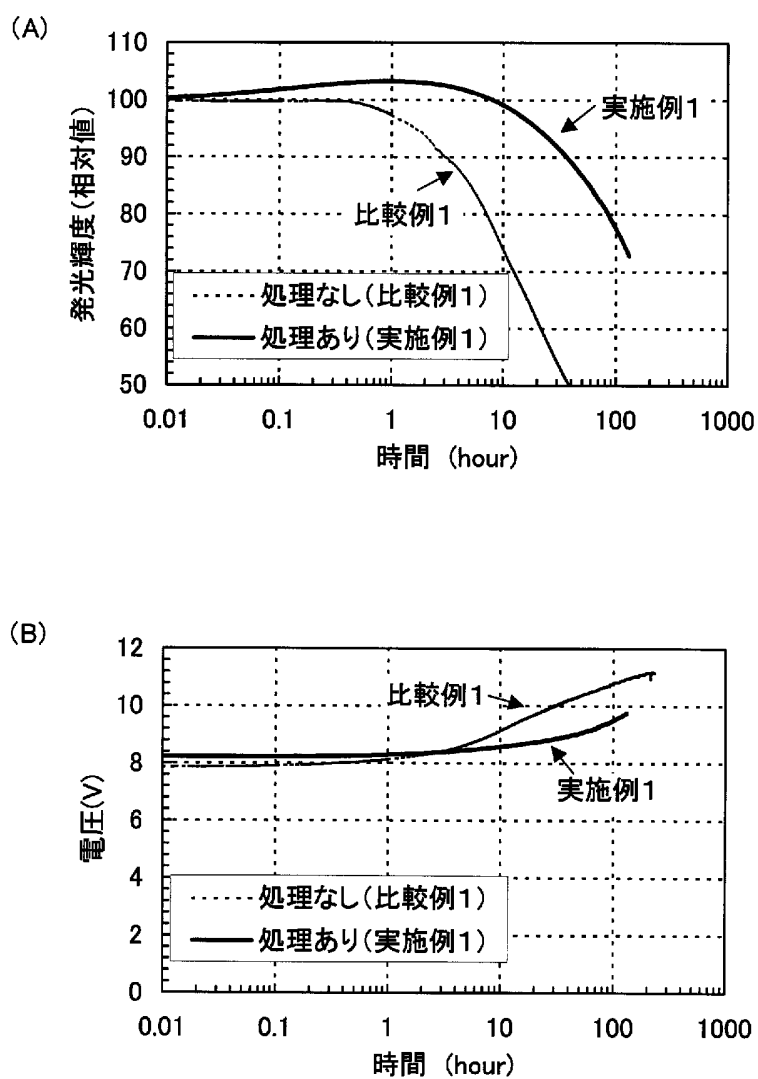
64と、音声出力部5562操作スイッチ5565、アンテナ5566等が設けられている。実施例4に示した発光装置を携帯電話に組み込むことで表示装置を完成できる。

請求の範囲

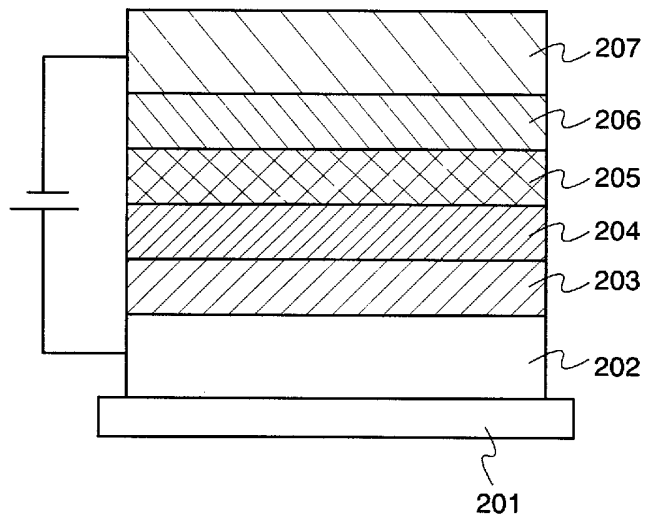
- [1] 電極の上に、有機化合物から成る層を、少なくとも二層、形成する工程を有し、前記工程において、少なくとも一の層の形成後または形成前に、電子受容性ガスを含む雰囲気曝す処理をすることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [2] 請求項1に記載の発光素子の作製方法において、前記電子受容性ガスを含む雰囲気曝す処理は、室温で行うことを特徴とする発光素子の作製方法。
- [3] 電極の上に、有機化合物から成る層を、少なくとも二層、形成する工程を有し、前記工程において、少なくとも一の層の形成後または形成前に、酸素を含む雰囲気曝す処理をすることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [4] 請求項3に記載の発光素子の作製方法において、前記酸素を含む雰囲気曝す処理は、室温で行うことを特徴とする発光素子の作製方法。
- [5] 陽極を形成する第1の工程と、前記陽極の上に、正孔注入層を形成する第2の工程と、を有し、前記第2の工程において、前記正孔注入層の形成前または形成後に、酸素を含む雰囲気曝す処理をすることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [6] 請求項5に記載の発光素子の作製方法において、前記正孔注入層は、銅フタロシアンニンまたはポリエチレンジオキシチオフェンであることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [7] 陽極を形成する第1の工程と、前記陽極の上に、正孔注入層を形成する第2の工程と、前記正孔注入層の上に、発光層を形成する第3の工程と、を有し、前記第2の工程において、前記正孔注入層の形成前または形成後に、酸素を含む雰囲気曝す処理をすることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [8] 請求項7に記載の発光素子の作製方法において、前記正孔注入層は、銅フタロシアンニンまたはポリエチレンジオキシチオフェンを含む層であることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [9] 請求項7または請求項8に記載の発光素子の作製方法において、前記発光層は、9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセンを含む層、またはN, N'-ジメチルキナクリドンとトリス(8-キノリノラト)アルミニウムとを含む層であることを特徴とする発光素子の作製方法。

- [10] 発光層の上に、電子輸送層を形成する工程を有し、前記工程において、前記電子輸送層を、酸素を含む雰囲気曝す処理をする工程を含むことを特徴とする発光素子の作製方法。
- [11] 請求項10に記載の発光素子の作製方法において、前記電子輸送層は、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを含む層であることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [12] 請求項10または請求項11に記載の発光素子の作製方法において、前記発光層は、N, N'-ジメチルキナクリドンとトリス(8-キノリノラト)アルミニウムとを含む層であることを特徴とする発光素子の作製方法。
- [13] 請求項5乃至請求項12のいずれか一に記載の発光素子の作製方法において、前記酸素を含む雰囲気曝す処理は室温で行うことを特徴とする発光素子の作製方法。
- [14] 請求項5乃至請求項12のいずれか一に記載の発光素子を画素部に用いていることを特徴とする発光装置。
- [15] 請求項14に記載の発光装置を表示部に用いていることを特徴とする電子機器。

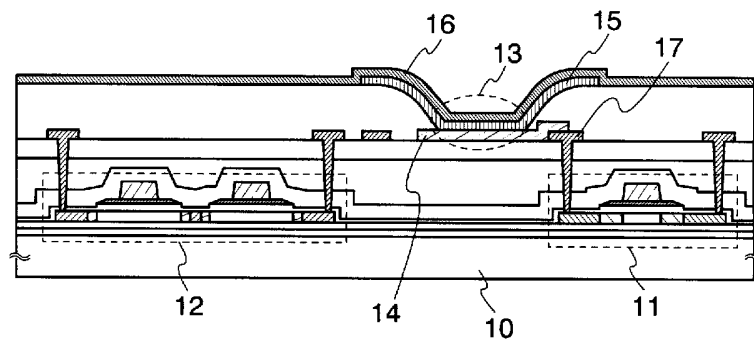
[図1]



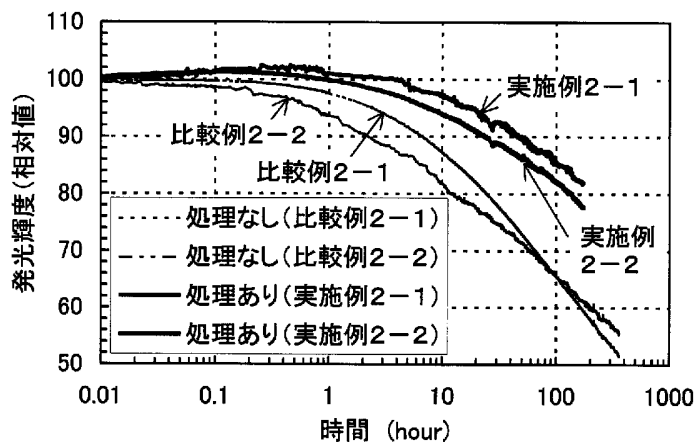
[図2]



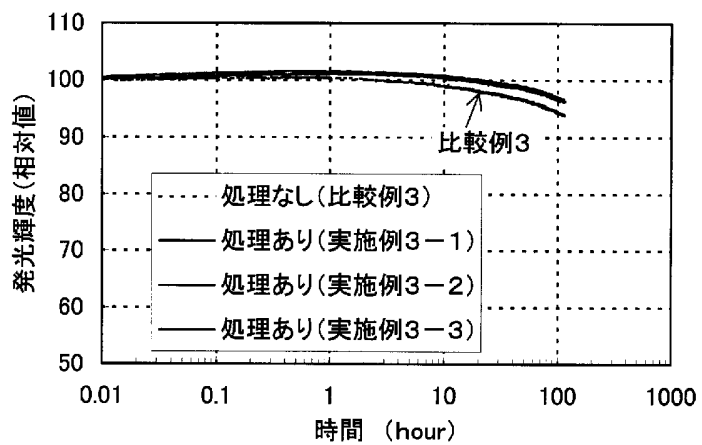
[図3]



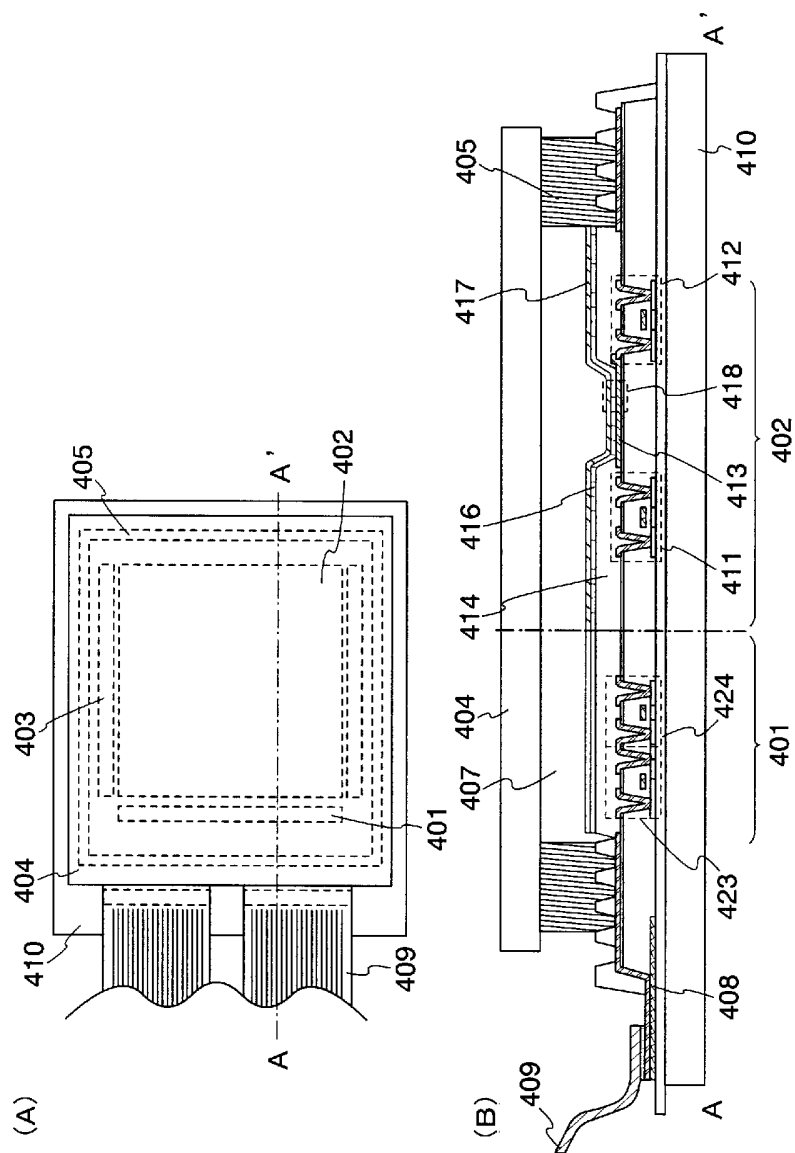
[図4]



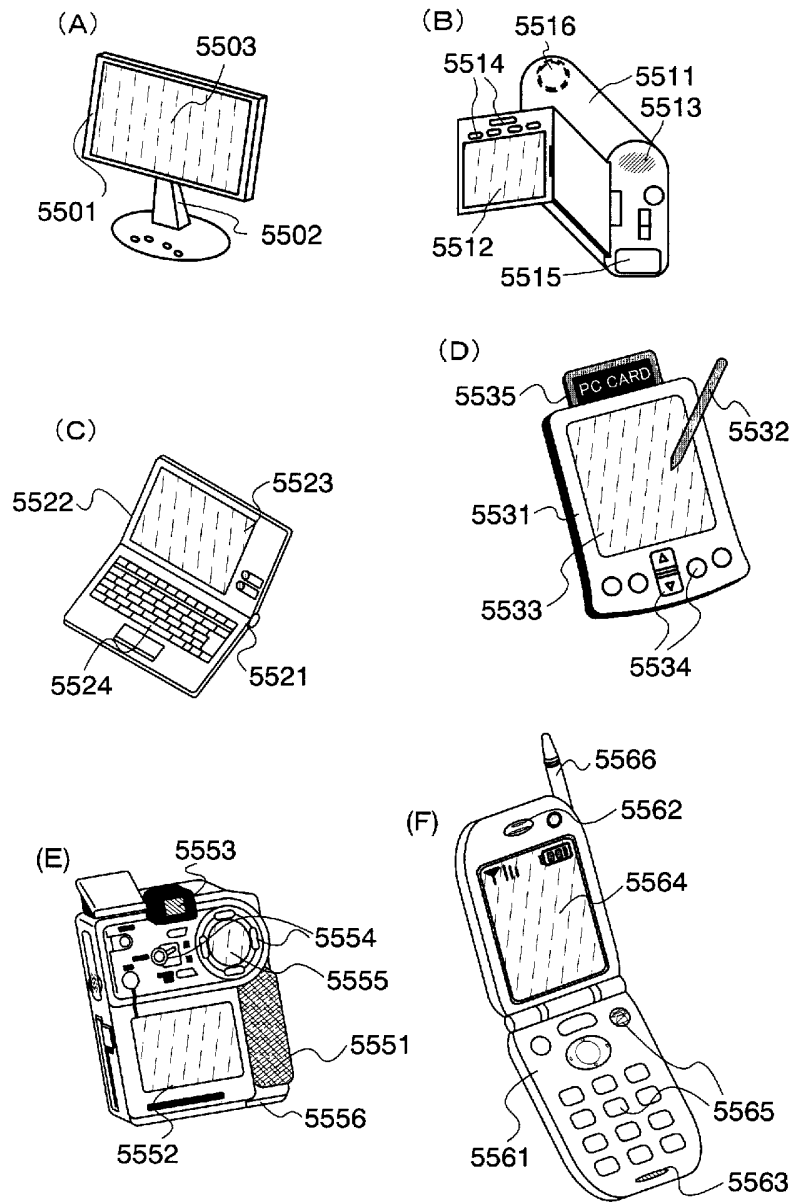
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/010187

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H05B33/10, H05B33/14

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)

Int.Cl⁷ H05B33/00-33/28

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	1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004

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 2001-284059 A (Honda Motor Co., Ltd.), 12 October, 2001 (12.10.01), Full text; all drawings (Family: none)	1-8, 13-15 9
Y	JP 2003-109770 A (Eastman Kodak Co.), 11 April, 2003 (11.04.03), Par. No. [0022] & EP 1296386 A2 & CN 1409413 A & KR 2003025208 A & US 2003/0129447 A1 & TW 554640 A	9, 12
Y	JP 10-255985 A (Xerox Corp.), 25 September, 1998 (25.09.98), Par. No. [0043] & US 5989737 A	9, 12

 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
23 August, 2004 (23.08.04)Date of mailing of the international search report
07 September, 2004 (07.09.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/010187

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2000-12237 A (NEC Corp.), 14 January, 2000 (14.01.00), Full text; all drawings & KR 2000006418 A	1-9, 13-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/010187

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: 10-12
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
While a method of producing a light emitting element in the inventions in claims 10-12 comprises the step of exposing an electron transportation layer to an oxygen-containing atmosphere, both embodiment 3 and comparative example 3 expose an electron transportation layer (continued to extra sheet.)
3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/010187

Continuation of Box No.II-2 of continuation of first sheet(2)

to an oxygen-containing atmosphere. What effect, in comparison to a conventional element, is given by exposing an electron transportation layer to oxygen cannot be understood even by the technical common sense of a person skilled in the art, and hence the inventions in the claims are not supported within the meaning of PCT Rule 6.

The inventions in claims 1-9, 13-15 in this application is characterized by exposing, to an electron accepting gas-containing atmosphere, each organic EL element-constituting organic layer before or after it is formed.

On the other hand, the description in this application discloses oxygen only as the above "electron accepting gas", and what else gas can be specifically used in the embodiments of the inventions in this application is not specified and why the electron accepting gas is suitable is not explained.

In addition, in embodiments 1, 2 in the description of this application, an exposure to oxygen is made after an electrode (anode) is formed and before a hole transportation layer is formed. Since, in embodiment 3, an oxygen treatment is made after a hole transportation layer is formed or after an electron transportation layer is formed, and, in comparative example 3, it is very likely that, although not specified, an oxygen treatment is made also after a hole transportation layer is formed or after an electron transportation layer is formed, it is impossible to confirm what excellent effect, in comparison to a conventional organic EL element production method, is given by an oxygen treatment after a hole transportation layer is formed or after an electron transportation layer is formed. Moreover, this application does not specify what technical action is effected by an oxygen treatment.

Therefore, the inventions in the claims of this application are supported by the description only in terms of a method of producing a light emitting element comprising the step of "making an exposure to an oxygen-containing atmosphere after an electrode (anode) is formed but before other layers are formed", and no other matters are supported by the description.

Accordingly, our search in this application (the inventions in claims 1-9, 13-15) is restricted to a case when "an electron accepting gas" is "oxygen", and "a case when a treatment of exposing an electrode (anode) to oxygen gas is carried out".

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ H05B33/10, H05B33/14		
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 ⁷ H05B33/00-33/28		
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 1971-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004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 請求の範囲の番号
X	JP 2001-284059 A (本田技研工業株式会社)	1-8, 13-15
Y	2001. 10. 12、全文、全図面 (ファミリー無し)	9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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 「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 「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 「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) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「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 「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 「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 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	23. 08. 2004	国際調査報告の発送日
		07.09.04
国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官 (権限のある職員)	2V 3208
日本国特許庁 (ISA/JP)	山村 浩	
郵便番号100-8915	電話番号 03-3581-1101	内線 3271
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		

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 請求の範囲の番号
Y	JP 2003-109770 A (イーストマン コダック カンパニー) 2003. 04. 11, 【0022】 &EP 1296386 A2 &CN 1409413 A &KR 2003025208 A &US 2003/0129447 A1 &TW 554640 A	9,12
Y	JP 10-255985 A (ゼロックス コーポレイション) 1998. 09. 25, 【0043】, &US 5989737 A	9,12
A	JP 2000-12237 A (日本電気株式会社) 2000. 01. 14 , 全文、全図面 &KR 2000006418 A	1-9,13-15

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 10-12 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
請求の範囲 10-12に係る発明における発光素子の作製方法では、電子輸送層を酸素を含む雰囲気曝す処理をする工程を含むが、実施例3及び比較例3ではどちらも電子輸送層を酸素を含む雰囲気曝しているため、電子輸送層を酸素に曝す処理をすることにより、従来の素子に比べてどのような効果があるのか、当業者の技術常識を参照しても理解できず、当該請求の範囲の発明はPCT規則6条の意味での裏付けを欠いている。
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

本願の請求の範囲1-9, 13-15に係る発明においては、有機EL素子を構成する各有機層の形成後又は形成前に、電子受容性ガスを含む雰囲気曝す処理をすることを特徴とする。

一方、本願の明細書中には、上記「電子受容性ガス」として酸素のみが開示されており、他にどのようなガスが具体的に本願の発明の実施にあたり採用可能であるのか、明記がなく、なぜ電子受容性ガスが好適なのかについても説明がない。

また、本願の明細書中の各実施例において、実施例1, 2は、電極（陽極）を形成後、正孔輸送層を形成前に酸素に曝すことを行っているものである。実施例3においては、正孔輸送層の形成後、あるいは電子輸送層の形成後に酸素処理を行っているが、比較例3も明記はないが正孔輸送層の形成後、あるいは電子輸送層の形成後に酸素処理を行っている蓋然性が高いので正孔輸送層の形成後、あるいは電子輸送層の形成後に酸素処理を行うことにより、従来の有機EL素子の製造方法と比べてどのような優れた効果があるのか、確認することはできない。そして、酸素処理によってどのような技術的な作用があるのかについても本願には明記が無い。

したがって、本願の前記請求の範囲に係る発明で明細書中に裏付けられていると認められるのは、「電極（陽極）を形成後、他の層の形成前に酸素を含む雰囲気曝す」処理をする工程を有する発光素子の作製方法のみであり、それ以外については明細書によって裏付けられていない。

よって、本願のサーチは、本願の請求の範囲1-9, 13-15に係る発明において、「電子受容性ガス」が「酸素」である場合、および、「電極（陽極）を酸素ガスに曝す処理をする場合」に限定して行った。