

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2015-69713

(P2015-69713A)

(43) 公開日 平成27年4月13日(2015.4.13)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H05B 33/12 (2006.01)</b>	H05B 33/12 C	3K107
<b>H01L 51/50 (2006.01)</b>	H05B 33/14 A	
<b>H05B 33/10 (2006.01)</b>	H05B 33/10	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願2013-200245 (P2013-200245)  
 (22) 出願日 平成25年9月26日 (2013.9.26)

(71) 出願人 000003193  
 凸版印刷株式会社  
 東京都台東区台東1丁目5番1号  
 (74) 代理人 100105854  
 弁理士 廣瀬 一  
 (74) 代理人 100116012  
 弁理士 宮坂 徹  
 (72) 発明者 安 祐樹  
 東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内  
 Fターム(参考) 3K107 AA01 BB02 CC07 CC09 CC45  
 EE06 EE07 FF15 GG02 GG06  
 GG28

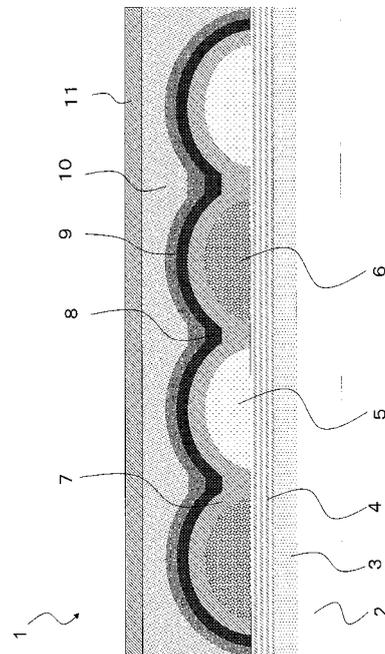
(54) 【発明の名称】 有機EL発光装置およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】ストライプ構造やアイランド構造の塗液位置精度を緩和し、コストを抑え、歩留まり良く、柔軟に色温度を調整することが可能な有機EL発光装置及びその製造方法を提供する。

【解決手段】一様な透明電極を含む、ベタ状の正孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも2種類の発光材料を湿式法にて塗り分け成膜し、前記発光材料の間及び上層に、前記発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも1種類の発光材料をドライ成膜法によって成膜されてなることを特徴とする有機EL発光装置。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

透明電極と、その透明電極上に形成されたベタ状の正孔輸送層と、  
前記正孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 2 種類の発光材料を湿式法にて塗り分け成膜されて、当該正孔輸送層の面に沿って配列した複数個の発光層と、  
前記複数個の発光層の間及び当該複数個の発光層の上層に、前記複数個の発光層の発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 1 種類の発光材料をドライ成膜法によって成膜されてなる第 2 の発光層と、を備え、  
前記複数個の発光層の成膜面積によって目的とする色温度に調整したことを特徴とする有機 EL 発光装置。

10

## 【請求項 2】

前記複数個の発光層の配列パターンは、ストライプ状またはアイランド状であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機 EL 発光装置。

## 【請求項 3】

前記複数個の発光層を構成する少なくとも 2 種類の発光材料のうちの一つは、赤色発光材料であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の有機 EL 発光装置。

## 【請求項 4】

前記複数個の発光層を構成する少なくとも 2 種類の発光材料のうちの一つは緑色発光材料であることを特徴とする請求項 1 ~ 請求項 3 のいずれか 1 項に記載の有機 EL 発光装置。

20

## 【請求項 5】

前記第 2 の発光層を構成する少なくとも 1 種類の発光材料のうちの一つは青色発光材料であることを特徴とする請求項 1 ~ 請求項 4 のいずれか 1 項に記載の有機 EL 発光装置。

## 【請求項 6】

透明電極上に形成されたベタ状の孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 2 種類の発光材料を湿式法にて塗り分け成膜して、配列する複数個の発光層を形成する工程と、

前記複数個の発光層の間及び該複数個の発光層の上層に、前記発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 1 種類の発光材料を蒸着法によって成膜して第 2 の発光層を形成する工程と、を含み、

30

前記複数個の発光層の成膜面積を変更することによって、目的の色温度に調整することを特徴とする有機 EL 発光装置の製造方法。

## 【請求項 7】

前記複数個の発光層は、ストライプ状またはアイランド状に形成されることで配列することを特徴とする請求項 6 に記載の有機 EL 発光装置の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、照明等に用いる発光装置に関するものであり、特に有機 EL 発光装置とその製造方法に関する。

40

## 【背景技術】

## 【0002】

有機 EL 発光装置は導電性の発光媒体層に電圧を印加することにより、発光媒体層中の有機発光層において、注入された電子と正孔とが再結合する。有機発光層中の有機発光分子は、再結合エネルギーによりいったん励起状態となり、その後、励起状態から基底状態に戻る。この際に放出されるエネルギーを光として取り出すことにより有機 EL 発光装置は発光する。

## 【0003】

有機発光層に電圧を印加するために前記発光媒体層の両側には電極が設けられており、

50

有機発光層からの光を外部へ取り出すために少なくとも一方の電極は透光性を有する。このような有機EL発光装置の構造の一例としては、透光性基板上に、透光性電極、発光媒体層（発光層）、対向電極を順次積層したものが挙げられる。ここで、基板上に形成される電極を陽極に、発光媒体層上に形成される対向電極を陰極として利用する態様が挙げられる。

#### 【0004】

さらに発光効率を増大させる等の目的から、陽極と有機発光層との間に設けられる正孔輸送層、正孔注入層に加え、有機発光層と陰極との間に電子輸送層、電子注入層が適宜選択して設けられ、有機EL発光装置として構成されることが多い。これら正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層はキャリア輸送層と呼ばれている。これらキャリア輸送層と有機発光層、さらには正孔ブロック層や電子ブロック層等を合わせて発光媒体層と呼ぶ。

10

#### 【0005】

近年、低分子系または、高分子系材料を溶媒に溶解または分散させ、塗布法や印刷法といった湿式法により発光層を成膜する研究が盛んに行われている。これら湿式法は、真空蒸着法などのドライ成膜法を用いた有機EL発光装置と比較して、大気圧下での成膜が可能であり、設備コストが安いといった利点がある。また、真空蒸着法は、湿式法と比較し、有機材料を溶媒に溶解させる必要がないため、材料の選択幅が広いこと、成膜後に溶媒を除去する工程が不要であるといった利点がある。

#### 【0006】

これら発光層を形成するための発光材料は一般に、溶媒に溶解しやすい材料によって形成されている。これにより、大気圧下におけるスピンコート法などのウェットコーティング法や、凸版印刷法や凸版反転オフセット印刷法（例えば、特許文献1、2参照）、インクジェット法（例えば、特許文献3～4参照）、ノズルプリント法（例えば、特許文献5参照）などの印刷法を用いて各層を形成することができ、製造設備のコストの削減や生産性の向上が図れる。また、湿式法で形成された赤色発光層、緑色発光層の上部に、湿式法では特性が不十分な青色発光層以降を共通層として真空蒸着法で形成した表示装置が開示されている（例えば、特許文献6参照）。

20

#### 【0007】

有機EL発光装置を作製する場合、白色発光を得るため、異なる発光ピーク波長を持つ複数の発光材料を組み合わせる必要がある。組み合わせの方法としては、混合層の形成や積層構造、ストライプ構造等がある。ドライ成膜法を用いる場合、積層構造が選択され、湿式法を用いる場合、混合層やストライプ構造が主に選択される。混合層の場合、発光材料同士の相性が重要になってくるため、組み合わせは限定的になるが、ストライプ構造の場合、組み合わせる材料は特に制限がない。また、異なる発光ピーク波長を持つ複数の発光領域の面積を調整するだけで白色発光の色温度を調整できるといった利点もある。

30

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0008】

【特許文献1】特開2003-17248号公報

【特許文献2】特開2004-296226号公報

【特許文献3】特許第3541625号公報

【特許文献4】特開2009-267299号公報

【特許文献5】特開2001-189192号公報

【特許文献6】特開2006-140434号公報

#### 【発明の概要】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0009】

例えばストライプ構造の場合、発光材料を各領域に均一に配して均一に発光させるため、また、各領域間の生じるブランク領域への電界集中によるショートを防ぐために、予め

40

50

発光領域を区画する隔壁を設ける手法が一般的に用いられている。しかし、隔壁を設けることで開口率の低下やコストアップ等の問題が発生してしまう。

そこで、本発明は、上記のような点に着目してなされたものであり、ストライプ構造やアイランド構造の塗膜形成のための塗布位置精度を緩和し、コストを抑え、歩留まり良く、柔軟に色温度を調整することが可能な有機EL発光装置及びその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

上記課題を解決するために、本発明の第1態様の有機EL発光装置は、透明電極と、その透明電極上に形成されたベタ状の正孔輸送層と、

前記正孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも2種類の発光材料を湿式法にて塗り分け成膜されて、当該正孔輸送層の面に沿って配列した複数個の発光層と、

前記複数個の発光層の間及び当該複数個の発光層の上層に、前記複数個の発光層の発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも1種類の発光材料をドライ成膜法によって成膜されてなる第2の発光層と、を備え、

前記複数個の発光層の成膜面積によって目的とする色温度に調整されることを特徴とする。

【0011】

本発明の第2態様の有機EL発光装置は、前記複数個の発光層の配列パターンは、ストライプ状またはアイランド状であることを特徴とする。

本発明の第3態様の有機EL発光装置は、前記複数個の発光層を構成する少なくとも2種類の発光材料のうちの一つは、赤色発光材料であることを特徴とする。

本発明の第4態様の有機EL発光装置は、前記複数個の発光層を構成する少なくとも2種類の発光材料のうちの一つは緑色発光材料であることを特徴とする。

【0012】

本発明の第5態様の有機EL発光装置は、前記第2の発光層を構成する少なくとも1種類の発光材料のうちの一つは青色発光材料であることを特徴とする。

本発明の第6態様の有機EL発光装置の製造方法は、透明電極上に形成されたベタ状の正孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも2種類の発光材料を湿式法にて塗り分け成膜して、配列する複数個の発光層を形成する工程と、

【0013】

前記複数個の発光層の間及び当該複数個の発光層の上層に、前記発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも1種類の発光材料を蒸着法によって成膜して第2の発光層を形成する工程と、を含み、

前記複数個の発光層の成膜面積を変更することによって、目的の色温度に調整することを特徴とする。

本発明の第7態様の有機EL発光装置の製造方法は、前記複数個の発光層は、ストライプ状またはアイランド状に形成されることで配列することを特徴とする。

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、透明電極上に形成したベタ状の正孔輸送層上に、2種類以上の発光材料を塗り分けることで複数個の発光層を配列させる。そして、その配列する複数個の発光層における塗液面積と、その複数個の発光層の隙間及び上層を満たすように第2の発光層をドライ成膜する。これによって、ストライプ構造やアイランド構造などの配列にする複数個の発光層の塗布位置精度を緩和することができ、また、複数個の発光層間に隔壁を用いる必要がないので、コストを抑えることができると共に歩留まり良く、また柔軟に色温度を調整することが可能な有機EL発光装置及びその製造方法を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】本発明の実施形態に係る有機EL発光装置の構成の一例を模式的に示す断面図で

10

20

30

40

50

ある。

【図 2】凸版印刷装置の一例を模式的に示す概略断面図である。

【図 3】本発明の実施形態に関わる、ストライプ発光パターンングの一例を説明する図である。

【図 4】本発明の実施形態に関わる、アイランド発光パターンングの一例を説明する図である。

【図 5】本発明の実施形態に関わる、アイランド発光パターンングの一例を説明する図である。

【発明を実施するための形態】

【0016】

次に、本発明の実施形態について図面を参照して説明する。

本発明の実施形態は、一様な透明電極を含むベタ状の正孔輸送層上に、異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 2 種類の発光材料を湿式法にて塗り分けて成膜し、前記成膜した発光材料の間及び上層に、前記発光材料と異なる発光ピーク波長を持つ少なくとも 1 種類の発光材料をドライ成膜法によって成膜されてなるものである。

【0017】

図 1 は本実施形態に係る有機 EL 発光装置の構成を模式的に示すものである。

本実施形態に係る有機 EL 発光装置 1 は、図 1 に示すように、透光性基板 2、透光性基板 2 の一方の面上に形成された陽極 3、陽極 3 上に積層された正孔輸送層 4、正孔輸送層 4 上に積層された発光層 5 および発光層 6、そして、発光層 5 および発光層 6 と正孔輸送層 4 との上に積層された発光層 7、発光層 7 上に積層された電子輸送層 8、電子輸送層 8 上に積層されて陽極 3 と対向配置された陰極 9、陰極 9 を覆うように封入された樹脂層 10、さらに樹脂層 10 を覆うように配置された封止基板 11、を備えている。

【0018】

透光性基板 2 は、陽極 3 や有機発光層、陰極 9 を支持する基板であって、金属、ガラス、又はプラスチックなどのフィルムまたはシートによって構成されている。

プラスチック製のフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレートやポリプロピレン、シクロオレフィンポリマー、ポリアミド、ポリエーテルサルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネートを用いることができる。

【0019】

なお、透光性基板 2 の両面のうち、陽極 3 が形成されない側の面に対し、セラミック蒸着フィルムやポリ塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニル、エチレン - 酢酸ビニル共重合体醜化物などの他のガスバリア性フィルムを積層してもよい。

陽極 3 は、基板（透光性基板 2）上に陽極 3 の材料からなる層を成膜し、作製する。陽極 3 の材料としては、ITO（インジウムスズ複合酸化物）やインジウム亜鉛複合酸化物、亜鉛アルミニウム複合酸化物などの金属複合酸化物や、金、白金などの金属材料や、これら金属酸化物や金属材料の微粒子をエポキシ樹脂やアクリル樹脂などに分散した微粒子分散膜を、単層もしくは積層したものをいずれも使用することができる。

【0020】

また、導電性を示す高分子化合物を用いてもよく、該高分子化合物は、ドーパントを含含有していてもよい。高分子化合物の導電性は通常、導電率で  $10^{-5} \text{ S/cm}$  以上  $10^5 \text{ S/cm}$  以下であり、好ましくは  $10^{-3} \text{ S/cm}$  以上  $10^5 \text{ S/cm}$  以下である。

陽極 3 には ITO など仕事関数の高い材料を選択することが好ましい。必要に応じて、陽極の配線抵抗を低くするために、一様な網目状、楕形あるいはグリッド型等の金属および/または合金の細線構造部を配置した導電性面を作製し、その上に陽極を形成してもよい。

【0021】

導電性を示す高分子化合物の構成材料としては、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、等を挙げることができる。ドーパントとしては、公知のドーパントを用いることができ、その例としては、ポリスチレンスルホン酸、ドデシルベンゼン

10

20

30

40

50

スルホン酸等の有機スルホン酸、 $PF_5$ 、 $AsF_5$ 、 $SbF_5$ 等のルイス酸が挙げられる。また導電性を示す高分子化合物は、ドーパントが高分子化合物に直接結合した自己ドーパ型の高分子化合物であってもよい。陽極3の膜厚は、有機EL照明の素子構成により最適値が異なるが、単層、積層にかかわらず、100以上10000以下であり、より好ましくは、100以上3000以下である。

#### 【0022】

陽極3の形成方法としては、材料に応じて、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法などの乾式成膜法や、グラビア印刷法、スクリーン印刷法などの湿式成膜法などを用いることができる。

次に、本実施形態の有機機能性薄膜としての有機発光媒体層を形成する。

本実施形態における有機発光媒体層としては、少なくとも陽極3の上面に形成された正孔輸送層4と、正孔輸送層4上に積層されたそれぞれ異なる発光ピーク波長を持つ発光層5と発光層6、そして、発光層5と発光層6と正孔輸送層4上に積層された発光層5と発光層6とは異なる発光ピーク波長をもつ発光層7と、発光層7上に積層した電子輸送層8とを積層した構成を備える。ここで、発光層5と発光層6は複数個の発光層を構成し、発光層7は第2の発光層を構成する。

#### 【0023】

正孔輸送層4は、陽極である陽極3から注入された正孔を陰極である陰極9の方向へ進め、正孔を通しながらも電子が陽極3の方向へ進行することを防止する機能を有している。電界印加時に陽極3からの正孔の注入を安定化する機能、及び、陽極3から注入された正孔を電界の力で発光層内に輸送する機能のいずれか一方を有する場合であってもよく、正孔注入及び正孔輸送の両方の機能を有していても良い。正孔輸送層4は、1層からなっても良いし、複数層からなっても良い。正孔輸送層4は、例えば、図1に示すように、各種発光層と陽極3との間に形成される。

#### 【0024】

正孔輸送層4に用いられる正孔輸送材料の例としては、銅フタロシアニン、テトラ(t-ブチル)銅フタロシアニン等の金属フタロシアニン類及び無金属フタロシアニン類、キナクリドン化合物、1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサノール、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン等の芳香族アミン系低分子正孔輸送材料や、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリビニルカルバゾール、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)とポリスチレンスルホン酸との混合物などの高分子正孔輸送材料、ポリチオフェンオリゴマー材料、 $Cu_2O$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $Mn_2O_3$ 、 $FeO_x$  ( $x \sim 0.1$ )、 $NiO$ 、 $CoO$ 、 $Pr_2O_3$ 、 $Ag_2O$ 、 $MoO_2$ 、 $Bi_2O_3$ 、 $ZnO$ 、 $TiO_2$ 、 $SnO_2$ 、 $ThO_2$ 、 $V_2O_5$ 、 $Nb_2O_5$ 、 $Ta_2O_5$ 、 $MoO_3$ 、 $WO_3$ 、 $MnO_2$ などの無機材料、その他既存の正孔輸送材料の中から選ぶことができる。

#### 【0025】

また、正孔輸送材料を溶解または分散させる溶媒としては、トルエン、キシレン、アニソール、ジメトキシベンゼン、テトラリン、シクロヘキサノール、アセトン、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、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、酢酸エチル、酢酸ブチル、水などのうち、いずれかまたはこれらの混合液が挙げられる。

#### 【0026】

前記した正孔輸送材料の溶解液または分散液には、必要に応じて界面活性剤や酸化防止剤、粘度調整剤、紫外線吸収剤などを添加してもよく、粘度調整剤としては、例えばポリスチレン、ポリビニルカルバゾールなどを用いることができる。

正孔輸送層4の形成方法としては、正孔輸送層4に用いる材料に応じて、スピンコートやバーコート、ワイヤーコート、スリットコート、スプレーコート、カーテンコート、フローコート、凸版印刷法、凸版反転オフセット印刷法、インクジェット法、ノズルプリン

10

20

30

40

50

ト法などの湿式法や、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法などの蒸着法を用いることができる。

【0027】

また、正孔輸送層4上にはインターレイヤ層を形成しても良い。インターレイヤ層に用いる材料として、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリアリーレン誘導体、アリールアミン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体などの、芳香族アミンを含むポリマーなどが挙げられる。これらの材料は溶媒に溶解または分散させ、スピンコートやパーコート、ワイヤーコート、スリットコート、スプレーコート、カーテンコート、フローコート、凸版印刷法、凸版反転オフセット印刷法、インクジェット法、ノズルプリント法などの湿式法を用いて形成することができる。

10

【0028】

発光層5、発光層6、発光層7は電圧を印加することによって、それぞれ異なる発光ピーク波長で発光する有機発光層の機能性材料である。

例えば、それぞれ発光層5、発光層6、発光層7に光の三原色である赤色、緑色、青色に発光層する有機発光層を用いてもよい。それぞれ、赤色の場合610nm～640nm程度に極大波長を、緑色の場合460nm～610nm程度に極大波長を、青色の場合430nm～460nm程度に極大波長を有するものであれば、発光材料としては特に限定されるものではない。

【0029】

発光層5及び発光層6は、溶解または分散した有機発光インク(インク)を正孔輸送層4上にスプレーコート、凸版印刷法、凸版反転オフセット印刷法、インクジェット法、ノズルプリント法、グラビア印刷法などの塗り分け可能な湿式法を用いて付着させ、その後乾燥させることで形成されている。発光層7の形成方法としては、用いる材料に応じて、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法などの真空蒸着法を用いることができる。なお、それぞれの発光層の膜厚は、0.01μm以上0.1μm以下の範囲であればよい。前記膜厚の範囲外となった場合、発光効率が低下する傾向にある。

20

【0030】

有機発光層を形成する有機発光材料は、例えばクマリン系、ペリレン系、ピラン系、アンスロン系、ポルフィレン系、キナクリドン系、N,N'-ジアルキル置換キナクリドン系、ナフタルイミド系、N,N'-ジアリール置換ピロロピロール系、イリジウム錯体系などの発光性色素をポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリビニルカルバゾール等の高分子中に分散させたものや、ポリアリーレン系、ポリアリーレンピレン系やポリフルオレン系の高分子材料が挙げられるが本発明ではこれらに限定されるわけではない。

30

【0031】

これらの有機発光材料は溶媒に溶解または安定に分散させ有機発光インキとなりえる。有機発光材料を溶解または分散する溶媒としては、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、シクロヘキサノンなどの単独またはこれらの混合溶媒が上げられる。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媒が有機発光材料の溶解性の面から好適である。また、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、紫外線吸収剤等が添加されてもよい。

40

【0032】

上述した高分子材料に加え、有機発光層を形成する有機発光材料は、9,10-ジアリールアントラセン誘導体、ピレン、コロネン、ペリレン、ルブレン、1,1,4,4-テトラフェニルブタジエン、トリス(8-キノラート)アルミニウム錯体、トリス(4-メチル-8-キノラート)アルミニウム錯体、ビス(8-キノラート)亜鉛錯体、トリス(4-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノラート)アルミニウム錯体、トリス(4-メチル-5-シアノ-8-キノラート)アルミニウム錯体、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)[4-(4-シアノフェニル)フェノラート]

50

アルミニウム錯体、ビス(2-メチル-5-シアノー-8-キノリノラート)[4-(4-シアノフェニル)フェノラート]アルミニウム錯体、トリス(8-キノリノラート)スカンジウム錯体、ビス[8-(パラ-トシル)アミノキノリン]亜鉛錯体及びカドミウム錯体、1,2,3,4-テトラフェニルシクロペンタジエン、ポリ-2,5-ジヘプチルオキシ-パラ-フェニレンビニレンなどの低分子系発光材料も使用できる。

#### 【0033】

電子輸送層8に用いられる電子輸送材料としては、2-(4-ビフィニルイル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール、オキサジアゾール誘導体やビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム錯体、トリアゾール化合物、等を用いることができる。また、これらの電子輸送材料に、ナトリウムやバリウム、リチウムといった仕事関数が低いアルカリ金属、アルカリ土類金属を少量ドーブすることにより、電子注入層としてもよい。

10

#### 【0034】

電子輸送層8の形成方法としては、用いる材料に応じて、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法などの真空蒸着法を用いることができる。

陰極9は、陰極9を陰極とする場合には有機発光媒体層への電子注入効率の高い、仕事関数の低い物質を用いる。具体的には、Mg, Al, Yb等の金属単体を用いたり、発光媒体と接する界面にLiや酸化Li, LiF等の化合物を1nm程度挟んで、安定性・導電性の高いAlやCuを積層して用いてもよい。または、電子注入効率と安定性を両立させるため、仕事関数が低いLi, Mg, Ca, Sr, La, Ce, Er, Eu, Sc, Y, Yb等の金属1種以上と、安定なAg, Al, Cu等の金属元素との合金系を用いてもよい。

20

#### 【0035】

陰極9の形成方法としては、材料に応じて、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法を用いることができる。対向電極11の厚さに特に制限はないが、10nm以上1000nm以下が望ましい。

陰極9と封止材との間の、例えば陰極9上にパッシベーション層を形成してもよい。パッシベーション層の材料としては、酸化珪素、酸化アルミニウム等の金属酸化物、弗化アルミニウム、弗化マグネシウム等の金属弗化物、窒化珪素、窒化アルミニウム、窒化炭素などの金属窒化物、酸窒化珪素などの金属酸窒化物、炭化ケイ素などの金属炭化物、必要に応じて、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、ポリエステル樹脂などの高分子樹脂膜との積層膜を用いてもよい。特に、バリア性と透明性の面から、酸化ケイ素(SiO<sub>x</sub>)、窒化ケイ素(SiN<sub>x</sub>)、酸窒化ケイ素(SiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>)を用いることが好ましく、さらには、成膜条件により、膜密度を可変した積層膜や勾配膜を使用してもよい。

30

#### 【0036】

パッシベーション層の形成方法としては、材料に応じて、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、反応性蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法、CVD法を用いることができるが、特に、バリア性や透光性の面でCVD法を用いることが好ましい。CVD法としては、熱CVD法、プラズマCVD法、触媒CVD法、VUV-CVD法などを用いることができる。

40

#### 【0037】

また、CVD法における反応ガスとしては、モノシランや、ヘキサメチルジシラザン(HMDS)やテトラエトキシシランなどの有機シリコーン化合物に、N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>Oなどのガスを必要に応じて添加してもよく、例えば、シランの流量を変えらることにより膜の密度を変化させてもよく、使用する反応性ガスにより膜中に水素や炭素が含有させることもできる。パッシベーション層の膜厚としては、有機EL素子の電極段差や基板の隔壁高さ、要求されるバリア特性などにより異なるが、0.01μm以上10μm以下程度が一般的に用いられている。

50

## 【0038】

有機発光材料は大気中の水分や酸素によって容易に劣化してしまうため有機発光媒体層を外部と遮断するための封止材を設ける。封止材は、例えば封止基板11と樹脂層10とを設けて作成することができる。封止基板11としては、水分や酸素の透過性が低い基材である必要がある。また、材料の一例として、アルミナ、窒化ケイ素、窒化ホウ素等のセラミックス、無アルカリガラス、アルカリガラス等のガラス、石英、アルミニウムやステンレスなどの金属箔、耐湿性フィルムなどを挙げることができる。耐湿性フィルムの例として、プラスチック基材の両面に $SiO_x$ をCVD法で形成したフィルムや、透過性の小さいフィルムと吸水性のあるフィルムまたは吸水剤を塗布した重合体フィルムなどがあり、耐湿性フィルムの水蒸気透過率は、 $10^{-6} g/m^2/day$ 以下であることが好ましい。

10

## 【0039】

樹脂層10の材料の一例として、エポキシ系樹脂、アクリル系樹脂、シリコン樹脂などからなる光硬化型接着性樹脂、熱硬化型接着性樹脂、2液硬化型接着性樹脂や、エチレンエチルアクリレート(EEA)ポリマー等のアクリル系樹脂、エチレンビニルアセテート(EVA)等のビニル系樹脂、ポリアミド、合成ゴム等の熱可塑性樹脂や、ポリエチレンやポリプロピレンの酸変性物などの熱可塑性接着性樹脂を挙げることができる。

## 【0040】

樹脂層10の形成方法の一例として、溶剤溶液法、押出ラミ法、熔融・ホットメルト法、カレンダー法、ノズル塗布法、スクリーン印刷法、真空ラミネート法、熱ロールラミネート法などを挙げることができる。必要に応じて吸湿性や吸酸素性を有する材料を含有させることもできる。封止材上に形成する樹脂層の厚みは、封止する有機EL素子の大きさや形状により任意に決定されるが、 $5\mu m$ 以上 $500\mu m$ 以下が望ましい。

20

## 【0041】

有機EL素子と封止基板11との貼り合わせは封止室で行う。封止材を、封止基板11と樹脂層10の2層構造とし、樹脂層10に熱可塑性樹脂を使用した場合は、加熱したロールで圧着のみ行うことが好ましい。樹脂層10に熱硬化型接着樹脂や光硬化性接着樹脂を使用した場合は、ロール圧着や平板圧着した状態で、光もしくは加熱硬化を行うことが好ましい。

## 【0042】

次に、以上のような構成の有機EL発光装置1を、凸版印刷法と真空蒸着法によって製造する方法の概略を説明する。なお、本発明はこれに限るものではなく、上述の通り、凸版印刷法に変えてインクジェット法やノズルプリント法等を用いることができる。

30

まず、透光性基板2上に、陽極3を形成する。これは、透光性基板2上の全面にスパッタリング法を用いてITO膜を形成してもよく、また、湿式法により導電性を示す高分子化合物を用いてもよい。

## 【0043】

次に、図2に示すような凸版印刷装置20を用いて、正孔輸送性材料のインキを陽極3上に凸版印刷法によって塗布し、正孔輸送層5を一様に形成する。

この凸版印刷装置20は、インクタンク23と、インキチャンバー24と、アニロックスロール25と、凸版が設けられた版27がマウントされた版胴28と、を有している。

40

インクタンク23には有機材料インキが収容されており、インキチャンバー24にはインクタンクより有機材料インキが送り込まれるようになっている。アニロックスロール25は、インキチャンバー24のインキ供給部に接して回転可能に支持されている。

## 【0044】

アニロックスロール25の回転に伴い、アニロックスロール表面に供給された有機材料インキのインキ層29は均一な膜厚に形成される。このインキ層29のインキはアニロックスロールに近接して回転駆動される版胴28にマウントされた版27の凸部に転移する。

ステージ21には、被印刷基板22(この場合には、ITOを形成した後の透光性基板

50

2) が設置され、版 27 の凸部にあるインキが被印刷基板 22 に対して印刷され、必要に応じて乾燥工程を経て被印刷基板上に有機層が形成される。

【0045】

このようにして正孔輸送性材料のインキを陽極 3 上に凸版印刷法によって塗布した後、正孔輸送層 4 を一様に形成し、その後、同様に凸版印刷法により有機発光層（発光層 5、発光層 6）を正孔輸送層 4 上に塗り分けて形成する。

このようにして、凸版印刷法により発光層 5、発光層 6 まで形成した後、次に発光層 7 を、発光層 5、発光層 6、正孔輸送層 4 上を含む全面に抵抗加熱蒸着法などの真空蒸着法によって形成する。

【0046】

発光層 7 を真空蒸着法によって形成する場合、発光層 7 はホスト材料と発光ドーパント材料を共蒸着法によって形成する。それぞれの材料の蒸着比率は蒸着速度によって調整する。

続いて、電子輸送層 8 及び陰極 9 を、発光層 7 上に抵抗加熱蒸着法などの蒸着法によって蒸着して形成する。最後に、これら陽極 3、有機発光媒体層及び対向電極 11 を空気中の酸素や水分から保護するために樹脂層 10 を充填し、封止基板 11 で被覆し、これにより封止を行って有機 EL 発光装置 1 を製造する。

【0047】

以上のように構成された有機 EL 発光装置 1 及びその製造方法によれば、一様な透明電極を含む、ベタ状の正孔輸送層上に 2 種類以上の発光材料を塗り分けることで、その塗液面積と、その隙間及び上層を満たすように発光材料をドライ成膜することで、ストライプ構造やアイランド構造の塗液位置精度を緩和することができ、また、隔壁を用いる必要がないので、コストを抑えることができ、歩留まり良く、柔軟に色温度を調整することができる。

【0048】

色温度の調整方法の例として、図 3 のようなストライプ構造や、図 4 と図 5 のようなアイランド構造の各発光層の面積比で調整する方法があげられる。図 3 (A) のような一様なストライプ状のパターンや、図 3 (B) のようにストライプの位置ずれや、ストライプ幅太り、ストライプのヨレ、混色、ストライプ切れなど、一般的に有機 EL ディスプレイ用途では欠陥とされる状態があったとしても特に本発明では問題にはならない。アイランド構造の場合、図 4 (A) や図 4 (B) のようなパターンが考えられ、図 5 (A) や図 5 (B) のような発光層面積にバラつきがあったとしても、目的の色温度を最終的に満たせるような範囲であれば許容でき、本発明の趣旨からは逸脱しない。また、アイランドの形状は特に円状に限定せず、角丸四角形等でもよい。また発光色について発光層 5、発光層 6 は単色発光、及び発光層 7 との混色発光でもどちらでも良い。

【0049】

なお、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲において種々の変更を加えることが可能である。例えば、陽極 3 には、導電性を示す高分子化合物を用いてもよく、必要に応じて、陽極の配線抵抗を低くするために、一様な網目状、櫛形あるいはグリッド型等の金属および/または合金の細線構造部を配置した導電性面を作製し、その上に陽極を形成してもよい。

【0050】

また、正孔ブロック層や電子注入層、電子ブロック層を形成してもよい。ここで、電子ブロック層は、正孔輸送層 4 と同様に、陽極である陽極 3 から正孔を対向電極である陰極 9 の方向へ進めて正孔を通しながらも、電子が陽極 3 の方向へ進行することを防止する機能を有している。また、正孔ブロック層や電子輸送層、電子注入層は、対向電極である陰極 9 から電子を陽極である陽極 3 の方向へ進めて電子を通しながらも、正孔が陰極 9 の方向へ進行することを防止する機能を有している。

【0051】

また、フッ化リチウムやフッ化ナトリウムなどの薄膜を陰極 9 と有機発光媒体層との間

10

20

30

40

50

に設けてもよい。

【実施例】

【0052】

以下、実施例及び比較例を示して本発明を詳細に説明する。ただし、本発明は以下の記載によっては限定されない。

(第1実施例)

[素子作成]

図1に示すように、透光性基板2(白板ガラス;縦100mm×横100mm×厚さ0.7mm)上にスパッタリング法により厚さ0.15 $\mu$ mの陽極3を形成した。ここで、陽極3の表面粗さRaは、面積200 $\mu$ m<sup>2</sup>の任意の面内において20nmとなった。

10

【0053】

正孔輸送層4は、正孔輸送材料としてポリアリーレン誘導体を用い、これをキシレンに溶解させて濃度を3.0重量%としたインクを凸版印刷法で一様に塗布し、これを20010分間乾燥させることによって形成した。正孔輸送層4上に形成する発光層5、発光層6、発光層7にはそれぞれ赤色発光層、緑色発光層、青色発光層を用いた。

赤色有機発光層のホスト材料には2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール)(TPBi)、ドープ材料には2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポリフィリンプラチナ2(PtOEP)を用いて重量比率をTPBi/PtOEP=0.90/0.10にて濃度1%になるようにトルエンに溶解させた有機発光インキを用い、凸版印刷法で線幅200 $\mu$ mで400 $\mu$ m間隔になるように塗布した。これを10010分間乾燥させることによって形成した。乾燥後の有機発光層の膜厚は線幅中心部で50nmとなった。

20

【0054】

緑色有機発光層のホスト材料にはTPBi、ドープ材料にはトリス(2-(p-トリル)ピリジン)イリジウムIII(Ir(mppy)3)を用いて重量比率をTPBi/Ir(mppy)3=0.94/0.06にて濃度1%になるようにトルエンに溶解させた有機発光インキを用い、凸版印刷法で線幅200 $\mu$ mで赤色発光層と100 $\mu$ mの間隔を空けるように塗布した。これを10010分間乾燥させることによって形成した。乾燥後の有機発光層の膜厚は画素中心部で50nmとなった。

30

【0055】

青色発光層7として、赤色発光層5、緑色発光層6、正孔輸送層4上に、真空蒸着法により、9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセン(以下「DNA」という。)と25,8,11-テトラ-t-ブチルペリレン(以下「TBP」という。)を共蒸着した膜を形成した。DNAとTBPの蒸着比は、9:1となるように蒸着速度を調整し、厚さ30nmを形成した。

【0056】

さらに、青色発光層7上に、真空蒸着法により、電子輸送層8としてAlq3を成膜速度0.01nm/secとして、厚さ20nmを形成した。その後、陰極9として、LiF/Al=0.5nm/150nmを蒸着により形成した。その後、封止基板13を接着し有機EL発光装置1を得た。

40

このように得られた有機EL発光装置1の表示部の周辺部においては、陽極側の取り出し電極と、陰極層に接続されている陰極側の取り出し電極とが設けられている。これら取り出し電極を電源に接続し、有機EL発光装置を点灯かつ表示させ、点灯状態及び表示状態を確認した。得られた有機EL発光装置1を駆動し、表示確認を行ったところ、発光状態は良好であった。

【0057】

(第2実施例)

前記第1実施例と同一の方法で、正孔輸送層まで形成し、赤色発光層の有機発光インキを調整し、塗布液量を増やすことで線幅300 $\mu$ mで300 $\mu$ m間隔になるように塗布し、これを10010分間乾燥させることによって形成した。緑色発光層は前記実施例と

50

同様に凸版印刷法で線幅200 $\mu\text{m}$ で赤色発光層と50 $\mu\text{m}$ の間隔を空けるように塗布した。その後の青色発光層からは前記ら前記実施例と同一の方法で形成し、有機発光表示装置を得た。

【0058】

このように得られた有機EL発光装置を駆動し、表示確認を行ったところ、第1実施例と比べて、第2実施例は色温度が低下し、異なる発光色が得られた。

第2実施例から、赤色発光層の発光面積が増加し、青色発光層の発光面積が減少したことで、色温度が低下した。インキの塗布液量を調整するだけで、色温度の調整が可能な有機EL発光装置が得られた。

【産業上の利用可能性】

10

【0059】

本発明は、ストライプ構造やアイランド構造の塗液位置精度を緩和し、コストを抑え、歩留まり良く、柔軟に色温度を調整することにおいて、有用である。

【符号の説明】

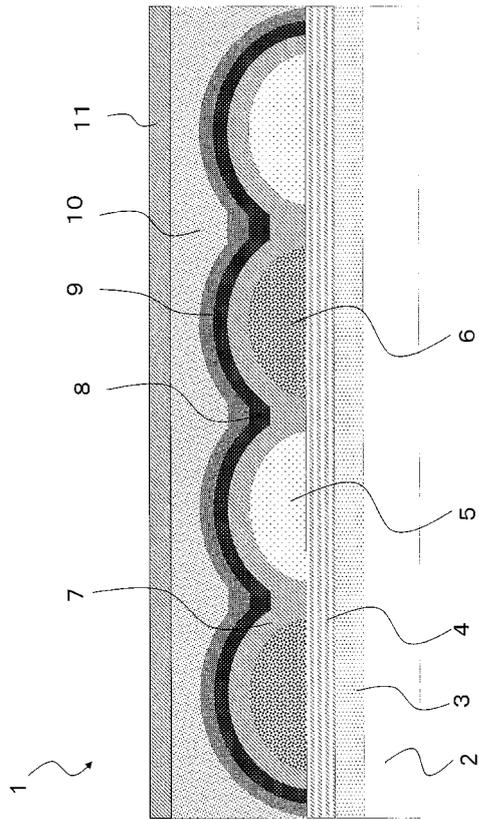
【0060】

- 1 ... 有機EL発光装置
- 2 ... 透光性基板
- 3 ... 陽極
- 4 ... 正孔輸送層
- 5 ... 発光層
- 6 ... 発光層
- 7 ... 発光層
- 8 ... 電子輸送層
- 9 ... 陰極
- 10 ... 樹脂層
- 11 ... 封止基板
- 20 ... 凸版印刷装置
- 21 ... ステージ
- 22 ... 被印刷基板
- 23 ... インキタンク
- 24 ... インキチャンパー
- 25 ... アニロックスロール
- 27 ... 凸版
- 28 ... 版胴
- 29 ... インキ層

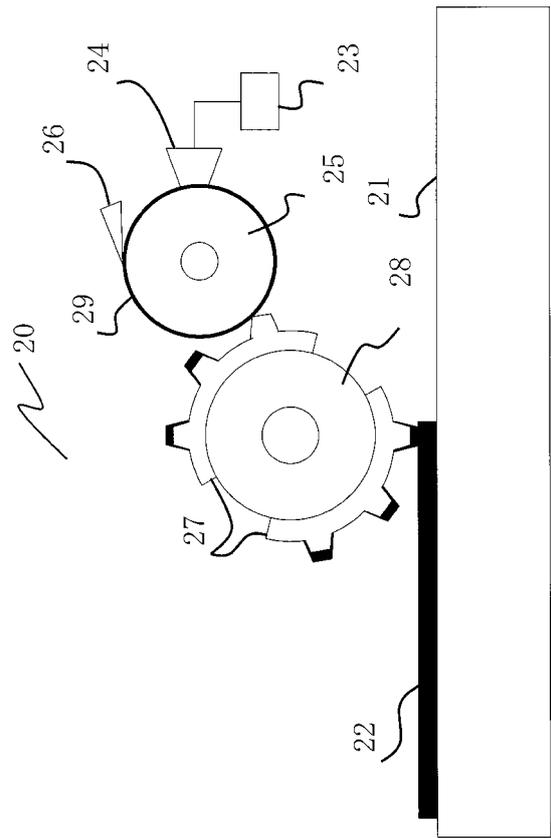
20

30

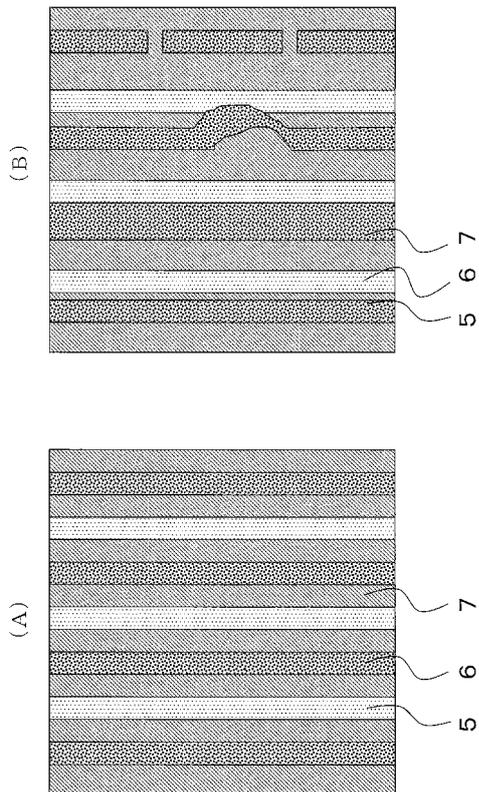
【 図 1 】



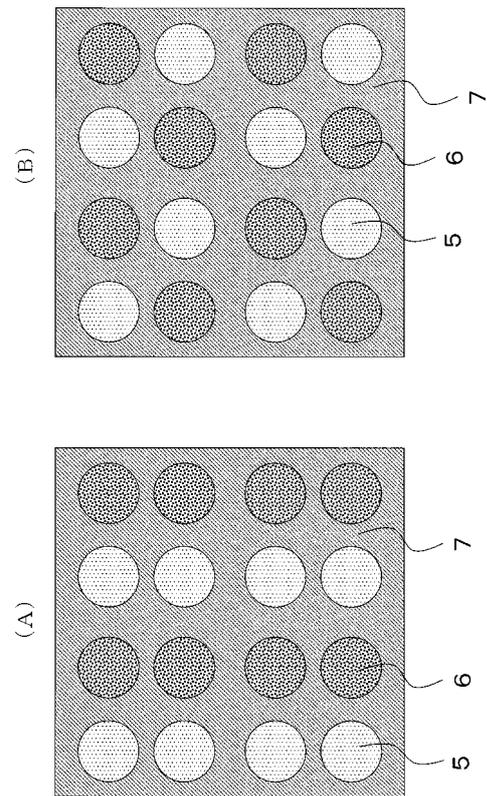
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



【 図 5 】

