

(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2016-39085  
(P2016-39085A)

(43) 公開日 平成28年3月22日(2016.3.22)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
<b>H05B 33/04</b> (2006.01)	H05B 33/04	3 K 1 O 7
<b>H01L 51/50</b> (2006.01)	H05B 33/14	A
<b>H05B 33/02</b> (2006.01)	H05B 33/02	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2014-162889 (P2014-162889)	(71) 出願人	000000941 株式会社カネカ 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号
(22) 出願日	平成26年8月8日 (2014.8.8)	(72) 発明者	近藤 正隆 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駒字弥栄平1 -82 O L E D 青森株式会社内
		(72) 発明者	森 清 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駒字弥栄平1 -82 O L E D 青森株式会社内
		F ターム (参考)	3K107 AA01 BB01 BB02 CC23 CC26 CC27 CC29 CC42 CC45 DD12 EE48 EE49 EE50 FF02 FF14 FF15

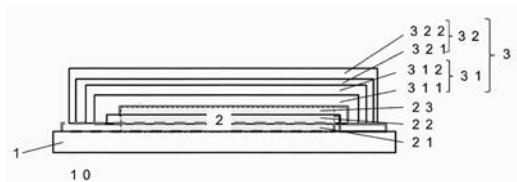
(54) 【発明の名称】有機EL発光パネル

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】有機EL発光素子への水分の侵入をより効果的に防止するとともに同素子層への圧力印加の影響が緩和された高信頼性の有機EL発光パネルを提供する。

【解決手段】水蒸気バリア性の透光性基板1の一方の主面上に、有機EL発光素子2、及び、平面視該有機EL発光素子の全面を覆う無機有機積層保護層3を備える有機EL発光パネル10であって、該無機有機積層保護層が、シリコン合金封止層31と、粘着剤層付きフィルム32とからなり、該粘着剤層321の材料の、貯蔵弾性率が $10^3 - 10^6 \text{ Pa}$ 、かつ、損失弾性率が該貯蔵弾性率測定値の0.02~0.2倍である。

【選択図】図3



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

水蒸気透過率が  $10^{-2} \text{ g / m}^2 / \text{day}$  以下の水蒸気バリア性の透光性基板の一方の主面上に、有機EL発光素子、及び、平面視該有機EL発光素子の全面を覆う無機有機積層保護層を備える有機EL発光パネルであって、

該有機EL発光素子が、該一方の主面上に順に形成されてなる、少なくとも、透光性電極層、有機化合物を含有する発光層を含む機能層、及び裏面電極層を含み、

該無機有機積層保護層が、該裏面電極層に接して形成されてなり、かつ、 $0.5 \mu\text{m}$  以上、 $10 \mu\text{m}$  以下の平均厚みを有するシリコン合金封止層と、該シリコン合金封止層の表面に、その粘着剤層が直接粘着されてなり、かつ、該粘着剤層の平均厚みが $0.5 \mu\text{m}$  以上、 $50 \mu\text{m}$  以下の粘着剤層付きフィルムとからなり、

該シリコン合金封止層が、該裏面電極層と接し、かつ、窒素を $25 \text{ atm}\%$  以上 $70 \text{ atm}\%$  以下含む窒素シリコン合金層と、該粘着剤層と接し、かつ、酸素を $65 \text{ atm}\%$  以上、 $68 \text{ atm}\%$  以下含む酸素シリコン合金層とを含み、

該粘着剤層の材料の、 $0 \sim 50$ 、及び周波数 $1 \text{ Hz}$  における測定時の、貯蔵弾性率が $10^3 \sim 10^6 \text{ Pa}$ 、かつ、損失弾性率が該貯蔵弾性率測定値の $0.02 \sim 0.2$  倍であり、かつ、

該粘着剤層付きフィルムのフィルム基材が、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリ塩化ビニリデン(PVDC)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、ポリイミド、及び塩化ビニールからなる群から選ばれる 1 種の材料からなるフィルムの単層フィルム、又は積層フィルムである、有機EL発光パネル。

## 【請求項 2】

前記粘着剤層の平均厚みが、前記シリコン合金封止層の平均厚みより厚い、請求項 1 に記載の有機EL発光パネル。

## 【請求項 3】

前記粘着剤層の材料が、アクリル系粘着剤である、請求項 1 又は 2 に記載の有機EL発光パネル。

## 【請求項 4】

前記フィルム基材の平均厚みが、 $15 \mu\text{m}$  以上、 $50 \mu\text{m}$  以下である、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の有機EL発光パネル。

## 【請求項 5】

前記透光性基板が、ガラス基板である、請求項 1 ~ 4 7 のいずれかに記載の有機EL発光パネル。

## 【請求項 6】

前記有機EL発光素子の面積が、 $50 \text{ cm}^2$  以上である、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の有機EL発光パネル。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、有機EL発光パネルに関わり、特に、その有機EL発光素子が保護された有機EL発光パネルに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

近年、白熱灯や蛍光灯に変わる照明装置として有機EL発光パネルが注目され、多くの研究がなされている。また、テレビに代表されるディスプレイ部材においても液晶方式やプラズマ方式に変わることとして有機EL発光パネルを用いた方式が注目されている。

## 【0003】

ここで有機EL発光パネルは、透明ガラス基板や透光性樹脂フィルム等の水蒸気バリア性透光性基板上に、有機EL発光素子を形成したものである。

10

20

30

40

50

## 【0004】

また有機EL発光素子は、一方又は双方が透光性を有する2つの電極層を対向させ、この電極層の間に有機化合物からなる発光層を積層したものである。有機EL発光素子中の発光層では、外部から給電された2つの電極層から注入される電子と正孔とが再結合し、そこで生じた励起された状態のエネルギーに起因して発光する。

## 【0005】

有機EL発光パネルは、自発光デバイスであるため、ディスプレイ装置として使用すると高コントラストの画像を得ることができる。また、発光層の材料を適宜選択することにより、種々の波長の光を発光することができる。さらに、このような有機EL発光パネルを照明装置として使用すると白熱灯や蛍光灯に比べて厚さが極めて薄く、且つ面状に発光するので、設置場所の制約が少ないという利点がある。

10

## 【0006】

図1は、従来の有機EL発光パネル10の代表的な構造を示す断面概念図であり、ボトムエミッション型と称される構造である。この従来の有機EL発光パネル10は、ガラス基板等の透光性基板1上に、透光性電極層21と、有機化合物を含有する発光層を含む機能層22と、裏面電極層23とを積層することで有機EL発光素子2を形成した後、この有機EL素子2への水分の浸入を防ぐため、これを密閉空間内に保持するために、裏面封止板4で覆ったものである。ここで、裏面封止板4をガラス板の一面にエッチング等で凹部を設けたものとし、この凹部に有機EL発光素子2を格納することが一般的で、いわゆるガラス缶封止構造といわれるものである。一般に、この凹部の周囲は、有機EL発光素子2から延在する、透光性電極層21や裏面電極層23を介して、又は、直接、エポキシ樹脂5で透光性基板1に接着され、前記密閉空間が形成される。また、この有機EL発光素子2が存在する密閉空間の内部に乾燥材6を配することも一般に実施されている。ここで、機能層22は、複数の薄膜が積層されたものであり、少なくとも有機化合物を含有する発光層を含む。代表的な機能層22の層構成としては、透光性電極層21側から順に、正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層という構造が挙げられる。

20

## 【0007】

このような従来の有機EL発光パネル1において、前記密閉空間の密閉性が不十分な場合には、長期間使用すると、その有機EL発光素子2内に水分が浸入しダーカスポットと呼ばれる非発光点が発生することがよく知られている。

30

## 【0008】

このダーカスポットについて詳説すると、有機EL発光素子が水等に曝された状態で点灯すると、有機EL発光素子を構成する電極層あるいは電極層界面付近の有機化合物層の一部が酸化され絶縁性の酸化被膜が形成される。この酸化被膜形成箇所は部分的に絶縁化されるため、点灯時に当該箇所が発光せず、ダーカスポットが形成されるものと考えられる。

40

## 【0009】

特許文献1は、素子への水等の進入を防ぐ技術として、基材上に順次、第1電極層、有機化合物層、及び第2電極層を積層した素子において、その第2電極層の上に、シリコン合金封止層を積層する技術、さらに、この封止層の上にポリシラザンを塗布しベーティングすることで $\text{SiO}_2$ 膜を形成し、シリコン合金層及び硬質 $\text{SiO}_2$ 層からなる複層封止膜とする技術を開示している。

## 【0010】

特許文献2は、特許文献1の複層封止膜を用いた構造において、この膜の上の、素子の発光領域に相当する部分には軟質樹脂を、素子の周辺部には硬質樹脂層を、各々設けて、これらの部分に跨って水蒸気バリア性のポリエチレンテレフタレート(PET)/アルミニウム(AL)/ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を接着した構造を開示している。

## 【0011】

特許文献3は、20~80での貯蔵弾性率が0.1M~50MPa、 $\tan\delta$ が0.

50

1～2のオレフィン系重合体を主成分とする粘着性フィルムと、ガスバリア性フィルムとを併用して、素子の封止に用いる構造を開示する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】特開2005-285659号公報

【特許文献2】WO2014/038625号パンフレット

【特許文献3】特開2005-298703号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

特許文献1の有機EL発光パネルは、一定以上の封止性能を有するものの、シリコン合金層のみの封止では不十分である。また、特許文献2の方法では軟質接着剤と硬質接着剤の両方を用意しなければならないという煩雑さがあること、ガスバリアフィルムは金属箔を樹脂フィルムでサンドイッチしたもので高価なこと、シリコン系封止膜とSiO<sub>2</sub>層に含まれているガスの放出によりガスバリアフィルムの部分的な剥離が生じる場合があること、といった問題を抱えている。さらに、特許文献3の粘着剤付フィルムのみ封止では、湿度、ガス発生に敏感な素子の封止として不十分であり、ダークスポットの発生抑止は困難である。

【0014】

ところで、ダークスポットの問題とは別に、有機EL発光パネルにおいては、パネルを非発光面側から押圧すると、両電極間にショートし、点灯しなくなるという、不点灯の問題が生じる場合がある。そのため、十分な封止性能を有する共に、不点灯の問題が解決された有機EL発光パネルが求められている。即ち、例えば、図1に示すような従来の有機EL発光パネルでは、裏面封止板4側から押圧すると、裏面電極層23を介して内部の有機EL発光素子2に応力がかかり、素子が破壊されショート欠陥が生じる場合がある。このようなショート欠陥が生じると、パネルに電圧を印可しても、ショート欠陥を介して電流が流れる結果、正常素子部分には電流が流れず発光しない不点灯が、頻発する。そして、このような不点灯は、発光部分の面積が大きくなるにつれて発生し易くなる。例えば、比較的大面積の10cm角サイズの有機ELパネルにおいては、これを照明装置に組み込む工程や、これを壁等に取り付ける工程で、不点灯が多発する。つまり、従来技術であるガラス缶封止構造のパネルは、エッチング工程等で窪みを形成したガラス板である裏面封止板4が、特に大面積の場合に、高価なだけでなく、不点灯の問題が多発する。

【0015】

このように、パネルの大面積化に伴い、不点灯の問題が顕在化している。従来は30mm程度の小さいパネルであったが、照明器具等に使用する場合、例えば50mm角、更には80mm角、140mm角と大きくすることで、照明器具に含まれるパネル数を少なくすることが、組み立て工数削減の観点から望ましい。しかし、従来のガラス缶封止パネルでは、その裏面封止板4の大面積化には、厚みを増大させることも同時に必要となり、薄肉化や、コスト低減、軽量化が困難である。逆に、ハンドリングを工夫して、薄い裏面封止板4部材とした場合には、わずかの力でも裏面封止板の中央部が変形し、その変形によりパネル中央部が押されて不点灯が多発する。本発明者らは現実にパネルの天井への取り付ける工事の際、数百枚のパネルの内半数以上が故障する事故や、有機EL発光タイル（有機ELベアパネル）に枠、電源、プリント基板などを取り付けて、照明器具を作成する工程で不点灯となる故障を経験した。

【0016】

本発明は、このような先行技術の問題点に鑑み為されたものであり、封止性能を有しないパネル、または、封止性能を有していても十分でないパネルの封止性能を高めることができる構造を提案する。また、特許文献1の有機EL発光パネルの構造に簡略な部材を追加することで上記問題を解決するものである。さらに、こうした工事や照明器具作製過程

での押圧による不点灯の問題を解決するものである。

【課題を解決するための手段】

【0017】

上記の課題を解決するために、発明者らは、特許文献1の構造を参考にしてシリコン合金封止層31と粘着剤層付フィルム32からなる無機有機積層保護層3で素子2を封止したパネル10を試作した。

【0018】

図2に、本発明の有機EL発光パネル10の積層構造を説明する透視平面図を示す。

【0019】

図3は、図2の有機EL発光パネル10の積層構造を説明する断面図である。

10

【0020】

図2及び図3から判るように、図2には各層の平面内における形成領域が、これらの相互の位置関係を説明するために、示されている

試作したパネル10は、図2及び図3に示すように、ガラス基板1上に順次、透光性電極層21と機能層22と裏面電極層23とを積層した構造を有する有機EL発光素子2の上に、CVD法により窒素シリコン合金層311を形成し、その上に、ポリシラザンの酸化反応により酸化シリコン合金層312を形成し、さらにその上に、アクリル系粘着性樹脂層321を有するフィルムであって、非水蒸気バリア性のフィルムをそのフィルム基材322とする粘着剤層付きフィルム32を貼り付け、最後に、給電部材8(図示せず。)を取り付けたものである。ここで、有機EL素子2は、透光性電極層21、機能層22、及び裏面電極層23の全ての層が重畠して積層されている部分であり、両電極層を含む部分である。このような素子は、両電極層の延在部分に外部から給電されることで、素子に給電される。

20

【0021】

より具体的には、粘着剤層付きフィルム32として、平均厚みが25μmのアクリル系粘着剤層321を有する、平均厚みが50μmのPET基材フィルム322の粘着剤層付きフィルム32を用い、この構成において、無機有機積層保護層を形成することにより招来される効果を確認した。

【0022】

試作したパネルは、旧来のものに比べて、封止性能が各段に向上し、ダーカススポットの発生個数やその成長が大幅に低減されており、信頼性や寿命が大幅に向上した。更に、粘着剤層付きフィルム側から押圧しても、全く不点灯が発生しなかった。

30

【0023】

以上の知見に基づいて、導き出された本発明は、水蒸気透過率が $10^{-2} \text{ g} / \text{m}^2 / \text{d}$ 以下の水蒸気バリア性の透光性基板の一方の主面上に、有機EL発光素子、及び、平面視該有機EL発光素子の全面を覆う無機有機積層保護層を備える有機EL発光パネルであって、該有機EL発光素子が、該一方の主面上に順に形成されてなる、少なくとも、透光性電極層、有機化合物を含有する発光層を含む機能層、及び裏面電極層を含み、該無機有機積層保護層が、該裏面電極層に接して形成されてなり、かつ、0.5μm以上、10μm以下の平均厚みを有するシリコン合金封止層と、該シリコン合金封止層の表面に、その粘着剤層が直接粘着されてなり、かつ、該粘着剤層の平均厚みが0.5μm以上、50μm以下の粘着剤層付きフィルムとからなり、該シリコン合金封止層が、該裏面電極層と接し、かつ、窒素を25atm%以上70atm%以下含む窒素シリコン合金層と、該粘着剤層と接し、かつ、酸素を65atm%以上、68atm%以下含む酸素シリコン合金層とを含み、該粘着剤層の材料の、0~50、及び周波数1Hzにおける測定時の、貯蔵弾性率が $10^3$ ~ $10^6$ Pa、かつ、損失弾性率が該貯蔵弾性率測定値の0.02~0.2倍であり、かつ、該粘着剤層付きフィルムのフィルム基材が、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリ塩化ビニリデン(PVDC)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、ポリイミド、及び塩化ビニールからなる群から選ばれる1種の材料からなるフィルムの単層フィルム、又は積層フィルムである、有機EL発光パネルに関する。ここ

40

50

で、本願の大きな特徴として粘着剤を用いている。これらの定義を見ると接着剤が「使う前は液体で、貼り付けると固体になる」のに対し、粘着剤は「液体と固体の両方の性質を持ち、常に濡れた状態を安定して保っている」という違いがある。特に押圧特性を得るためににはこの粘着性が重要である。

【0024】

このような本発明のパネルは、本発明に係る無機有機積層保護層が存在することで、本発明に係る封止効果、不点灯抑制効果、及び応力緩和効果が効果的に奏される。

【0025】

まず、本発明に係る封止効果とは、本発明のパネルにおいて素子は所謂固体膜封止されたり、この封止方法による薄さ及び軽さの特徴を活かしつつ、素子への水分の浸入によるダークスポットの発生を抑制することができる。

10

【0026】

次に、本発明に係る不点灯抑制効果とは、本発明に係るシリコン合金封止層の機能により、発光中にかりにリーク電流が大きい箇所が発生しても、シリコン合金封止層内の圧縮及び引張応力の兼ね合いにより、当該箇所がオープンモードの非発光点となることで、ショートモードの非発光点とならないので、短絡箇所の発生により電力を印加しても点灯しない不点灯となることが防止できる。

【0027】

さらに、本発明に係る応力緩和効果とは、本発明に係る無機有機積層保護層の複合機能により、当該箇所に粘着剤層の粘着剤が濡れ性良く流入することで、このオープンモードを、外力が素子に加えられた場合であっても安定に維持することができ、信頼性の高いパネルとなる。

20

【0028】

また、前記粘着剤層の平均厚みは、前記シリコン合金封止層の平均厚みより厚いことが好ましい。

【0029】

また、前記粘着剤層の材料は、アクリル系粘着剤であることが好ましい。

【0030】

また、前記フィルム基材の平均厚みは、15 μm以上、50 μm以下であることが好ましい。

30

【0031】

また、前記透光性基板は、ガラス基板であることが好ましい。

【0032】

また、前記有機EL発光素子の面積は、50 cm<sup>2</sup>以上であることが好ましく、より好ましくは、80 cm<sup>2</sup>以上であり、このような大面積の発光領域のパネルで、特に本発明に係る不点灯抑制効果が効果的に奏される。

【0033】

本発明の構成によれば、封止性能はシリコン合金封止層の厚みと基板に沿う方向では機能層の端部からの距離が大きく影響する。そのためし所定の厚みで製膜され、有機層の端部から距離を脚長と呼んでいるが0.1-1.0 mm程度の大きさで有機物層を覆っている。さらに粘着剤層付きフィルムの大きさはこのシリコン合金絶縁封止層をすべて覆い端部より0.5 mm以上大きいことが望ましい。

40

【0034】

本発明の構成によれば、ガラス基板は、その厚みが0.1 mmであっても、実質的に水蒸気透過率が0であり、透明性に優れ、かつ、安価なので、薄く、軽く、大面積であり、安価、高輝度、高効率であり、かつ、ダークスポットの発生が抑えられ、さらに封止材料面を押圧しても故障しない、長期信頼性に優れた有機EL発光パネルとなる。

【発明の効果】

【0035】

本発明の有機EL発光パネルによれば、大面積のパネルとした場合であっても、水分浸

50

入抑制によりダークスポットの発生抑制を図りつつ、不点灯が発生しない信頼性が大幅に向上了したパネルを提供できる。即ち、シリコン合金封止層31と、粘着剤層付きフィルム32とのコンビネーションを特徴とする無機有機積層保護層3により、機能層で生じる、点灯時の内部欠陥による応力がオープンモードとして安定化する効果、及び、外部からの応力を低減する効果がもたらされることにより、ダークスポットと不点灯の発生が共に抑制されたパネルを低コストで簡便に提供できることとなる。また、本発明のパネルでは、その封止構造は固体膜封止を基本とする簡便なものなので、パネルの面積に対する発光面積の比率を大きくできるだけでなく、その構造は大面積パネルにも好適なものである。

【図面の簡単な説明】

【0036】

10

【図1】従来の有機EL発光パネル10の代表的な構造を示す断面概念図である。

【図2】本発明の有機EL発光パネル10の積層構造を説明する平面透視図である。

【図3】図2の有機EL発光パネル10の積層構造を説明する断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0037】

以下、本発明の実施形態について説明する。

【0038】

図2及び図3は、本発明の有機EL発光パネルの一態様を示している。本明細書において、上下の位置関係は、特に断りのない限り、この図2の姿勢を基準に説明する。すなわち、有機EL発光パネルの駆動時における光取り出し側が下である。

20

【0039】

(有機EL発光パネル)

本発明の有機EL発光パネルは、図2及び図3に示すように水蒸気バリア性透光性基板1上に有機EL発光素子2が積層されており、この有機EL発光素子2の基板1と接する部分を除く露出部分の全てが、本発明に係る無機有機積層保護層3により封止され保護されていることを一つの特徴とする。

30

【0040】

そして、本発明に係る有機EL発光素子2は、透光性基板1上に順に形成されてなる、好ましくは陽極である透光性電極層21と、有機化合物を含有する発光層を含む機能層22と、好ましくは陰極である裏面電極層23とを含む。従って、本発明に係る無機有機積層保護層3は、素子2の裏面電極層23と接して形成されており、また、素子2の側面を形成している機能層22を、裏面電極層23及び機能層22との3層界面を含む上方から封止している。

30

【0041】

本発明の有機EL発光パネルの発光領域は、基板1の素子2に対応する領域であり、図2の下方方向に光を放出する。基板1の発光主面(図2の下側)において、発光領域の面積比率は、一般に大きければ大きいほど良く、基板1の主面面積の大部分の領域が発光領域であることが好ましい。

【0042】

透光性基板1は、透光性及び絶縁性を有したものである。水蒸気バリア性透光性を有することを要する。即ち、その透湿性は $10^{-2} \text{ g} / \text{m}^2 / \text{day}$ 以下であることを要し、更には、 $10^{-5} \text{ g} / \text{m}^2 / \text{day}$ 以下であることが好ましい。このようにすることで、透光性基板1を透過する水分の量は著しく低減され、有機EL発光素子2に侵入する全ての水分は、事実上、シリコン合金層と粘着剤層付きフィルムとを介して進入したもの、あるいは、これらの層の側面から侵入したものとなる。

40

【0043】

フレキシブルなフィルム基板であっても、前記特性を有するものであれば、プラスチック製のものでも適宜選択され用いられる。特にガラス基板や透光性フィルム基板は透光性や加工性の良さの点から好適である。透光性基板1は、面状に広がりをもっている。具体的には、多角形又は円形をしており、四角形であることが好ましい。特に透光性基板1と

50

して優れるのはガラス、特に硼ケイ酸ガラスである。有機EL素子の材料は材料中の不純物や水分による特性変化が極めて大きいため、基板からの不純物侵入を押さえる上で電子製品用の基板が好ましい。一方、それ以外の材料では水蒸気バリア等の材料をコートしたものが用いられる。

【0044】

透光性電極層21は、透明導電性材料からなる層であり、好ましい材質は、金属酸化物であり、その中でも、酸化インジウム錫(ITO)、インジウム亜鉛酸化物(IZO)、酸化錫(SnO<sub>2</sub>)、及び酸化亜鉛(ZnO)からなる群から選ばれる1種以上が好ましく、機能層22内の発光層から発生した光を効果的に取り出せる点では、透光性が高いITOあるいはIZOが好ましく、より好ましくはITOであり、スパッタ法、又はCVD法によって成膜されたものであることが好ましい。

10

【0045】

機能層22は、有機化合物を含有する発光層を含む、複数の薄膜が積層されたものであり、この機能層22は、一般的な有機EL発光パネルに用いられている低分子系色素材料や、共役系高分子材料などの公知のもので形成することができ、有機化合物のポリマー オリゴマーを塗布形成したものを用いることもできるが、好ましくは、各層をいずれも真空蒸着法によって成膜したものであり、高性能の発光パネルとすることができる。また、この機能層22は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層などを含む、複数の層からなる積層多層構造であることが一般的である。さらに、これらの機能層22を構成する各層は、真空蒸着法やスパッタ法、CVD法、ディッピング法、ロールコート法(印刷法)、スピンドル法、バーコート法、スプレー法、ダイコート法、フローコート法など適宜公知の方法を併用して形成することも可能である。

20

【0046】

裏面電極層23は、アルミニウムや銀等の金属薄膜であり、真空蒸着法によって成膜される。このような金属材料からなる裏面電極層23とすると、金属材料はその電気伝導率及び熱伝導率が、透明導電性金属酸化物より大きい。即ち、一般に好ましい材料を用いると、透光性電極層21の電気伝導度及び熱伝導率より、裏面電極層23の方がこれらの値が大きい。

【0047】

有機EL発光素子2に接して、無機有機積層保護層3を形成する。この無機有機積層保護層3は、有機EL発光素子の全面を覆うシリコン合金封止層31と、このシリコン合金封止層31に接して形成された粘着剤層付きフィルム32からなりなる。

30

また、このシリコン合金封止層31は、有機EL発光素子2側から窒素シリコン合金層311と酸化シリコン合金層312とを含み、好ましくは、これら2層からなる積層膜であり、その平均厚みは0.5μm以上、10μm以下である。

【0048】

本発明に係る無機有機積層保護層3は、窒素シリコン合金層311で発生した欠陥を酸化シリコン合金層312で補償し、更にその上に形成される粘着剤層付きフィルム32で、シリコン合金絶縁封止層31で発生した欠陥を補償する構造となっている。例えば、窒素シリコン合金層311上に酸化シリコン合金層312を形成する場合、窒素シリコン合金層311で形成された欠陥がそのまま酸化シリコン合金層312に欠陥として伝搬する場合があるが、本発明のように3つの形成方法を順次行うことで、欠陥がその上の層に伝搬しにくくなる。

40

【0049】

窒素シリコン合金層311は、基板を配置した真空処理装置に、SiH<sub>4</sub>あるいはSi<sub>2</sub>H<sub>6</sub>等のシリコン元のガスと、NH<sub>3</sub>あるいはN<sub>2</sub>ガス等の窒素元のガスとを導入し、電力を放電電極に印可することで基板上にCVD法で堆積されるものであることが好ましい。また、放電を制御したり、あるいは、形成されるSiN<sub>x</sub>膜中の水素量を制御したりするために、H<sub>2</sub>ガスを導入することが好ましく、良好な封止性能な窒素シリコン合金層となるよう膜の応力や密度を調整することができる。

50

## 【0050】

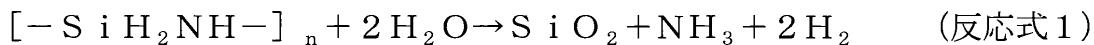
窒素シリコン合金層311について、本発明に係る封止効果、不点灯抑制効果、及び応力緩和効果を効果的に奏さしめる観点から、その平均厚みとしては、0.5 μm以上、3 μm以下とすること好ましく、また、その層の材料中に含まれる窒素量としては、25 atm%以上70 atm%以下であり、さらに、その膜中水素含有量としては、25 atm%以上、35 atm%以下とすることが好ましい。このような組成の材料の窒素シリコン合金層311は、素子2中で発生する応力を緩和する柔軟な膜であると考えられる。

## 【0051】

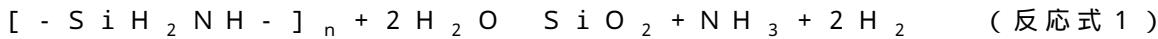
窒素シリコン合金層311の上に、好ましくは直接、形成される酸化シリコン層312は、CVD法ではなく、大気中でポリシラザン溶液を塗布して湿潤な雰囲気の中で加熱処理することで得られる膜からなる層であることが好ましく、本発明に係る応力効果を前記窒素シリコン合金層311と共に発揮しやすくなる。加熱処理により、下記反応式1の反応により、SiO<sub>x</sub>の層が形成されると考えられる。

## 【0052】

## 【化1】



## 【0053】



10

20

30

40

50

塗布方法としては、スピン法、フロー法、ロールコート法、希釈してスプレー法が用いられる。塗布により、窒素シリコン合金層311で発生した小さな欠陥を埋めることができると共に、前記窒素シリコン合金層311と複合化されると考えられる。。

## 【0054】

酸化シリコン層312について、本発明に係る封止効果、不点灯抑制効果、及び応力緩和効果を効果的に奏さしめる観点から、その平均厚みとしては、0.5 μm以上、3 μm以下とすること好ましく、また、その層の材料中に含まれる酸素量としては、65 atm%以上、68 atm%以下、即ち、実質的にSiO<sub>2</sub>層することが好ましい。

## 【0055】

本発明に係る粘着剤層付きフィルム32は、本発明の有機EL発光パネルにおいて、本発明に係るシリコン合金封止層31の表面にその粘着剤層321が直接粘着して配置され、かつ、この粘着剤層の平均厚みは0.5 μm以上、50 μm以下である。またフィルム基材322の平均厚みとしては、そのシリコン合金封止層31側からの水分等を系外に放出可能であることが好ましく、また、ハンドリング性やコスト、それにより十分な機械的強度を付与せしめる観点から15 μm以上、50 μm以下であることが好ましい。

## 【0056】

本発明において、このように粘着剤層の厚みを規定しているのは、上述の本発明に係る封止効果、不点灯抑制効果、及び応力緩和効果を効果的に奏さしめるためである。即ち、この粘着剤層321と接するシリコン合金封止層31との応力の緩和と、また、シリコン合金封止層31に場合によって発生する欠陥部(クラック)を効率良く埋めるためである。また、外部からの応力緩和・機械的ショックの緩和のためもある。外部から圧縮応力などを受けた場合に、粘着剤層321はその応力にほとんど逆らわず塑性変形するので、短絡などの問題を回避することができる。しかしながら、粘着剤層321の厚みを厚くし過ぎると、粘着剤層付きフィルム32を自動で貼付けることが困難となる。なお、粘着剤そのものは小さいながらも一定の水蒸気透過性を有しており、なるべく水蒸気透過率が小さい粘着剤を用いることが重要である。

## 【0057】

粘着剤層321の材料としては、ゴム系、アクリル系、シリコーン系の粘着剤が挙げられるが、上述の応力緩和効果に係る粘着剤の濡れ性の観点から、アクリル系の粘着剤が好

ましい。アクリル系粘着剤は電子部品用の粘着剤として広く利用されガスの発生も少なく長期使用でも安定していることが知られている。

【0058】

従来は封止には接着剤を用いることが多かったのであるが、本願の大きな特徴として粘着剤を用いている。これらの定義を見ると接着剤が「使う前は液体で、貼り付けると固体になる」のに対し、粘着剤は「液体と固体の両方の性質を持ち、常に濡れた状態を安定して保っている」という違いがある。特に応力緩和効果、即ち、耐押圧特性を得るためにこの粘着性が重要である。また、封止効果の観点、特にその長期信頼性の観点からも、接着剤ではなく、粘着剤であることが必要である。粘着剤であるからこそ、本発明に係るシリコン合金封止層31との界面の密着性が長期に亘って維持できるのであり、例えば、フィルム32の端の部分で一時的な剥離が発生したとしても粘着剤であれば、前記密着性を回復できるのであり、接着剤では、一度剥離してしまえば、密着性が回復することは無い。加えて、例えば、85%RHのパネルの促進劣化試験において、湿気はまず、フィルムの端部から侵入することが知られており、この部分で剥離が生じ始めることとなるが、フィルムの中央部を粘着剤、端部だけを接着剤で封止した構造では、この端部剥離部分からの水分の浸入によりダークスポットが多数発生し、そのサンプルでは端部が剥離した状態となっており、剥離部の接着剤は硬化しており、密着性の回復は起こりえない。全面を粘着剤で封止した場合には、端部においても剥離は発生せず、ダークスポットの発生数が少ない結果となる。一時的に剥離しても再び粘着し、密着性が回復していることが原因と推測する。

10

20

30

40

【0059】

粘着剤の材料については、粘着剤層付きフィルムの製造者により適宜特性を選定して配合されるものであるが、粘弾性パラメーターが一定の範囲内の粘着剤が好ましい。即ち、本発明のパネルが実際に使用され、また、保管される温度範囲0~50において、周波数1Hzで測定した貯蔵弾性率が10<sup>3</sup>Pa以上、10<sup>6</sup>Pa以下であり、かつ、損失弾性率が貯蔵弾性率測定値の0.02~0.2倍であることが好ましく、より好ましい貯蔵弾性率は10<sup>4</sup>Pa以上、10<sup>5</sup>Pa以下である。

【0060】

なお、粘弾性率の虚数項が損失弾性率であり、粘着剤で貼り付けた場合の粘着点のズレに関するものであるが、粘着剤ではその値が貯蔵弾性率の0.02~0.2倍前後の値となるのに対して、接着剤ではこの数字が極めて小さい値となることが知られている。後述する比較例3で示すように、本発明に係る粘着剤層に代えて、接着剤であるエポキシ樹脂を接着剤層として用い、素子を封止した場合には、接着剤であるエポキシ樹脂の硬化に起因して素子が破壊され、ショートにより作られた時点から発光しない場合がある。

【0061】

このような粘着点のズレに関する損失弾性率は、上述の不点灯抑制効果に大きく関係する。即ち、素子に応力を与えたときに、一定の損失弾性率を有する粘着剤からなる層では、粘着点のズレが適度に生じて、応力を分散させつつ、シリコン合金封止層31との密着性は維持され、かつ、素子の破壊までには至らない。これに対して、このような粘着剤層に代えて接着剤層を用いた場合には、ズレが生じないので、応力は分散されず、前記密着性が失われたり、応力が直接かかって素子部分が破壊されたりすることとなる。

【0062】

フィルム基材32としては、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリ塩化ビニリデン(PVDC)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、ポリイミド、及び塩化ビニールからなる群から選ばれる1種の材料からなるフィルムの単層フィルム、又は積層フィルムが好ましく、これらの樹脂は厚みを増して水を保管するボトル等の材料となるものである。その平均厚みとしては、一定の水蒸気バリア性を確保し、かつ、パネル外装としての機械的強度が有し、さらに、素子側からのガス放出が可能な厚みであって、コストや入手性等も勘案して、15μm以上、100μm以下であることが好ましい。

【0063】

50

前記素子側からのガス放出について、シリコン合金絶縁層31を構成する、CVDで形成される窒素シリコン合金層311並びに塗布方法で形成される酸化シリコン合金層312は、アンモニア、水素等のガスを内包している場合がある。また、酸化シリコン合金層312の反応の際に用いる水分も微量ではあるが残留している。窒素シリコン合金層の場合では200程度で内包されているガスの発生があることが知られたり、たとえ、85程度でも長時間になるとガスが発生する場合がある。このような

場合にフィルム基材322や粘着剤層321にガス透過性が全く無いと粘着剤層321とこれと接する酸化シリコン合金層312との界面に気泡が発生し、一旦発生した気泡が恒常に残ることになる。この気泡は外観上と問題となるだけでなく、有機EL発光素子2の面内において温度に分布を発生させることとなり、その結果、発光領域内の輝度ムラ等を生じさせる場合がある。具体的には、気泡のある部分では他の部分よりも明るく光ったりすることとなり問題である。このため、上述したように、フィルム基材322には一定のガス放出性が必要であり、その平均厚みには好ましい上限がある。

【0064】

次に、本発明に係る有機EL発光パネルの製造方法について説明する。

【0065】

有機EL発光素子2は、真空蒸着装置及びCVD装置によって成膜し、製造されることが好ましい。

【0066】

続いて、有機EL発光素子2上に窒素シリコン合金層311を形成する。具体的には製膜範囲をマスクを用い制限すると共に露出させプラズマCVD法によって成膜する。原料ガスとしてモノシラン、アンモニア、水素、窒素等を用いて、100Pa前後の真空雰囲気の中でガスを放電させて膜を形成する。膜の特性は、製膜雰囲気の圧力、ガス組成、放電電力、製膜温度を適宜調整して所定の膜を得る。

【0067】

通常は、有機EL発光素子2と窒素シリコン合金層311は一連の真空装置が組み合わされた装置で大気圧力に戻さず真空中で形成する。以後の工程は大気中で行う。

【0068】

窒素シリコン合金層311は、大気に触れると大気と触れた界面近傍に酸素が入り、界面のみに酸窒化シリコンが形成される。酸化シリコン合金層は窒素シリコン合金層311上にポリシラザンを塗布して形成する。特段の処理をしなくても酸窒化シリコンが形成されているので、窒素シリコン合金層311と酸化シリコン合金層312の界面には強力な付着力が生じる。実際には、電極取出しの部分をマスキングテープなどでマスキングし、全体にポリシラザンを塗布する。

【0069】

塗布方法は、スピン法、フロー法、ロールコート法、希釈してスプレー法が用いられる。また、塗布雰囲気は乾燥空気、N<sub>2</sub>雰囲気あるいは真空中である。

【0070】

その後、オーブンなどの加熱・加湿装置を用いてベーキング処理し、ポリシラザンを反応させてSiO<sub>x</sub>を得る。

【0071】

さらに、粘着剤層付きフィルム32をフィルム貼付け装置で接着し、本発明の装置を得る。

【実施例】

【0072】

以下、本発明の具体的な実施例および比較例について説明する。

【0073】

(実施例1)

正方形状のガラス基板上に80mm×80mm(発光面積、即ち、発光領域の面積でもある。)の有機EL発光素子2を形成した後、本発明に係る無機有機積層保護層3を形成

10

20

30

40

50

し、さらに、透光性電極層 21 や裏面電極層 23 の延在部に、給電部材である FPC を ACF で接続することで、実施例 1 のパネルを 23 枚作成した。

【0074】

ここで、透光性電極層 21 の材料としてはITOを採用し、機能層 22 の構造としては電子注入層/電子輸送層/発光層/正孔輸送層/正孔注入層を採用し、裏面電極層 23 の材料としてはAlを採用し、窒素シリコン合金層 311 としては窒素を\*\*at%含み、かつ、平均厚み 2 μm のCVD法で形成したSiN:H膜を採用し、酸素シリコン合金層 312 としては酸素を\*\*at%含み、かつ、平均厚み 2 μm のSiO膜であって、イソプロピルアルコールにて 5% に希釈したポリシラザンをスプレー法にて塗布して乾燥することで形成したSiO膜を採用した。また、粘着剤層付きフィルム 32 としてはPET基材に平均厚み 6 μm のアクリル系粘着剤層を形成したものを採用した。その粘着剤の貯蔵粘弾性率は測定周波数 1 Hz にて  $2 \times 10^4$  Pa、損失粘弾性率は  $1 \times 10^3$  Pa であった。

10

【0075】

次に、このようにして作成したパネルの信頼性試験を行った。具体的には、パネルに 640 mA の定電流を流して発光させ、顕微鏡でダークスポットを観察した。

【0076】

ダークスポットとして、直径が 10 μm 以上の非発光箇所が存在するパネルをダークスポット有り、存在しないものをダークスポット無し、と判定した。また、このようにしてダークスポットの有無を確認したパネルを、槽内が 65% 、 85% RH の試験槽に移し、信頼性試験を行った。定期的に槽外に取り出して、640 mA の定電流で発光させて上述したのと同様の方法でダークスポットの発生の有無を調べた。この作業を繰り返して、パネル毎のダークスポットの存在の有無を調べた。結果を表 1 に示す。

20

【0077】

また、気温 25°C にて応力 20 N をパネルの後ろ側からその全面に 760 分印可する押圧試験を同じパネルで実施した。この結果も表 1 に示す。応力は鉄のおもりをパネルより大きな板を介してパネルの後ろ鉛直情報に載置することで発生させた。

30

【0078】

(比較例 1)

有機EL発光素子 2、窒素シリコン合金層 311、酸素シリコン合金層 312 を形成した後、粘着剤層付きフィルム 32 を張り付けないこと以外は実施例 1 と同様にして有機EL発光パネルを得た。同様に信頼性試験、押圧試験を行った。結果を表 1 に示す。

【0079】

(比較例 2)

実施例 1 と同様にして、有機EL発光素子 2、窒素シリコン合金層 311、酸素シリコン合金層 312 を形成した後、図 1 に示すガラス缶封止構造することで有機EL発光パネルを得た。同様に信頼性試験、押圧試験を行った。結果を表 1 に示す。

40

(比較例 3)

粘着剤層付きフィルム 32 の粘着樹脂層 321 を、25% 及び周波数 1 Hz における貯蔵弾性率が  $1 \times 10^7$  Pa のエポキシ樹脂接着剤に変更し、即ち、接着層付きフィルムとしたこと以外は実施例 1 と同様にして有機EL発光パネルを得た。同様に信頼性試験、押圧試験を行った。結果を表 1 に示す。

【0080】

【表1】

	初期 ダークスポット有り パネル数	試験後 ダークスポット有り パネル数	押圧後 不点灯発生 パネル数
実施例	0/23	1/23	0/23
比較例1	2/23	16/23	3/23
比較例2	0/23	1/23	19/23
比較例3	不点灯 22/23	不点灯 23/23	—

10

## 【0081】

本発明のパネルでは、ダークスポットの発生が抑えられ、また、押圧した場合の不点灯も抑えられている。

## 【0082】

比較例1のパネルでは、粘着剤層付きフィルム32が無いので、水分が有機EL発光素子2に入り込みダークスポットが増加した。また、押圧試験での不点灯の発生が生じた。

## 【0083】

比較例2のパネルでは、水分の侵入が抑えられているのでダークスポットの発生は抑制されたが、押圧試験ではガラス缶と有機EL素子との間の隙間が変形し、ガラスと有機EL発光素子2とが接触し素子が破壊され多くのパネルが不点灯となった。

## 【0084】

比較例3のパネルでは、エポキシと有機EL発光素子2との相性の問題か、形成した時点で不点灯となった。応力の発生が関係するものと考えている。

## 【0085】

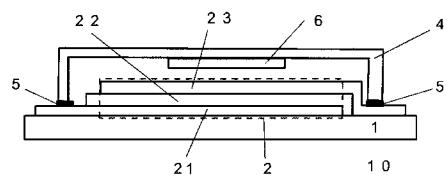
以上から、本発明のパネルは、従来のパネルに比べて、薄いパネルとできる封止構造で、かつ、耐押圧特性が大幅に改善されていることが判る。

## 【符号の説明】

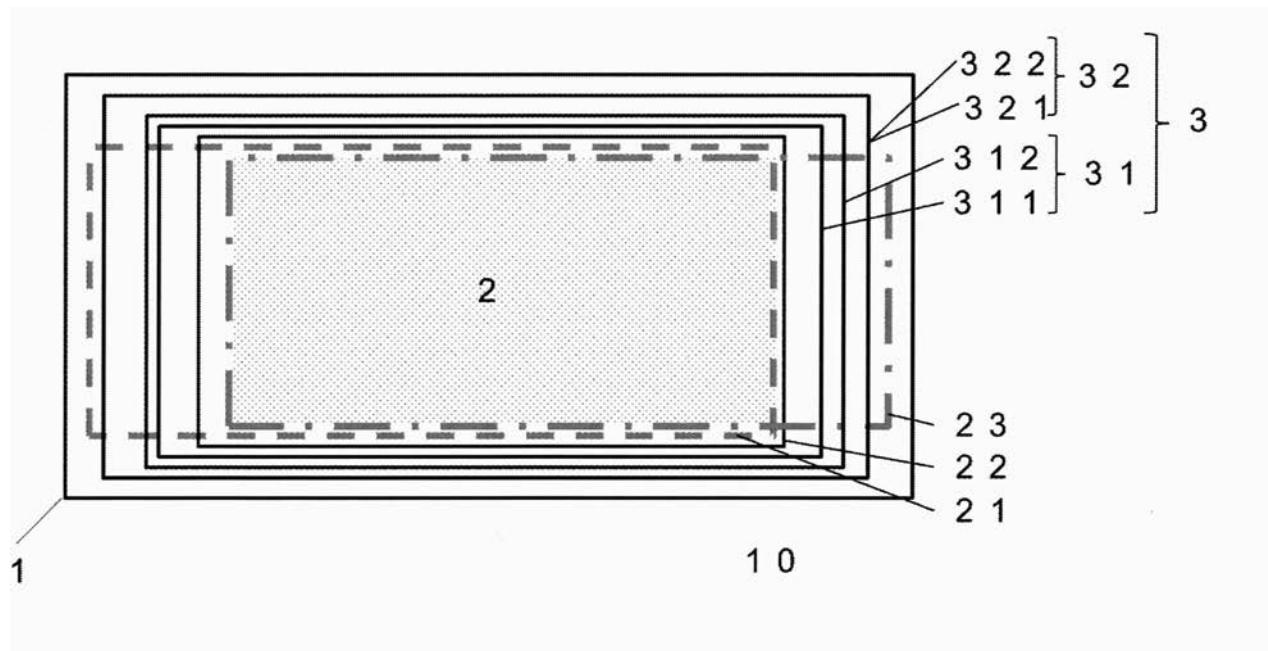
## 【0086】

1	透光性基板	30
2	有機EL発光素子	
2 1	透光性電極層	
2 2	機能層	
2 3	裏面電極層	
3	無機有機積層保護層	
3 1	シリコン合金封止層	
3 1 1	窒素シリコン合金層	
3 1 2	酸素シリコン合金層	
3 2	粘着剤層付きフィルム	
3 2 1	粘着剤層	40
3 2 2	フィルム基材	
1 0	有機EL発光パネル	

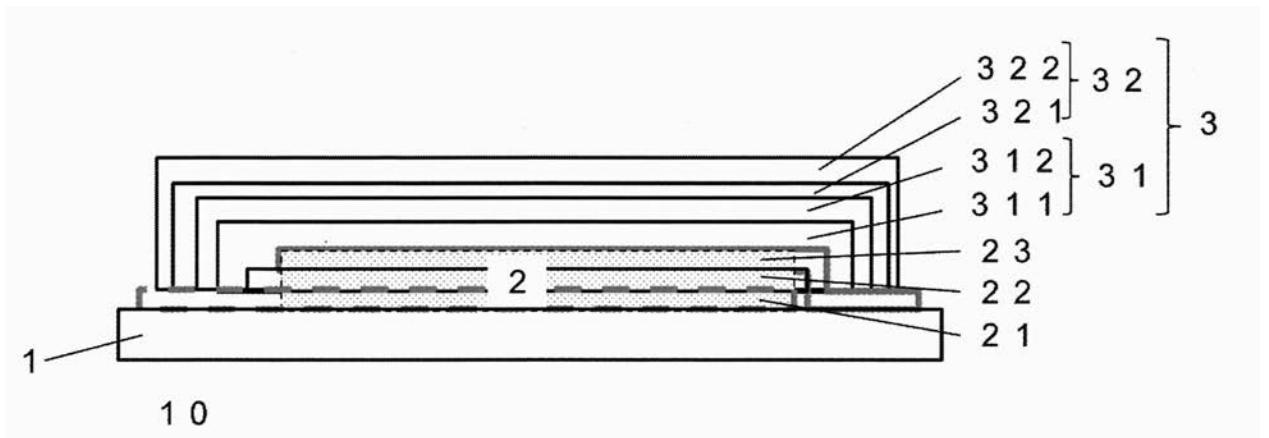
【図1】



【図2】



【図3】



专利名称(译)	有机EL发光板		
公开(公告)号	<a href="#">JP2016039085A</a>	公开(公告)日	2016-03-22
申请号	JP2014162889	申请日	2014-08-08
[标]申请(专利权)人(译)	钟渊化学工业株式会社		
申请(专利权)人(译)	Kaneka公司		
[标]发明人	近藤正隆 森清		
发明人	近藤 正隆 森 清		
IPC分类号	H05B33/04 H01L51/50 H05B33/02		
F1分类号	H05B33/04 H05B33/14.A H05B33/02		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC23 3K107/CC26 3K107/CC27 3K107/CC29 3K107/CC42 3K107/CC45 3K107/DD12 3K107/EE48 3K107/EE49 3K107/EE50 3K107/FF02 3K107/FF14 3K107/FF15		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

## 摘要(译)

解决的问题：提供一种高度可靠的有机EL发光面板，其中有效地防止了水分进入有机EL发光元件，并且减轻了压力施加到元件层上的影响。有机EL在平面图中包括在水蒸气透过性半透明基板(1)的一个主表面上的有机EL发光元件(2)和覆盖有机EL发光元件的整个表面的无机/有机层叠保护层(3)。发光面板10中，无机有机叠层保护层，硅合金密封层31和带有粘合剂层的膜32，粘合剂层321的材料，储能模量为103。-106Pa，并且损耗弹性模量是存储弹性模量测量值的0.02至0.2倍。[选择图]图3

(21)出願番号 特願2014-162889 (P2014-162889)  
 (22)出願日 平成26年8月8日 (2014.8.8)  
 (71)出願人 000000941  
 株式会社カネカ  
 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号  
 (72)発明者 近藤 正隆  
 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駒字弥栄平1  
 -82 OLED青森株式会社内  
 (72)発明者 森 清  
 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駒字弥栄平1  
 -82 OLED青森株式会社内  
 Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC23 CC26  
 CC27 CC29 CC42 CC45 DD12  
 EE48 EE49 EE50 FF02 FF14  
 FF15