

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公開特許公報 (A) (11)特許出願公開番号

特開2003 - 187972

(P2003 - 187972A)

(43)公開日 平成15年7月4日(2003.7.4)

(51)Int.Cl<sup>7</sup>

識別記号

F I

テームコード(参考)

H 0 5 B 33/10

H 0 5 B 33/10

3 K 0 0 7

33/14

33/14

A

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 10数)

(21)出願番号 特願2001 - 387199(P2001 - 387199)

(71)出願人 000002897

大日本印刷株式会社

東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

(22)出願日 平成13年12月20日(2001.12.20)

(72)発明者 岸本 比呂志

東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号 大

日本印刷株式会社内

(74)代理人 100075812

弁理士 吉武 賢次 (外3名)

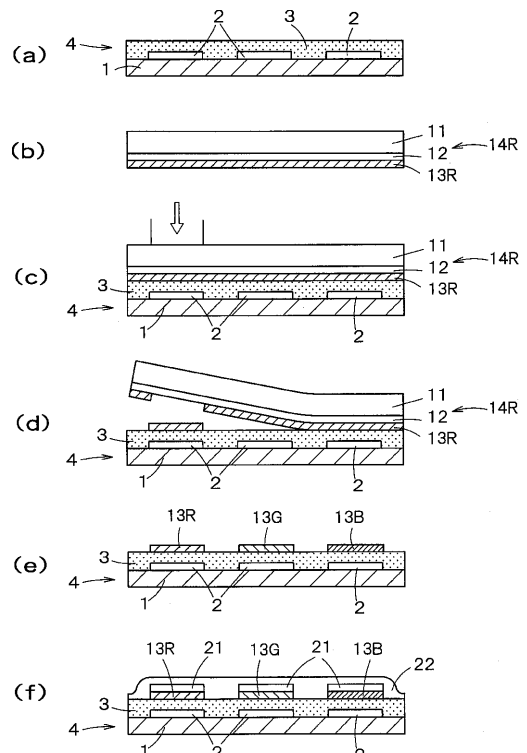
Fターム(参考) 3K007 AB03 AB11 AB18 DB03 FA01

(54)【発明の名称】 有機EL素子の製造方法および有機EL転写体と被転写体

(57)【要約】

【課題】 比較的低温の転写により簡易に高品質の有機EL素子を製造する方法と、これに用いる有機EL転写体、被転写体の提供。

【解決手段】 支持体と前記支持体上に剥離可能に形成されている発光層とを少なくとも有する転写体と、基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有する被転写体とを用いて、前記転写体の前記発光層側と、前記被転写体の前記電極側とを重ね合わせ、前記転写体から少なくとも前記発光層を前記被転写体上に部分的に転写する工程を有する有機EL素子の製造方法であって、前記転写体の前記被転写体に接する層、または、前記被転写体の前記転写体に接する層の少なくとも一方に、接着性向上物質が含まれる方法。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】支持体と前記支持体上に剥離可能に形成されている発光層とを少なくとも有する転写体と、基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有する被転写体、とを用いて、前記転写体の前記発光層側と、前記被転写体の前記電極側とを重ね合わせ、前記転写体から少なくとも前記発光層を前記被転写体上に部分的に転写する工程を有する有機EL素子の製造方法であって、

前記転写体の前記被転写体に接する層、または、前記被転写体の前記転写体に接する層の少なくとも一方に、接着性向上物質が含まれてなることを特徴とする、有機EL素子の製造方法。

【請求項2】前記接着性向上物質が含まれている層が、前記転写体または前記被転写体の少なくとも一方に形成された正孔輸送層、電子輸送層または発光層である、請求項1に記載の有機EL素子の製造方法。

【請求項3】前記支持体と前記発光層との間に、電子輸送層または正孔輸送層が形成されている、請求項1に記載の有機EL素子の製造方法。

【請求項4】支持体と前記支持体上に剥離可能に形成されている発光層とを少なくとも有する転写体であって、前記転写体の被転写体に接する層に、接着性向上物質が含まれていることを特徴とする、転写体。

【請求項5】前記接着性向上物質が含まれている層が、正孔輸送層、電子輸送層または発光層である、請求項4に記載の転写体。

【請求項6】基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有する被転写体であって、前記被転写体の転写体に接する層に、接着性向上物質が含まれていることを特徴とする、被転写体。

【請求項7】前記接着性向上物質が含まれている層が、電子輸送層または正孔輸送層である、請求項6に記載の被転写体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、転写法を用いた有機EL素子の製造方法と、それに用いる有機EL転写体と被転写体に関する。

## 【0002】

【従来の技術】有機EL素子は自発光型の素子であり、視野角が広く、低電圧駆動が可能で、高輝度であり、構成層が液晶素子と比べて少なく、製造するのが容易であり、薄形化できる等の長所を有している。このような有機EL素子は液晶ディスプレイの次の表示素子として注目されており、カラー表示素子を作成するにあたり、各色に発光する有機EL材料を微細パターンで選択的に形成することが重要な技術課題となっている。

【0003】現在、このような有機EL素子を用いたカラー表示素子を作製する方法としては、3種の方式が知

られている。第1は白色に発光する有機EL材料とカラーフィルターを組み合わせる方法である。第2は青色発光の有機EL素子とこの素子の青色を赤色、緑色に変換する色変換層を用いる色変換方式である。第3は赤(R)、緑(G)、青(B)それぞれに発光する有機EL材料をそれぞれ独立に配置する方式である。この3種の方式のうちで、有機EL素子の発光を効率良く利用できる方法は第3の方法であり、第1、2の方法では発光の利用効率は3分の1程度と非常に低利用効率である。

【0004】しかしながら、この第3の方式では、有機EL材料が一般にウエットプロセスに非常に弱いため、フォトリソ技術を用いた高精細化が実現困難である問題がある。このため、第3の方式でR、G、Bを独立に配置させるには、シャドウマスクを用いた蒸着方法が一般に行われている。しかしながら、この方式ではシャドウマスクの微細加工が困難なこと、またシャドウマスクがパターンが微細であれば微細であるほどシャドウマスクが薄くならざるを得ず、シャドウマスクの伸び縮みや、蒸着の回り込みなどによって、正確な蒸着成膜が困難であること、等の多くの問題点がある。

【0005】またこの第3の方式において、有機EL発光材料の転写による微細パターン塗り分けが特開平12-011216号公報、特開平12-077182号公報等に開示されている。しかしながら、これらの方法は基本的に発光材料を昇華させて転写させる昇華転写方式であって、昇華性の発光材料を転写体に形成するには蒸着する必要があり、有機EL材料の中でも低分子材料を用いるのには適した方法ではあるが、高分子材料を用いたものには適していない。また前記のシャドウマスクを用いた蒸着によるR、G、Bのパターニング方式も同様に低分子材料には適した方法であるが、高分子材料には適さない方法である。さらに、昇華転写では昇華した材料が発散して非形成部にまで及び、混色などの問題を生じてしまう。

【0006】また、熔融転写等の昇華転写方式以外の転写による有機EL素子の製造方法は、手間がかかる方法である。例えば特開平12-011216号公報に開示のように、転写体作製に高熱伝導性シートに凸状突起を形成し、その上に有機材料を形成するというように転写体作製に手間がかかってしまう。さらに特開平12-077182号公報に記載の方法も、転写体が格子状又は帯状の低熱伝導部とその内部の高熱伝導部からなることにより、転写体作製が非常に困難であることなど満足な転写方法とはいえない。特に高分子の有機EL材料を用いたカラー表示素子の製造方法では有効な方法は現在まで見られていない。

【0007】有機EL素子を転写によって作成する方法において、転写体が支持体/光熱変換物質を含む剥離層/有機EL転写層(有機発光層)からなるものを用いた

場合は、有機EL転写層と被転写体のとが接する層の転写特性により、しばしば有機EL転写層だけではなく剥離層まで一緒に転写されてしまうことがある。このように剥離層まで一緒に転写されてしまうと、転写後にカソードを形成してEL素子を作成したとしても発光が得られないか、発光特性が大きく劣化してしまう。実際のところ、EL材料のみが被転写体に転写される転写条件（温度、光量、転写スピードなどのパラメーターに関する）の領域は極めてわずかな領域であるか、またはこのような領域がないかであり、転写における高効率なEL素子の作成は非常に困難である。この領域が小さな場合には様々な外的なばらつき要因により生産性や歩留まりが下がり、または製造条件設定が困難となる問題が生じるので、この領域を発見させ、拡大することが求められる。

【0008】また、高分子の有機EL材料は熱に弱く、ガラス転移点以上の温度を加えると、発光特性が劣化し、さらに高温のゴム弾性領域以上で著しく劣化し、加えて有機EL素子とした時の素子寿命の低下ということが起る。しかしながら、高分子の有機EL材料を有機EL転写体、被転写体に用いる場合は、転写体または被転写体に用いられる材料のゴム弾性領域近辺の温度を加えなければ転写できず、転写することにより、必然的に有機EL素子の寿命、発光特性が低下してしまうという問題が残っている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、比較的低い温度での有機ELの転写による製造法を実現することにより、特に有機EL材料に熱に弱い高分子材料を用いる場合であっても、寿命、発光効率の劣化のない高品質の有機EL素子を得られる簡易な製造方法、その製造に用いる有機EL転写体、被転写体を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者は、有機EL転写体の転写体の被転写体に接する層（最上層）に、接着性向上物質を添加すること、または被転写体の被転写体の転写体に接する層（最上層）に接着性向上物質を添加することにより、上記課題を解決できることを見出した。

【0011】したがって、本発明の有機EL素子の製造方法は、支持体と前記支持体上に剥離可能に形成されている発光層とを少なくとも有する転写体と、基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有する被転写体とを用いて、前記転写体の前記発光層側と、前記被転写体の前記電極側とを重ね合わせ、前記転写体から少なくとも前記発光層を前記被転写体上に部分的に転写する工程を有する有機EL素子の製造方法であって、前記転写体の前記被転写体に接する層または前記被転写体の前記転写体に接する層の少なくとも一方に、接着性向上

物質が含まれてなることを特徴とする方法である。

【0012】

【発明の実施の形態】有機EL素子の製造方法

（製造方法）本発明の有機EL素子の製造方法は、転写法を用いる方法であって、転写の際に接する層の少なくとも一方に、接着性向上物質が含まれてなる方法である。そして、転写体は支持体と前記支持体上に剥離可能に形成されている発光層とを少なくとも有する。被転写体は、基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有する。この転写工程以外は、一般的なEL素子の製造方法を用いて製造することができる。

【0013】（本発明の方法により製造される有機EL素子）本発明の方法により製造される有機EL素子は、例えば電極と、電極上に形成された発光層などからなる有機EL層と、前記有機EL層上に形成された他方の電極から少なくともなることができる。有機EL層は、発光層単層でもよいが、さらに正孔輸送層、電子輸送層等を適宜組み合わせて、多層構造にすることが好ましい。また、ブラックマトリクスなど、画素間に遮光層を設けることもできる。また、好ましくは、R、G、Bのそれぞれの色に発光する有機発光材料を有機EL転写層とした3種類の有機EL転写体を、1つの被転写体の各々の色に対応した場所に転写することによりフルカラー有機EL素子を製造することができる。

【0014】（有機EL転写体および被転写体の構成）

このような有機EL素子の製造に用いられる有機EL転写体に設けられる有機EL転写体は、有機発光材料を含む発光層を少なくとも有する。そして転写体の被転写体に接する層、または、被転写体の転写体に接する層の少なくとも一方に、接着性向上物質が含まれる。

【0015】このような有機EL転写体および被転写体の構成有機EL素子の作成方法としては例えば、

有機EL転写体が支持体 / 剥離層 / 電子注入層 / 有機EL発光層

有機EL被転写体が基体 / 第1電極 / 正孔輸送層からなり（発光層および / または正孔輸送層に接着性向上物質を添加）、正孔輸送層上に有機EL発光層と電子注入層を転写した後、電子注入層上に第2電極を形成して有機EL素子を作成する。

【0016】

有機EL転写体が支持体 / 剥離層 / 有機EL発光層

有機EL被転写体が基体 / 第1電極 / 正孔輸送層からなり（発光層および / または正孔輸送層に接着性向上物質を添加）、正孔輸送層上に有機EL発光層を転写した後、有機EL発光層上に電子注入層を形成し、さらに電子注入層の上に第2電極を形成して有機EL素子を作成する。

【0017】 有機EL転写体が支持体 / 剥離層 / 正孔輸送層 / 有機EL発光層

有機EL被転写体が基体 / 第1電極 / 電子輸送層

からなり（発光層および/または電子輸送層に接着性向上物質を添加）、電子輸送層上に有機EL発光層と正孔輸送層を転写した後、正孔輸送層上に第2電極を第1電極と直交して形成し有機EL素子を作成する。

【0018】有機EL転写体が支持体/剥離層/有機EL発光層/電子輸送層

有機EL被転写体が基体/第1電極

からなり（電子輸送層に接着性向上物質を添加）、アクティブ電極である第1電極（陰極）上に電子輸送層と有機EL発光層を転写した後、有機EL発光層上正孔輸送層を形成し、その上に第2電極（陽極）を第1電極と平行して形成し有機EL素子を作成する。

【0019】などが挙げられる。

【0020】以下、図を用いながら本発明の有機EL素子の製造方法の一例を説明する。

【0021】図1(a)のように、透明な基体1上にITO電極2がパッシブ電極としてライン状に形成され、その上に接着性向上物質入り正孔輸送層3が形成された被転写体4を用意する。一方、図1(b)のように支持体11上に剥離層12を介して赤色有機EL発光層13Rを設けた赤色転写体14Rを用意し、同様に緑色有機EL発光層13Gを設けた緑色転写体14G、および青色有機EL発光層13Bを設けた青色転写体14Bを用意する。次に図1(c)のように赤色転写体14Rの赤色発光層13R側と、被転写体4の正孔輸送層3側とを重ね合わせ、転写させる部分のみ密着加熱させて転写する。次に図1(d)のように赤色転写体14Rを剥離する。同様に、順次緑色転写体14Gを用いて緑色発光層13Gを転写し、青色転写体14Bを用いて青色発光層13Bを被転写体4に転写すると図1(e)のように赤、緑、青3色の発光層が被転写体4上に形成される。その後、その後図1(f)のように陰極21を形成して封止缶22をUV硬化性樹脂接着剤で封止をすることで有機ELカラーディスプレイを作成できる。

【0022】（転写時の密着加熱）本発明の有機EL素子の製造にあたっては、転写時に密着加熱を行う。この密着加熱にあたっては、転写したい領域のみを部分的に加熱する方法、転写したい領域のみを部分的に密着する方法、転写したい領域のみを部分的に密着しつつ加熱する方法のいずれの方法を採用することもできる。

【0023】密着加熱手段としては、例えば、サーマルヘッド、熱光源、レーザー光、ヒートロール、熱プレス、パターンニングしたマスクを用いる手段、またはこれらを組み合わせた手段などが挙げられる。

【0024】パターンニングしたマスクを用いる場合には、例えば開口部とリブ部からなるマスク、低熱伝導部と高熱伝導部からなるマスク、光吸収し発熱する部分と光吸収せず発熱しない部分からなるマスクから選ばれるマスクを用いることができる。

【0025】転写時の加熱は、有機EL転写層のみが転

写される温度領域で、温度や加熱スピード、加熱時間を制御調整することにより高効率EL素子が製造できる。

【0026】なお、有機EL発光層は一般に水分、酸素によって劣化することから、転写は、湿度の極力少ないドライルームや、窒素雰囲気中に制御されたグローブボックス内で行うことが好ましい。また、真空下で転写し、そのまま真空下で真空蒸着により電極を形成することも好ましい。

【0027】接着性向上物質

本発明においては、有機EL転写体または被転写体の最上層の少なくとも一層に、接着性向上物質を混入することによって転写温度を低下させることができ、有機EL素子の発光特性、素子寿命を熱により劣化させることなく、有機EL素子を作成できる。

【0028】好ましくは、有機EL発光材料に不純物が混入すると発光特性劣化が起ることがあるので、最上層が有機EL発光層である場合には、接着性向上物質を有機EL発光層には添加せずに、他方の最上層に添加することが好ましい。例えば上記例のように有機EL転写体が支持体/剥離層/電子注入層/有機EL発光層、有機EL被転写体が基体/第1電極/正孔輸送層である場合、および例のように有機EL転写体が支持体/剥離層/有機EL発光層、有機EL被転写体が基体/第1電極/正孔輸送層との構成であるならば、被転写体の最上層である正孔輸送層に接着性向上物質を添加し、転写体の最上層である有機EL発光層には添加しないことが好ましい。

【0029】このような接着性向上物質としては、粘接着性を発現し、有機EL転写層、被転写層のガラス転移温度(Tg)よりも低いTgを発現する材料であれば、特に限定されない。このTgは低いほど好ましい。好ましくはこのTgは、-50～50である。

【0030】また、本発明における接着性向上物質は、分子量が低いほうが、一般に粘接着性が増すので好ましいが、低すぎると例えば上記例において正孔輸送層にのみ接着性向上物質を添加した場合にも、転写の加熱時に、有機EL発光層にまで接着性向上物質が移動してしまい、発光特性を劣化させる原因にもなることがある。そのため接着性向上物質の分子量は、1000～10万が好ましい。

【0031】また、接着性向上物質としては、溶剤系に可溶性材料、水分散材料、水溶性材料のいずれも用いることができる。水分散材料を用いる場合には、材料の粒径が粗いと有機EL材料の膜面が粗くなり、素子寿命の劣化が起ることがあるので、材料の粒径は細かい方が好ましい。この場合、接着性向上物質の粒径は10μm以下が好ましい。

【0032】このような接着性向上物質として用いられる材料としては例えば以下のものが挙げられる。

【0033】水分散系の材料

ポリエステルエマルジョン：（東洋紡（株）パイロ  
ナルシリーズ）

アイオノマーエマルジョン：（三井化学（株）ケミ  
パールシリーズ）

エチレンと酢酸ビニル共重合体エマルジョン：（中央  
理化工業（株）アクアテックスシリーズ）

溶剤系材料

エチレンと酢酸ビニル共重合体系材料：（三井デュボン  
（株）ポリケミカルEVA150、EVA250）

アクリルポリオール系材料：（綜研化学（株）U230 10  
- T、SU-28）

このような接着性向上物質を添加して形成した転写体の  
最上層や被転写体の最上層を組み合わせるにより転  
写温度を低下できる。特に高分子の有機EL材料を用い  
る場合、有機EL材料はTg以上の温度を加えることで  
発光特性、素子寿命が劣化、ゴム弾性領域以上で更に劣  
化することがあるので、有機EL材料のゴム弾性領域以  
下で転写できるような組み合わせを選ぶことが好まし  
い、さらに有機EL材料のTg以下で転写できるように  
選択することがより好ましい。

#### 【0034】有機EL転写体

（有機EL転写層）本発明の有機EL転写体には、有機発  
光材料を含む発光層を少なくとも有し、他に任意の層を  
有する転写可能な層（これらの層をまとめて有機EL転  
写層とよぶ）が設けられる。このような層としては、例  
えば好ましくは加熱によって溶融または軟化する有機発  
光材料からなる層が挙げられる。

【0035】本発明における有機EL転写層の最上層に  
は、好ましくは（被転写体の最上層が接着性向上物質を  
含まない時には必ず）接着性向上物質を混入し、好まし  
くは加熱によって軟化する層とする。これにより転写温  
度を低下させ、界面の密着性が向上することにより、有  
機EL素子の発光特性を向上させることができる。

【0036】また、発光層に加えさらに正孔輸送層、電  
子輸送層等を適宜組み合わせて、多層構造にすることも好  
ましい。この場合、最上層は発光層の他に正孔輸送層な  
どであることができる。

【0037】この転写体の最上層と被転写体の最上層の  
組合せにより転写温度が変化するが、有機EL材料およ  
びEL素子は比較的高温に弱いので、材料のTg以上、 40  
溶融点以下で転写することが好ましい。

【0038】（支持体）支持体は熱に強い材料が求められ  
る。具体的には支持体のTgが転写温度以上であるのが  
好ましいが、耐熱性処理をした支持体、例えばPETフ  
ィルムであってもよい。また、支持体は好ましくは剥離  
層をコーティングしやすい性質のものとするが、支持体  
上にプライマー層を形成することにより剥離層をコーテ  
ィングしやすいものとすることもできる。

【0039】（プライマー層）本発明の有機EL転写体に  
設けることのできるプライマー層は、支持体と剥離層と 50

の間に設けることのできる層であり、支持体とも剥離層  
とも相性が良く、支持体上に剥離層がコーティングしや  
すい材料からなるものであればよい。このようなプライ  
マー層は、例えば、剥離層形成時に、塗布均一性等の塗  
布性を向上させるなどの効果を有する。

【0040】（剥離層）本発明の有機EL転写体には、好  
ましくは剥離層を設けることができる。この剥離層とし  
ては、通常の転写に用いるものを用いることができる。  
好ましくは、有機EL層転写層が溶剤系材料である場  
合には、有機EL転写体製造において剥離層上に有機EL  
層をコーティングするために、水溶性ポリマーから選  
ばれるものである材料が好ましい。このようなものとし  
ては、具体的には例えばPVA（ポリビニルアルコー  
ル）を含むものが挙げられる。しかしながら、溶剤系の  
ポリマーも可能である。

【0041】このように、剥離層に有機EL転写層との  
剥離性のよい材料を用いることによって、有機EL転写  
層を軟化状態で被転写体に密着させることで比較的低温  
で転写させEL素子を作製することができる。

20 【0042】好ましくは剥離層自体に以下の光を熱に変換  
する光熱変換物質を含有させることができる。

【0043】光熱変換物質としては、用いる光源に応  
じ、光を吸収し効率良く熱に変換する物質が好ましい。  
例えば近赤外線の半導体レーザーを光源として用いる場  
合は近赤外線に吸収帯を有する物質が好ましく、具体的  
にはカーボンブラック、グラファイト、フタロシアニン  
系色素、スクアリウム系色素、クロコニウム系色素、ア  
ズレニウム系色素、ニトロソ化合物及びその金属錯塩、  
ポリメチン系色素、ジチオール金属錯塩系色素、トリア  
ールメタン系色素、インドアニリン金属錯体色素、ナフ  
トキノン系色素、アントラキノン系色素等が挙げられ  
る。

【0044】光熱変換物質とともに用いることのできる  
バインダーとしては、例えばPVAが挙げられる。その  
他に、ガラス転移点が高く、熱伝導率の高い樹脂、例え  
ばポリメタクリル酸メチル、ポリカーボネート、ポリス  
チレン、エチルセルロース、ニトロセルロース、ポリ塩  
化ビニル、ポリアミド、ポリイミド、ポリエーテルイミ  
ド、ポリスルホン、アラミドなどの一般的な耐熱性樹脂  
を使用することもできる。この中でも水溶性ポリマーは  
有機EL転写層との剥離性もよく好ましい。

【0045】このような光熱変換層を設けることによ  
り、例えばレーザー転写を容易に行うことができるよう  
になる。

【0046】（発光層）本発明において有機EL発光層  
に使用する有機発光材料としては、例えば以下のものが  
挙げられる。

【0047】色素系材料としては、例えば、シクロペン  
タジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、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、シロール誘導体、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、トリフマニルアミン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマーが挙げられる。

【0048】金属錯体系材料としては、例えば、アルミニキノロール錯体、ベンゾキノロールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾール亜鉛錯体、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、等、中心金属に、Al、Zn、Be等または、Tb、Eu、Dy等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、キノリン構造等を有する金属錯体が挙げられる。

【0049】高分子系材料としては、例えば、ポリパラフェニレンピニレン誘導体、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等、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素系、金属錯体系発光材料を高分子化したものが挙げられる。

【0050】発光層中に発光効率の向上、発光波長を変化させる等の目的でドーピングを行うことができる。このドーピング材料としては例えば、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、ピラゾリン誘導体、デカシレン、フェノキサゾンが挙げられる。

#### 【0051】被転写体

(被転写体)本発明の有機EL素子の製造方法に用いられる被転写体は、基体と前記基体上に形成されている電極とを少なくとも有し、有機EL転写体からの転写を受けて有機EL素子の少なくとも一部を構成する部材である。このような被転写体の最上層には、好ましくは(転写体の最上層が接着性向上物質を含まない時には必ず)接着性向上物質を混入することができる。これによりさらに転写温度を低下、例えば120とすることができ、界面の密着性が向上することにより、有機EL素子の発光特性を向上させることができる。また、接着性向上物質の混入によって、剥離層、光熱変換層と一緒に転写されてしまうことなく有機EL転写層のみが転写できる範囲が広がるため、転写が好適に行うことのできる範囲が広がり、転写を安定して行うことができる。

【0052】(基体)本発明の方法において製造される有機EL素子を構成する基体は、所望により透明材料からなることができるが、不透明材料であってもよい。

【0053】(第1電極)本発明の被転写体に設けられる電極(第1電極)は、電極は通常の有機EL素子に用いられるものであれば限定されず、所望によりパターンニングすることができる。また、被転写体に設けられる電

極は、陽極と陰極のいずれでもよいが、陽極と陰極のどちらか一方が、透明または、半透明であり、陽極としては、正孔が注入し易いように仕事関数の大きい導電性材料が好ましく、逆に陰極としては、電子が注入し易いように仕事関数の小さい導電性材料が好ましい。また、複数の材料を混合させてもよい。いずれの電極も、抵抗はできるだけ小さいものが好ましく、一般には、金属材料が用いられるが、有機物あるいは無機化合物を用いてもよい。

【0054】具体的な好ましい陽極材料としては、例えば、ITO、酸化インジウム、金が挙げられる。好ましい陰極材料としては、例えばマグネシウム合金(MgAg他)、アルミニウム合金(AlLi、AlCa、AlMg他)、金属カルシウムおよび仕事関数の小さい金属が挙げられる。

【0055】転写体または被転写体に設けることのできる層

(電子輸送層および正孔輸送層)本明細書における電子輸送層および正孔輸送層とは、広義のものであり、一般に電子輸送層、正孔輸送層と呼ばれるものの他に電子注入層、正孔注入層、バッファ層等と呼ばれる層も含めて用い、実際に電荷を輸送するためのものと仕事関数の差をなだらかにして、電荷が移動しやすくするための層を含むものとして用いる。これらの層が、転写体または被転写体の最上層にあるときは、接着性向上物質を含むことが好ましい。またこれらの電子輸送層、正孔輸送層は、例えば特願平9-155284号明細書に記載のもののように、EL素子に一般に用いられるものであれば特に限定されない。

【0056】なお、以上の層を構成する材料は、それぞれ単独で使用してもよいし、混合して使用してもよい。混合は、同じ性質を持つ材料でも異なる性質を有する材料同士でもよい。さらに、これらの材料を含む層は1層でも複数層でもよい。

#### 【0057】第2電極

本発明においては、一方の電極(第1電極)を被転写体に設けるが、他方の電極(第2電極)は、転写後に形成しても転写体に形成してもよい。電極は通常の有機EL素子に用いられるものであれば限定されず、所望によりパターンニングされている。また、第2電極は、陽極と陰極のいずれでもよいが、陽極と陰極のどちらか一方が、透明または、半透明であり、陽極としては、正孔が注入し易いように仕事関数の大きい導電性材料が好ましく、逆に陰極としては、電子が注入し易いように仕事関数の小さい導電性材料が好ましい。また、複数の材料を混合させてもよい。いずれの電極も、抵抗はできるだけ小さいものが好ましく、一般には、金属材料が用いられるが、有機物あるいは無機化合物を用いてもよい。

【0058】具体的な好ましい陽極材料としては、例えば、ITO、酸化インジウム、金が挙げられる。好まし

い陰極材料としては、例えばマグネシウム合金 (Mg Ag 他)、アルミニウム合金 (Al Li、Al Ca、Al Mg 他)、金属カルシウムおよび仕事関数の小さい金属が挙げられる。

【0059】

【実施例】実施例1

(被転写体Aの作成) ガラス基板上にパターン化されたITOを設け、その上に正孔輸送層(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ネート水分散液(略称PEDOT:BAYERN P)をスピ

ンコートにより塗布、150で10分間乾燥させ被転写体Aを得た。  
【0060】(被転写体Bの作成) 被転写体Aの場合と同様のITO付き基板上に、PEDOTにポリエステルエマルジョンを両溶液の固形分比が4:1となるような量に調整した溶液をスピコートにより塗布、150

で10分間乾燥させ被転写体Bを得た。  
【0061】(転写体aの作成) 支持体となるPETフィルムにプライマー層としてCAN OHPプライマー(ザ・インテック(株)製)をワイヤーバー#4で塗

布し、90で1分間オープンで乾燥しプライマー層を形成した。  
【0062】次に剥離層形成溶液である、TMRS04クリア液(PVA溶液、インテック(株)製)を同じくワイヤーバー#4で塗布し、90で1分間オープンで乾燥し剥離層を形成した。

【0063】その後、以下の緑色EL発光層形成溶液を膜厚100nmとなるようにスピコートにより塗布し、その後90で30分間乾燥させ緑色EL発光層用の転写体aを得た。

【0064】同様に以下の赤色EL発光層形成溶液を膜厚100nmとなるようスピコートして赤色EL発光層用の転写体aを得た。さらに同様に以下の青色EL発光層形成溶液を膜厚100nmとなるようスピコートして青色EL発光層用の転写体aを得た。

【0065】

緑色EL発光層形成溶液

- ・ ポリビニルカルバゾール 7重量部
- ・ 発光色素(G)クマリン6 0.1重量部
- ・ オキサジアゾール化合物 3重量部
- ・ トルエン 5050重量部

赤色EL発光層形成溶液

- ・ ポリビニルカルバゾール 7重量部
- ・ 発光色素(R)ナイルレッド 0.1重量部
- ・ オキサジアゾール化合物 3重量部
- ・ トルエン 5050重量部

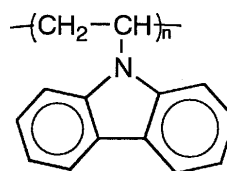
青色EL発光層形成溶液

- \*・ ポリビニルカルバゾール ... 7重量部
- ・ 発光色素(B)ベリレン化合物... 0.1重量部
- ・ オキサジアゾール化合物 ... 3重量部
- ・ トルエン ... 5050重量部

これらは以下のような構造式を有する。

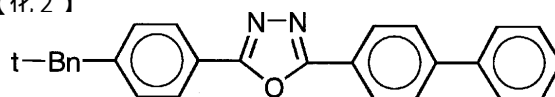
【0066】ポリビニルカルバゾール(アナン(株)製、Lot.K81127を使用した)

【化1】



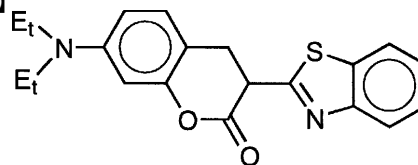
オキサジアゾール化合物(和光純薬工業(株)製を使用した)

【化2】



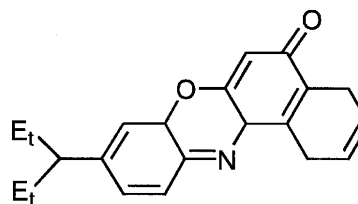
発光色素(G)クマリン6(Aldrich.Chem.Co.製を使用した)

【化3】



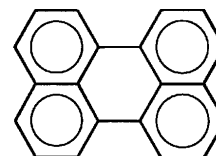
発光色素(R)ナイルレッド

【化4】



発光色素(B)ベリレン化合物

【化5】



(転写工程) 次にこの転写体と被転写体を密着させて転写する工程を行った。転写にあたっては熱プレス装置を用い、更にシャドーマスクのような220μmのリブ部に開口部80μmの金属のできたマスク(厚さ90μm)を用い、下から被転写体/転写体/マスクの順に密着するように重ね、その上から130に加熱した熱プレスで圧着転写した。同様に150、200で転写したのもも作製した。

【0067】圧着後、転写体、被転写体を冷却してから、剥離した。

【0068】被転写体Aを用いて転写したものについては130では転写せず、150、200で転写したものは、パターン状に転写が行われた。

【0069】被転写体Bについては、130でもパターン状の転写が確認できた。

【0070】(有機EL素子の作成)またこれらの素子について、被転写体のパターン上に積層された発光層上に、Caを200、Agを2500蒸着した。

【0071】ITOおよびAg電極をアドレス電極として、各素子を駆動させ発光特性を調べたところ、130で転写した素子は3.5Vで発光を開始、150で転写したものは5.5Vで発光を開始、200で転写したものは14Vで発光を開始した。このように、発光最高輝度、効率共に、低温で転写したもののほど高い値であった。

【0072】実施例2

被転写体AおよびBを実施例1と同様な方法により作成した。

【0073】(転写体bの作成)支持体となるPETフィルムに、プライマー層として、CAN OHPプライマー(インテック(株)製)をワイヤーバー#4で塗布し、90で1分間オープンで乾燥しプライマー層を形成した。

【0074】次に剥離層兼光熱変換層形成溶液である、TMR904墨(インテック(株)製TMR904クリアーにカーボンブラックを混ぜたもの)を同じくワイヤーバー#4で塗布し、90で1分間オープンで乾燥し剥離層兼光熱変換層を形成した。

【0075】実施例1と同様に有機EL発光層形成溶液をスピコートにより塗布し、その後90で30分間真空乾燥させ転写体bを得た。

【0076】(転写工程)次にこの転写体bと被転写体とを被転写体上に転写体をかぶせ真空吸引することによって真空密着させた。その後YAGレーザーを転写させたい場所に照射し、その部位のみを転写した。

【0077】被転写体Aを用いた場合は、レーザーパラメーターをどのように変えても、有機EL転写層が転写しないか有機EL転写層と剥離層兼光熱変換層と一緒に転写されてしまい、発光する素子を得られなかった。

【0078】被転写体Bを用いた場合は、レーザー電流値9~11A、レーザー照射速度100~200mm/sの範囲でEL層のみの転写が可能であった。

【0079】(有機EL素子の作成)その後パターン状に積層された発光層上にCaを200、Agを2500蒸着しITOおよびAg電極をアドレス電極として各素子を駆動させて発光特性を調べたところ2.8Vで発光開始、最大輝度6000cd発光効率2lm/wの素子を得た。

【0080】実施例3

(被転写体Cの作成)ガラス基板上にITOをパッシブ電極としてライン状に形成し、その上に接着性向上物質入り正孔輸送層形成溶液を膜厚が80nmとなるようにスピコートにより塗布、150で10分間乾燥させ被転写体Cを得た。

【0081】接着性向上物質入り正孔輸送層形成溶液は、正孔輸送層形成溶液である、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ネート水分散液(略称PEDOT/PSS、商品名Baytron P、バイエル(株)製)と接着性向上物質として、ポリエステルのエマルジョン(バイロナール:MD1930東洋紡績(株)製)を固形分比にして5:2の割合で混合分散を行ったものを用いた。

【0082】(被転写体Dの作成)接着性向上物質入り正孔輸送層形成溶液から接着性向上物質を除いたもの(PEDOT:PSSのみの液)を塗布し80nmの膜厚とすること以外は被転写体Cと同様な方法により被転写体Dを得た。

【0083】(転写体cの作成)支持体となるPETフィルムにプライマー層としてCAN OHPプライマー(ザ・インクテック(株)製)をワイヤーバー#4でコーティングを行い、90で5分間乾燥した。

【0084】次に剥離層兼光熱変換層としてPVAにカーボンブラックを混ぜたTMR#904墨(ザ・インクテック(株)製)を同じくワイヤーバー#4でコーティングし、90で5分間乾燥を行った。

【0085】その後、緑色EL発光層形成溶液を膜厚100nmとなるようにスピコートし、緑色EL発光層用の転写体を得た。

【0086】同様に青色EL発光層形成溶液、赤色EL発光層形成溶液を膜厚100nmとなるようスピコートして青色EL発光層、赤色EL発光層用の転写体を得た。

【0087】緑色EL発光層形成溶液

ポリピニルカルバゾール	70重量部
オキサジアゾール化合物	30重量部
クマリン6	1重量部
1,2ジクロロエタン	3367重量部

赤色EL発光層形成溶液

ポリピニルカルバゾール	70重量部
オキサジアゾール化合物	30重量部
ナイルレッド	1重量部
1,2ジクロロエタン	3367重量部

青色EL発光層形成溶液

ポリピニルカルバゾール	70重量部
オキサジアゾール化合物	30重量部
ペリレン化合物	1重量部

10  
20  
30  
40  
50

### 1, 2ジクロロエタン 3367重量部

1, 2ジクロロエタンは純正化学製を使用した(転写工程)発光層のパターニングは、OPT POWER CORPORATION製のOPC-A001を用い(λ=790nm)レーザー転写で行った。

【0088】このレーザー装置に大出力LDパルス変調駆動装置ALP-7402PA(株式会社旭データシステム製)、XYステージ等を組み合わせ、ソフトウェアも独自に開発したものをを用い、レーザー転写したいところにレーザーが当たるように制御した(ソフトウェアの制御により、XYステージを動作、レーザーパルス駆動の駆動の仕方で、レーザー照射部、レーザー照射量を制御して、転写したいパターン上に転写を行った。)転写体と被転写体の密着は、真空ポンプを用いたガラス製の真空治具を作成し、この転写体と被転写体とを治具に挟み込んで真空ポンプで治具内を真空引きすることによって行った。

【0089】このような転写体と被転写体の転写体方向からレーザーを、緑色発光層形成部分、青色発光層形成部分、赤色発光層形成部分と順にソフトウェアの制御によりライン状に照射し、ラインパターンが連なった。

【0090】(有機EL素子の作成)その後パターン状に積層された発光層上にCaを100、Agを3000蒸着し、ITOおよびAg電極で各素子を駆動させて発光特性を調べたところ、2.5Vで発光開始、最大輝度10000cdで発光効率は最大値2.5lm/Wの素子が得られた。

### 【0091】

【発明の効果】本発明によって、比較的低い温度の転写を用いた有機ELの製造法を実現することができる。特に熱に弱い高分子材料を有機EL材料として用いる場合であっても、寿命および発光効率の劣化のない高品質の有機EL素子が簡易に得られる有機EL素子の製造方法、その製造に用いる有機EL転写体、被転写体を提供することができる。特に、剥離層と光熱変換層を有する有機EL転写体を用いてレーザー転写を行う場合、有機EL転写層のみが剥離する条件領域が発現しもしくは広がり、レーザー転写での素子作成を容易、可能にする。

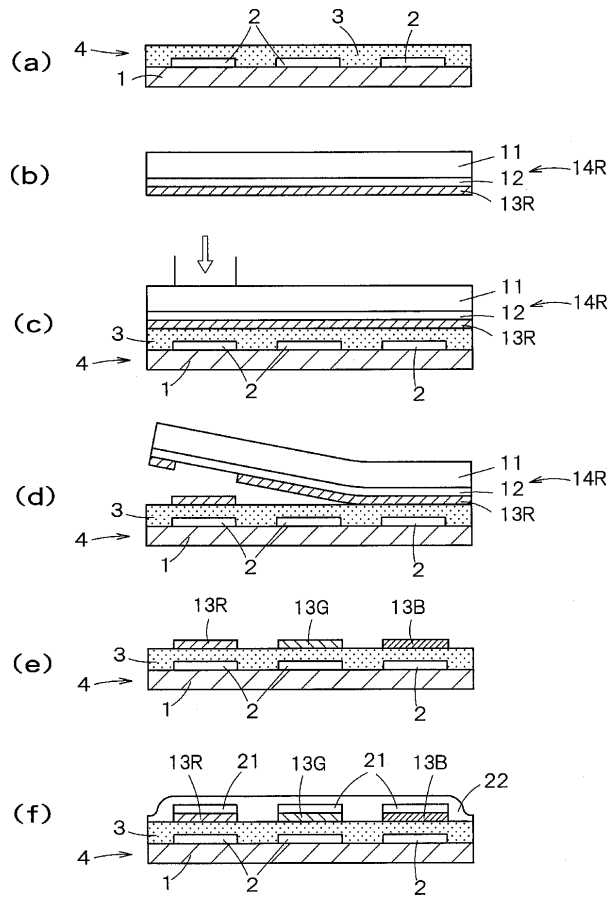
### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL素子の製造方法の一例を示す図である。

### 【符号の説明】

- 1 透明基体
- 2 ITO電極(陽極)
- 3 正孔輸送層
- 4 被転写体
- 11 支持体
- 12 剥離層
- 13R 赤色有機EL発光層
- 13G 緑色有機EL発光層
- 13B 青色有機EL発光層
- 14R 赤色転写体
- 21 陰極
- 22 封止缶

【図1】



专利名称(译)	制造有机EL器件和有机EL转移构件的方法和转移材料		
公开(公告)号	<a href="#">JP2003187972A</a>	公开(公告)日	2003-07-04
申请号	JP2001387199	申请日	2001-12-20
[标]申请(专利权)人(译)	大日本印刷有限公司		
申请(专利权)人(译)	大日本印刷有限公司		
[标]发明人	岸本比吕志		
发明人	岸本比吕志		
IPC分类号	H05B33/10 H01L27/32 H01L51/40 H01L51/50 H01L51/56 H05B33/14		
CPC分类号	H01L51/0013 H01L27/3211 H01L27/3281 H01L51/5048 H01L51/56 Y10T428/28 Y10T428/2817		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/14.A		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB11 3K007/AB18 3K007/DB03 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC03 3K107/CC24 3K107/CC35 3K107/CC45 3K107/DD58 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/GG09		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

解决的问题：提供一种通过在较低的温度下进行转印来容易地制造高质量的有机EL元件的方法，以及用于该方法的有机EL转印体和被转印体。使用至少包括支撑体和形成在支撑体上以可剥离的发光层的转印体以及至少包括基底和在该基底上形成的电极的转印靶。以及一种有机EL，其具有将转印体的发光层侧与被转印体的电极侧重叠，并且至少将发光层从转印体部分地转印到被转印体上的步骤。一种用于制造元件的方法，其中，与所述转移目标接触的所述转移构件的层和与所述转移目标接触的所述转移目标的层中的至少一层包含粘附力改善物质。

