

(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2002－141174
(P2002－141174A)

(43)公開日 平成14年5月17日(2002.5.17)

(51)Int.Cl ⁷	識別記号	F I	テ-マコード [*] (参考)
H 0 5 B 33/26		H 0 5 B 33/26	Z 3 K 0 0 7
33/10		33/10	
33/14		33/14	B

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 5 数)

(21)出願番号 特願2000－334255(P2000－334255)

(22)出願日 平成12年11月1日(2000.11.1)

(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
(72)発明者 関根 徳政
東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内
(72)発明者 甲斐 輝彦
東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内
(72)発明者 清水 貴央
東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内

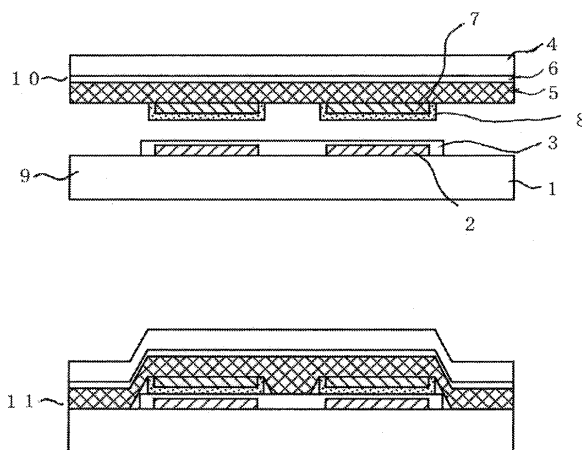
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高分子E L素子

(57)【要約】

【課題】発光パターンによらず容易にかつ素子の機械的強度を向上させる高分子E L素子の構造を提供する。

【解決手段】少なくとも一方が透明または半透明の2つの電極2，7間に高分子発光層が挟持された高分子E L素子において、少なくとも一方の電極が熱可塑性接着性樹脂層5上に形成する。なお、熱可塑性接着性樹脂が、ポリエチレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体またはポリプロピレンのいずれかの酸変性樹脂からなることも含まれる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも一方が透明または半透明の2つの電極間に高分子発光層が挟持された高分子EL素子において、少なくとも一方の電極が熱可塑性接着性樹脂層上に形成されてなることを特徴とする高分子EL素子。

【請求項2】前記熱可塑性接着性樹脂が、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体またはポリプロピレンのいずれかの酸変性樹脂からなることを特徴とする請求項1に記載の高分子EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機薄膜のエレクトロミネセンス（以下単にELという）現象を利用した有機薄膜EL素子、特に有機発光層が高分子材料からなる高分子EL素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、一般に陽極、有機発光層、陰極とが積層されてなる。また、有機発光層は、正孔注入層、正孔輸送層、蛍光体層、電子注入層などが積層された多層構造とすることもできる。この陽極、陰極間に電流を流すことにより有機蛍光体層で発光が生じ、一方の電極を透明にすることで外部に光を取り出すことができる。

【0003】有機発光層の典型的な例としては、正孔注入層に銅フタロシアニン、正孔輸送層にN, N'-ージ（1-ナフチル）-N, N'-ージフェニル-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、蛍光体層にトリス（8-キノリノール）アルミニウムをそれぞれ用いたものが挙げられる。これらの有機発光層はいずれも低分子の化合物であり、各層は0.01~0.1μm程度の厚みで抵抗加熱方式などの真空蒸着法などによって積層される。このため、低分子材料を用いる有機薄膜EL素子の製造のためには、複数の蒸着釜を連結した真空蒸着装置を必要とし、蒸着時の加熱による材料劣化のために生じる発光特性の低下や生産性が低い、製造コストが高いなどの問題点があった。

【0004】さらに有機発光層は低分子の蒸着物であるため膜の強度が弱く、そのため陰極となるアルミニウム、マグネシウム、銀などの金属材料も真空蒸着またはスパッタリングなどの真空製膜装置を必要とし、装置面から生産性、コスト面で実用化の障害となっていた。また、真空製膜では陰極層にピンホールなどの欠陥が発生しやすく、このピンホールから水分や酸素などが侵入し素子の劣化が生じるなど、素子の寿命低下の一因となっていた。

【0005】これに対し、近年、有機層として高分子を用いた高分子EL素子が提案されてきている。有機層として高分子を用いるもので、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などの高分子中に低分子の蛍光色素を溶解させたものや、ポリフェニ

レンビニレン誘導体（PPV）、ポリアルキルフルオレン誘導体（PAF）などの高分子蛍光体を用いられる。これら高分子発光体は、溶液に可溶とすることでスピニングコート、フレキソ印刷、グラビア印刷などの湿式法で基材上に製膜することができる。

【0006】しかしながら、高分子EL素子を複数の所定のパターンで発光させるためには、透明導電層および陰極層をパターンニングする必要がある。前者については基材上に形成された透明導電層を従来のエッチング法によりパターンニングすることができるのに対し、後者については簡便に行う方法がなかった。すなわち、陰極をパターンニングする方法の一つは、陰極蒸着時に蒸着マスクを用いる方法であるが、蒸着装置を必要とすること、蒸着基材をマスクパターンと合わせて間歇に送る必要があるため生産性に劣り、基材側のパターンとの位置合わせが困難である、マスクのサイズを大きくするとマスク強度が不足してマスクがたるんでしまい、パターンがぼけるなどの欠点を有していた。

【0007】また、基板上にあらかじめ隔壁を設けて、陰極蒸着時にこの隔壁の段差や蒸着影によって陰極を分離する方法が知られているが、高分子EL素子のようにコーティングによって発光層を形成すると、前記の隔壁が埋まってしまうなどにより、隔壁としての働きが不十分となるなどの問題点があった。また、連続的なフィルム基板を用いる場合には、実質的に隔壁を形成できないという問題があった。

【0008】さらに、他の方法として、陽極層が形成された陽極基材と陰極層を形成した陰極層基材とを別に形成し、この陽極層および陰極層をそれぞれエッチング法によってパターンニングし、高分子発光層を挟持するように陽極基材と陰極基材とをラミネートする方法が提案されている。この方法では、少なくとも発光画素部に設けられる正孔輸送層や発光層などの有機材料層を正極ないし負極基材の一方または両方にあらかじめ形成したのちに、熱または圧力などによってラミネートして一体の素子構造とするものである。しかしながら、非画素部については別の工程で熱硬化性または光硬化性の接着剤を塗布する必要があり、微細な画素を形成する場合には実質的に接着剤を塗布することができず、また、硬化前の接着剤からの溶剤などの揮発成分が、画素部分の発光材料などを劣化させるなどの問題があった。また、陰極および正極のみをパターンニングして高分子EL素子を構成する有機材料を全面に製膜してラミネート層とすると、有機材料の層が薄いことや密着性が低いなどの点から、素子の機械的強度が低いという欠点を有していた。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記の通り、ラミネートによって高分子EL素子を製造する方法において、発光パターンによらず容易にかつ素子の機械的強度を向上させる高分子EL素子の構造を提供するこ

とを目的としてなされたものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記の課題に鑑みてなされたものであって、請求項1は、少なくとも一方が透明または半透明の2つの電極間に高分子発光層が挟持された高分子EL素子において、少なくとも一方の電極が熱可塑性接着性樹脂層上に形成されてなることを特徴とする高分子EL素子であり、請求項2は、前記熱可塑性接着性樹脂が、ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体またはポリプロピレンのいずれかの酸変性樹脂からなることを特徴とする高分子EL素子である。

【0011】本発明における高分子EL素子の2つの電極は、それぞれ基材上に形成されており、少なくとも透明または半透明の一方の電極は、透明または半透明の基材上に形成されてなる。

【0012】前記基材としては、ガラス基板やプラスチック製のフィルムまたはシートを用いることができる。プラスチック製のフィルムまたはシートを用いれば、巻き取りにより高分子EL素子の製造が可能となり、より安価に素子を提供することができる。プラスチックフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、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、ポリカーボネートなどを用いることができ、また、これらの積層体を用いることができる。また、導電層を製膜しない側に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、エチレンー酢酸ビニル共重合体鹼化物などの他のガスバリア性フィルムを積層したり、カラーフィルター層を印刷により設けたりしても良い。

【0013】透明電極としては、インジウムと錫の複合酸化物（以下ITOという）などを用いることができ、前記基板上に蒸着またはスパッタリング法により製膜することができる。また、オクチル酸インジウムやアセトンインジウムなどの前駆体を基材上に塗布後、熱分解により酸化物を形成する塗布熱分解法などにより形成することもできる。また、透明導電層としてインジウムと亜鉛との複合酸化物、亜鉛アルミニウム複合酸化物などを用いることができる。あるいは、アルミニウム、金、銀などの金属が半透明状に蒸着されたものを電極として用いることができる。

【0014】また、他の電極としては、前記透明または半透明の電極を用いても良く、アルミニウム、カルシウム、バリウム、金、銀などの金属または合金を用いることができる。

【0015】上記電極を熱可塑性接着性樹脂層上に形成するためには、前記電極材料を真空蒸着法、スパッタリング法などで熱可塑性接着性樹脂層が形成された基材上に製膜すればよい。前記基材としては、熱可塑性接着性

樹脂からなるフィルムやポリエステル、ポリプロピレン、ナイロン、ポリカーボネート、ポリエーテルサルホンなどのフィルムおよびガラスなどの上に熱可塑性接着性樹脂がコーティングされたものを用いることができる。

【0016】また、他の製造方法として、金属箔と熱可塑性接着性樹脂とを熱ラミネートにより貼り合わせても良い。この際、熱可塑性接着性樹脂層の他の面にポリエステルなどのフィルムを貼り合わせても良い。

【0017】熱可塑性接着性樹脂としては、常温で粘性がなく、加熱により溶融して接着性を示す材料を用いることができ、ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体、ポリプロピレンなどの無水マレイン酸などによる酸変性体やエチレンーアクリル酸共重合体、エチレンーエチルアクリレートー無水マレイン酸共重合体、エチレンーグリシジルメタクリレート共重合体、アイオノマー、線状飽和ポリエステル樹脂、ポリウレタンなどを用いることができるが、ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体、ポリプロピレンの酸変性体が耐酸ーアルカリ性、耐溶剤性、低アウトガスなどの点で良好である。

【0018】これらの熱可塑性樹脂は、溶液からのコーティング、押出コーティング、ドライラミネート、熱ラミネートなどの方法によりポリエステルなどの上記と同様の基材上に設けることができ、上述の通り、他方の面に電極を形成することができる。

【0019】基材上に形成された電極は、公知のウェットエッチング法、ドライエッチング法により所定のパターンにパターンニングすることができる。熱可塑性接着性樹脂層上に形成された電極をエッチングすることにより、非画素部には熱可塑性接着性樹脂層が表面に露出する。また、電極のエッチング後にUV処理、UVオゾン処理、コロナ処理、プラズマ処理などの表面処理を行うことができる。

【0020】本発明に用いることのできる高分子発光層は、高分子蛍光体の単層であっても、正孔輸送層、高分子蛍光体層などからなる多層構造であってもよい。正孔輸送層を設ける場合は、銅フタロシアニンやその誘導体、1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N'-ジフェニルーN, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニルー4, 4'-ジアミン、N, N'-ジ(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルー1, 1'-ビフェニルー4, 4'-ジアミン等の芳香族アミン系などの低分子も用いることができるが、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が、湿式法による製膜が可能であり、より好ましい。

【0021】高分子蛍光体層としては、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などの蛍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などの高分子中に溶解させたものや、ポリアリールビニレン系やポリフルオレン系などの高分子蛍光体を用いることができる。

【0022】これらの高分子蛍光体層は、トルエン、キシレン、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、水などの単独または混合溶媒に高分子蛍光体材料を溶解させ、スピンコート、スプレーコート、フレキシ、グラビア、マイクログラビア、凹版オフセットなどのコーティング、印刷方法を用いて全面またはパターン状に製膜することができる。

【0023】本発明からなる高分子EL素子は、前記2つの基材上に形成された電極上の一方または両方に前記高分子発光層を前記コーティングまたは印刷法により形成し、両者を対向させて加熱と同時に圧力をかけてラミネートすることで構成することができる。前記高分子発光層を多層構造とする場合には、ラミネート界面が多層構造の層界面となるようにしても、同一材料が配置されるようにしても良い。このラミネートによって、画素部については高分子発光層の熱融着により、非画素部については熱可塑性接着性樹脂の接着性により素子がラミネートされ機械的強度に優れた高分子EL素子を製造することができる。ラミネートは、加熱されたプレスやロールを用いて行うことができ、密着性を向上させるために真空下で行うことも可能である。

【0024】以下、実施例により本発明を具体的に述べるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

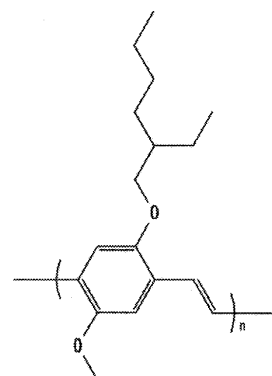
【0025】

【実施例】（実施例1）以下、図1を用いて説明する。ITO付きガラス基板（1）のITO（2）を所定のパターンにエッチングし、透明な正極電極基板とした。次いで、高分子発光層の正孔輸送層（3）としてポリ（3, 4）エチレンジオキシチオフェン／ポリスチレンスルフォネート（バイトロンP、バイエル社製）を厚さ0.05 μmとなるようスピンコートした。また、2軸延伸ポリエステルフィルム50 μm（4）と熱可塑性接着性樹脂（5）として酸変性ポリプロピレンフィルム50 μm（アドマーフィルムQE060、東セロ社製）とをドライラミネートし、この熱可塑性接着性樹脂層上にアルミニウム（7）を厚さ0.1 μmとなるように所定のパターンのマスクを介して真空蒸着し、本発明からなる熱可塑性接着性樹脂層上に負極電極を作製した。この負極電極上に印刷法により高分子発光層の高分子蛍光体層（8）として、下記化学式で表されるポリフェニレンビニレン誘導体（MEH-PPV）を厚さ0.1 μmで*50

*設けた。

【0026】

【化1】



【0027】次いで、前記正極電極基板（9）の正孔輸送層側と前記負極電極基板（10）の高分子蛍光体層側とを対向させ、真空下、150℃、10分間ラミネートし本発明からなる高分子EL素子（11）を得た。この素子に8Vの電圧を印加したところ110 cd/m²の発光が得られた。また、この素子に衝撃を加えたが、素子が剥離するなどはなかった。

【0028】（実施例2）ITO付きポリエステルフィルム（100 μm）のITOを所定のパターンにエッチングし、以下実施例1と同様に正孔輸送層を設け、正極側部材とした。また、負極側としてポリエステルフィルム50 μmとアルミニウム箔7 μmとを酸変性ポリエチレン樹脂（アドテックスER523L；日本ポリオレフィン社製）30 μmで押出ラミネートした。このアルミニウム箔を所定のパターンにエッチングして本発明からなる熱可塑性接着性樹脂層上に負極電極を作製した。以下実施例1と同様に高分子蛍光体層を形成し、負極側部材とした。前記、正極側、負極側部材の高分子発光層を合わせ、熱ロール間に通してラミネートし高分子EL素子を作製した。この素子に8Vの電圧を印加したところ、80 cd/m²の発光が得られた。また、この素子を屈曲させてもラミネート間で剥離することはなかった。

【0029】

【発明の効果】本発明においては、一方の電極を接着性樹脂層上に形成することにより、容易に機械的強度の高い高分子EL素子を構成することができる。

【0030】

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の高分子EL素子の一実施例を示す説明図である。

【符号の説明】

- 1・・・ガラス
- 2・・・ITO
- 3・・・正孔輸送層
- 4・・・2軸延伸ポリエステルフィルム

7

5 . . . 熱可塑性接着性樹脂層

6 . . . 接着剤層

7 . . . 陰極層

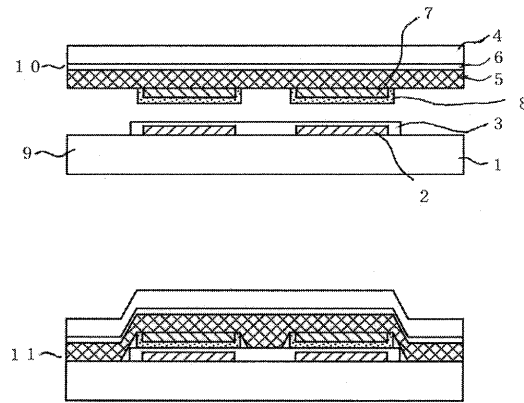
8 . . . 高分子蛍光体層

9 . . . 正極電極基板

10 . . . 負極電極基板

11 . . . 高分子EL素子

【図1】



专利名称(译)	高分子EL素子		
公开(公告)号	JP2002141174A	公开(公告)日	2002-05-17
申请号	JP2000334255	申请日	2000-11-01
[标]申请(专利权)人(译)	凸版印刷株式会社		
申请(专利权)人(译)	凸版印刷株式会社		
[标]发明人	関根徳政 甲斐輝彦 清水貴央		
发明人	関根 徳政 甲斐 輝彦 清水 貴央		
IPC分类号	H05B33/26 H01L51/50 H05B33/10 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/26.Z H05B33/10 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K007/AB18 3K007/CA01 3K007/CA06 3K007/CB01 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EA01 3K007/EB00 3K007/FA02 3K107/AA01 3K107/CC45 3K107/DD16 3K107/DD17 3K107/DD60 3K107/EE10 3K107/EE45		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供一种聚合物EL元件的结构，无论发光图案如何，该元件都可以容易地提高元件的机械强度。 解决方案：在聚合物EL器件中，其中聚合物发光层夹在两个电极2和7之间，其中至少一个是透明或半透明的，在热塑性粘合剂树脂层5上形成至少一个电极。顺便提及，热塑性粘合剂树脂可以由任何酸改性树脂制成，例如聚乙烯，乙烯 - 乙酸乙烯酯共聚物或聚丙烯。

