

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 6 月 27 日 (27.06.2013)



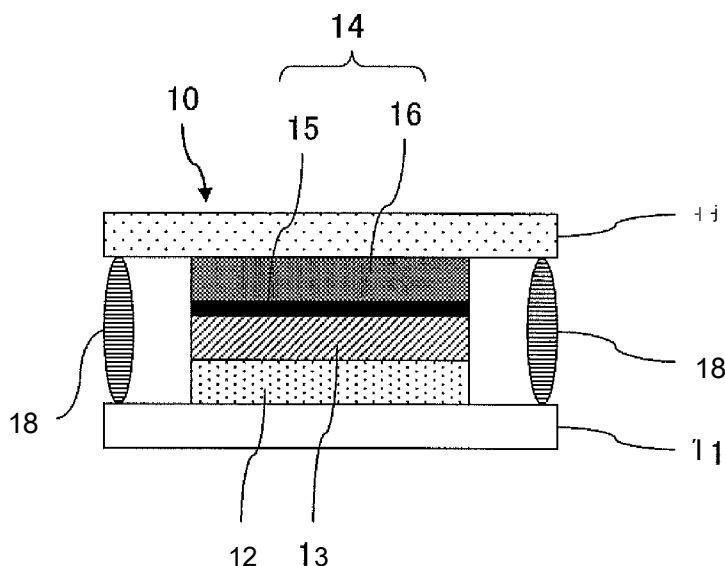
(10) 国際公開番号
WO 2013/094375 A 1

- (51) 国際特許分類 :
H05B 33/10 (2006.01) H05B 33/06 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01) H05B 33/26 (2006.01)
- (21) 国際出願番号 : PCT/JP20 12/080693
- (22) 国際出願日 : 2012 年 11 月 28 日 (28.11.2012)
- (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 201 1-279898 201 1 年 12 月 21 日 (21.12.201 1) JP
- (71) 出願人 : 昭和電工株式会社 (SHOWA DENKO K.K.)
[JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3 番 9 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者 : 名取 伸浩 (NATORI, Nobuhiro); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3 番 9 号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP). 皆川 春香 (MINAGAWA, Haruka); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3 番 9 号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP). 福地 陽介 (FUKUCHI, Yousuke); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3 番 9 号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP).

- (74) 代理人 : 特許業を法人 S S I - N P A T (SSINPAT PATENT FIRM); 〒141003 1 東 3/4 都品川区西五反田七丁目 1 3 番 6 号 五反田山崎ビル 6 階 Tokyo (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, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

- (54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT
- (54) 発明の名称 : 有機発光素子の製造方法



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a method for manufacturing an organic light emitting element having excellent light emitting efficiency, said method making it possible to efficiently inject electrons from a cathode to an organic compound layer, and to reduce damages to the organic compound layer at the time of manufacturing the organic light emitting element. This method for manufacturing an organic light emitting element wherein a first substrate, an anode, an organic compound layer that includes a light emitting layer, and a light reflecting cathode are laminated in this order is characterized in that a step of forming the cathode includes: an Al thin layer forming step, wherein an Al thin layer having a thickness of 0.1-10 nm is formed adjacent to the organic compound layer; and a metal layer laminating step, wherein a metal layer having a thickness of 70 nm-10 μm is laminated adjacent to an Al thin layer surface on the reverse side of the surface adjacent to the organic compound layer. The method is also characterized in that the Al

thin layer forming step is performed in a vacuum of 1×10^{-8} to 1×10^{-2} Pa, and that the Al thin layer forming step is held in the vacuum of 1×10^{-8} to 1×10^{-2} Pa until the metal layer is laminated adjacent to the Al thin layer in the metal layer laminating step.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2013/094375 A1



添付公開書類：

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

本発明は、陰極から有機化合物層に効率的に電子注入を行うことが可能であり、有機発光素子を製造する際の有機化合物層へのダメージが低減された、発光効率に優れる有機発光素子の製造方法を提供することを目的とする。本発明の有機発光素子の製造方法は、第 1 の基板、陽極、発光層を含む有機化合物層、および光反射性の陰極がこの順で積層された有機発光素子の製造方法であって、前記陰極を形成する工程が、有機化合物層に隣接して、厚さ $0.1 \sim 10 \text{ nm}$ の Al 薄層を形成する Al 薄層形成工程と、Al 薄層の有機化合物層に隣接する面とは反対の面に隣接して、厚さ $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を積層する金属層積層工程とを含み、Al 薄層形成工程を $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中で行い、Al 薄層形成工程で得られた Al 薄層を、金属層積層工程により該 Al 薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中に保持することを特徴とする。

明 細 書

発明の名称 : 有機発光素子の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、陽極と陰極の間に挟まれた有機化合物層に電圧を印加することにより発光する有機発光素子の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 有機発光素子は、陽極と陰極との間に有機化合物からなる発光層等の有機化合物層が挟まれた構造を有し、自発光や低消費電力の特徴からディスプレイや照明への応用が期待されている。有機発光素子は、陽極および陰極からそれぞれ正孔および電子が発光層へ注入され、これらの電荷が再結合する際に生じるエネルギーを発光材料が吸収し、発光する。

[0003] 一般に陰極から発光層への電子の注入障壁を下げると駆動電圧も低下するため、陰極を形成する材料としては仕事関数の小さい金属が用いられる。また発光層から放射される光を陽極側から有機発光素子の外部へ取り出す場合には、陰極が光を反射することで発光効率を向上させることができる。このような陰極として従来は、真空蒸着法などにより有機化合物層上に形成された100nm程度の厚さのアルミニウム (Al) 膜が用いられてきた (例えば、特許文献1参照)。しかし真空蒸着法によりAlを成膜するためには、通常高いエネルギーが必要であるため、陰極形成時に有機化合物層、特に陰極との界面付近の有機化合物層が劣化し、発光効率の低下や、発光面内の輝度が不均一になるといった問題があった。

[0004] Alの陰極を有機層上に直接成膜しなければ、上記のようなAlを成膜する際の有機化合物層へのダメージを抑えることができる。例えば特許文献2に開示されているように、陰極を別途基板上に真空蒸着法により成膜した後で有機化合物層に密着させれば、有機層を高エネルギーに曝すことなく陰極が形成される。しかし基板上に成膜されたAl膜の表面は、たとえ真空中であっても劣化するため、この表面を有機化合物層へ密着させても効率的な電

子注入ができず、依然として発光効率が低いという問題があった。なお、該劣化は不可避免的に存在する極微量の残存ガスなど起因すると考えられる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1 :特表平 10 — 5 1 1 7 1 8 号公報

特許文献2 :特開平 9 — 7 7 6 3 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、上記従来技術の有する課題を鑑みてされたものであり、陰極から有機化合物層に効率的に電子注入を行うことが可能であり、かつ有機発光素子を製造する際の有機化合物層へのダメージが低減された、発光効率に優れる有機発光素子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

[0007] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討を行った結果、有機化合物層の表面に、真空中で直接成膜する薄いA 1 層と、該A 1 層の表面に真空中でさらに金属層を設けた積層膜からなる陰極は、A 1 の高い電子注入効率と、陰極の光反射性が維持されるとともに、有機化合物層への陰極形成時のダメージが抑制され、発光効率が高く、発光面内の輝度分布が均一な有機発光素子が得られることを見出し、本発明を完成させた。

[0008] すなわち、本発明の有機発光素子の製造方法は、例えば以下の (1) ~ (7) に関する。

[0009] (1) 第1の基板、陽極、少なくとも発光層を含む有機化合物層、および光反射性の陰極がこの順で積層された有機発光素子の製造方法であつて、前記光反射性の陰極を形成する工程が、

(i) 前記有機化合物層に隣接して、厚さが0.1~10nmのA 1 薄層を形成するA 1 薄層形成工程と、

(ii) 前記A 1 薄層の、前記有機化合物層に隣接する面とは反対の面

に隣接して、厚さが $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を積層する金属層積層工程とを含み、

前記 A I 薄層形成工程を $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中で行い、前記 A I 薄層形成工程で得られた A I 薄層を、前記金属層積層工程により該 A I 薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中に保持する、有機発光素子の製造方法。

[001 0] (2) 前記 A I 薄層形成工程が、前記有機化合物層の表面に真空蒸着法により前記 A I 薄層を形成する工程であり、

前記金属層が、Ag、Sb、In、Mg、Mn、Pb および Zn からなる群より選択される少なくとも 1 種の金属またはその合金からなり、

前記金属層積層工程が、前記 A I 薄層の表面に真空蒸着法により前記金属層を形成する工程である、(1) に記載の有機発光素子の製造方法。

[001 1] (3) 前記金属層積層工程が、第 2 の基板上に形成された厚さが $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を、前記第 2 の基板とともに前記 A I 薄層に密着させることで積層する工程である、(1) に記載の有機発光素子の製造方法。

[001 2] (4) 前記金属層が、Ag、Al および Rh からなる群より選択される少なくとも 1 種の金属または合金からなる、(3) に記載の有機発光素子の製造方法。

[001 3] (5) 前記陰極を形成する工程が、前記金属層積層工程の後に、前記金属層を前記第 2 の基板から剥離する工程を含む、(3) または (4) に記載の有機発光素子の製造方法。

[0014] (6) 前記有機発光素子が、前記第 1 の基板上の少なくとも外縁部の一部を含む領域に、前記陰極を電源に電気接続するための端子部を有し、

前記第 2 の基板が、前記金属層と同一の面上に、前記金属層と同じ金属からなり、前記金属層に電氣的に接続した配線部を有し、

前記金属層積層工程において、前記端子部と前記配線部とを電氣的に接続する、(3) または (4) に記載の有機発光素子の製造方法。

[001 5] (7) 前記有機化合物層が、前記 A I 薄層に隣接したアルカリ金属また

はアルカリ金属化合物を含む電子輸送層を有する、(1) ~ (6) のいずれか一項に記載の有機発光素子の製造方法。

発明の効果

[0016] 本発明の有機発光素子の製造方法により製造された有機発光素子は、発光効率が高く、発光面内の輝度分布が均一である。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の有機発光素子の製造方法により製造される有機発光素子の一例を示す断面概略図である。

[図2]本発明の有機発光素子の製造方法により製造される有機発光素子の一例を、端子部、配線部を含めて示した断面概略図である。

[図3]本発明の有機発光素子の製造方法により製造される有機発光素子の別の一例を示す断面概略図である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の有機発光素子の製造方法は、第1の基板、陽極、少なくとも発光層を含む有機化合物層、および光反射性の陰極がこの順で積層された有機発光素子の製造方法であって、前記光反射性の陰極を形成する工程が、(シ)前記有機化合物層に隣接して、厚さが $0.1 \sim 10 \text{ nm}$ のA1薄層を形成するA1薄層形成工程と、(iii)前記A1薄層の、前記有機化合物層に隣接する面とは反対の面に隣接して、厚さが $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を積層する金属層積層工程とを含み、前記A1薄層形成工程を $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中で行い、前記A1薄層形成工程で得られたA1薄層を、前記金属層積層工程により該A1薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中に保持することを特徴とする。

[0019] 以下、本発明を図面と共に詳細に説明する。

[0020] 図1は本発明の有機発光素子の製造方法によって製造される有機発光素子の一例を示した断面概略図である。なお、便宜上、第1の基板11から第2の基板17に向かう積層方向を「上」という。

[0021] 有機発光素子10は、第1の基板11上に、正孔を注入するための陽極1

2 と、少なくとも発光層を含む有機化合物層 13 と、有機化合物層 13 に電子を注入し、また発光層で発光した光を第 1 の基板 11 側へ反射するための陰極 14 が順次積層された構造を有する。陰極 14 は、有機化合物層 13 に隣接するように形成された A1 薄層 15 と、金属層 16 とからなり、金属層 16 は A1 薄層 15 の有機化合物層 13 と隣接する面とは反対の面に隣接するように積層して形成されてなる。なお、第 1 の基板 11 および第 2 の基板 17 はその間に挟まれた接着部材 18 によって固定されている。

[0022] 第 1 の基板 11 は、第 2 の基板 17 とともに、陽極 12、有機化合物層 13 および陰極 14 を有する有機発光素子 10 を形成するための支持体となるものである。

[0023] 有機発光素子 10 において第 1 の基板 11 側から光を出射するため、第 1 の基板 11 は、発光層から発せられる光に対して透明であることが必要である。このような透明な第 1 の基板 11 に用いられる材料としては、具体的には、サファイアガラス、ソーダガラス、石英ガラスなどのガラス類；アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、シリコーン樹脂などの透明樹脂；窒化アルミなどの金属窒化物；アルミナなどの透明金属酸化物などが挙げられる。なお、第 1 の基板 11 として、上記透明樹脂からなる樹脂フィルム等を使用する場合は、この樹脂フィルム等の水、酸素などのガスに対する透過性が低いことが好ましい。ガス透過性が高い樹脂フィルム等を使用する場合は、光の透過性を大きく損なわない範囲でガスの透過を抑制するバリア性薄膜を形成することが好ましい。

[0024] 発光層から出射した光は、陰極 14 によって第 1 の基板 11 側に反射されるため、第 2 の基板 17 に用いられる材料としては可視光に対して透明であるものに限られず、不透明なものも使用できる。具体的には、上記の透明材料に加えて、シリコン (Si)、銅 (Cu)、銀 (Ag)、金 (Au)、白金 (Pt)、タングステン (W)、チタン (Ti)、タンタル (Ta)、もしくはニオブ (Nb) の単体、またはこれらの合金、あるいはステンレスなども使用することができる。第 2 の基板 17 の材料が導電性を有する場合、

陰極 14 との間に絶縁層を形成して、これらの間を絶縁してもよい。

[0025] 第1の基板11および第2の基板17の厚さは、要求される機械的強度にもよるが、好ましくは0.1~10mm、より好ましくは0.25~2mmである。

[0026] 陽極12は、陰極14との間で電圧を印加することで、有機化合物層13に正孔を注入する。陽極12に使用される材料としては、電気伝導性を有するものである必要があり、 $-5 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で面抵抗が $1000\Omega/\square$ 以下であることが好ましく、 $100\Omega/\square$ 以下であることがさらに好ましい。

[0027] このような条件を満たす材料として、導電性金属酸化物、金属、合金が使用できる。ここで、導電性金属酸化物としては、例えば、ITO（酸化インジウムスズ）、IZO（酸化インジウム亜鉛）、酸化亜鉛および酸化スズが挙げられる。また金属としては、銅（Cu）、銀（Ag）、金（Au）、白金（Pt）、タングステン（W）、チタン（Ti）、タンタル（Ta）、ニオブ（Nb）等が挙げられる。そしてこれらの金属を含む合金やステンレスも使用できる。これらのうち、透明な陽極に用いられる材料としては、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、それらの複合体であるITO（酸化インジウムスズ）やIZO（酸化インジウム亜鉛）、金、白金、銀、銅が挙げられる。これらの中でも、電気伝導性が高く、有機化合物層13への正孔注入が容易な点で、ITO、IZO、酸化スズが好ましい。また、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体等の有機物からなる透明導電膜を用いてもよい。

[0028] 陽極12の厚さは、発光層から入射された光を、陽極12を通して有機発光素子10の第1の基板11側から外部に出射したい場合は、高い光透過性を得るため、 $2 \sim 300\text{nm}$ であることが好ましい。また光が陽極12を透過しない場合、例えば陽極層12に細孔が形成され、この細孔を通して有機発光素子10の第1の基板11側から光を出射する場合には陽極12の厚さは、例えば、 $2\text{nm} \sim 2\text{mm}$ で形成することができる。

[0029] 陽極 12 を第 1 の基板 11 上に形成するには、真空蒸着法（抵抗加熱蒸着法、誘導加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法など）、スパッタリング法、イオンプレーティング法、CVD 法などの真空成膜法、スピンコーティング法、ディップコーティング法、インクジェット法、印刷法（スクリーン印刷法など）、スプレー法、ディスペンサー法などの塗布成膜法を用いることができる。

[0030] 有機化合物層 13 は、少なくとも発光層を含む 1 層または積層された複数層の有機化合物層からなり、該発光層は、陽極 12 と陰極 14 との間に電圧を印加することで発光する発光材料を含む。このような発光材料としては、公知の発光材料を使用することができ、発光性ポリマー化合物および発光性非ポリマー化合物のいずれも使用することができる。本実施の形態では、発光材料として燐光発光性有機化合物を使用することが好ましく、中でもシクロメタル化錯体を用いることが、発光効率向上の観点から望ましい。シクロメタル化錯体としては、例えば、2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体、2-フェニルキノリン誘導体等の配位子を有するイリジウム、白金および金等の錯体が挙げられ、イリジウム錯体が特に好ましい。シクロメタル化錯体は、シクロメタル化錯体を形成するのに必要な配位子以外に、他の配位子を有していてもよい。

[0031] また、発光性ポリマー化合物としては、MEH-PPV（ポリ[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン]）などのポリ-p-フェニレンビニレン（PPV）誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリチオフェン誘導体等のπ共役系のポリマー化合物；色素分子とテトラフェニルジアミン誘導体またはトリフェニルアミン誘導体とを主鎖または側鎖に導入したポリマー等が挙げられる。発光性ポリマー化合物と発光性非ポリマー化合物とを併用してもよい。

[0032] 発光層は発光材料とともにホスト材料を含み、ホスト材料中に発光材料が分散されていてもよい。このようなホスト材料は、電荷輸送性を有している

ことが好ましく、正孔輸送性化合物や電子輸送性化合物であることが好ましい。

[0033] 発光層の厚さは、1～500 nmが好ましく、より好ましくは5～250 nm、特に好ましくは10～100 nmである。

[0034] 有機化合物層13は、陽極12から正孔を受け取り、発光層へ輸送するための正孔輸送層を陽極12と発光層との間に含んでいてもよい。このような正孔輸送層を形成する材料としては、公知の正孔輸送材料を使用することができ、例えば、TPD (N, N'—ジフェニル—N, N'—ジ(3—メチルフェニル)—1, 1'—ビフェニル—4, 4'—ジアミン)、 α -NPD (4, 4'—ビス[N—(1—ナフチル)—N—フェニルアミノ]ビフェニル)、m-MTDATA (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)等のトリフェニルアミン誘導体；ポリビニルカルバゾール；上記トリフェニルアミン誘導体に重合性置換基を導入して重合したポリマー化合物などが挙げられる。上記正孔輸送材料は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なる正孔輸送材料から形成された複数の正孔輸送層を積層してもよい。

[0035] 正孔輸送層の厚さは、正孔輸送層の導電性などに依存するため、一概に限定できないが、好ましくは1 nm～1 μ m、より好ましくは5～500 nm、特に好ましくは10～100 nmである。

[0036] また、上記正孔輸送層と陽極12との間に、陽極12から正孔輸送層への正孔注入障壁を緩和するために1～50 nmの厚さの正孔注入層が設けられていてもよい。上記正孔注入層を形成する材料としては、銅フタロシアニン、ポリエチレンジオキシチオフェン(PEDOT)とポリスチレンスルホン酸(PSS)との混合物(PEDOT:PSS)、フルオロカーボン、二酸化ケイ素などの公知の材料が用いられるほか、上記正孔輸送層に用いられる正孔輸送材料と2, 3, 5, 6—テトラフルオロテトラシアノ—1, 4—ベンゾキノジメタン(F4TCNQ)などの電子受容体との混合物を用いることもできる。

[0037] 上記有機化合物層 13 は、陰極 14 から電子を受け取り、発光層へ輸送するための電子輸送層を、発光層と陰極 14 との間に有していてもよい。このような電子輸送層に用いることができる材料としては、キノリン誘導体、フェナントロリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフエニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体、トリアリールポラン誘導体、トリアジン誘導体、トリアリールホスフィンオキサイト誘導体などの電子輸送材料が挙げられる。更に具体的には、トリス (8-キノリノラト) アルミニウム (略称 :Alq)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト] 亜鉛、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾラト] 亜鉛、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾールなどが挙げられる。

[0038] 電子輸送層は、アルカリ金属またはアルカリ金属化合物を含有する電子輸送層であることが好ましく、上記の電子輸送材料と仕事関数の小さいアルカリ金属との混合物または、上記の電子輸送材料のアルカリ金属塩 (アルカリ金属化合物) からなることがより好ましい。このような電子輸送層は電子移動度が高く、有機発光素子 10 を低電圧で駆動することができるが、Al 薄層 15 をこの電子輸送層に接して形成することで電子の注入障壁を大きく低下させることができる。

[0039] 電子輸送層の厚さは、電子輸送層の導電性などに依存するため、一概に限定できないが、好ましくは 1~500 nm、より好ましくは 5~100 nm である。

[0040] また、正孔が発光層を通過することを抑え、発光層内で正孔と電子とを効率よく再結合させる目的で、上記電子輸送層と発光層との間に、1~50 nm の厚さの正孔ブロック層が設けられていてもよい。この正孔ブロック層も有機化合物層 13 に含まれる層の 1 つとして捉えることができる。上記正孔ブロック層を形成するために、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体などの公知の材料が用いることができる。

[0041] また、陰極 14 から有機化合物層 13 への電子の注入障壁を下げて電子の注入効率を上げる目的で、陰極バッファ層を、陰極 14 に隣接して有機化合物層 13 側に設けてもよい。陰極バッファ層に使用される材料としては、陰極 14 より仕事関数の低い金属材料などが好適である。例えば、アルカリ金属 (Na、K、Rb、Cs)、アルカリ土類金属 (Sr、Ba、Ca、Mg)、希土類金属 (Pr、Sm、Eu、Yb)、あるいはこれら金属のフッ化物、塩化物、酸化物から選ばれる物質あるいは 2 つ以上の混合物を使用することができる。陰極バッファ層の厚さは 0.1 ~ 50 nm が好ましく、0.1 ~ 20 nm がより好ましく、0.5 ~ 10 nm がより一層好ましい。なお、本明細書中では無機化合物からなる陰極バッファ層であっても、便宜上有機化合物層 13 を構成する層の 1 つとみなす。

[0042] 有機化合物層 13 を形成するには、陽極 12 と同様の手法を使用することができる。ただし有機化合物層 13 に含まれる各層の成膜には、抵抗加熱蒸着法または塗布成膜法がより好ましく、高分子有機化合物を含む層の成膜を行うには塗布成膜法が特に好ましい。塗布成膜法により成膜を行う場合は、成膜を行いたい層を構成する材料を、有機溶媒や水等の所定の溶媒に溶解または分散させた塗布液の塗布を行う。塗布を行った後は、加熱あるいは真空引きを行って塗布溶液を乾燥させることで所望の層が形成される。

[0043] 陰極 14 は、発光層から出射する光を反射する性質、すなわち光反射性の陰極である。陰極 14 は、発光層から出射する光に対する反射率が 50 ~ 100 % であることが好ましく、70 ~ 100 % 以上であることがより好ましい。

[0044] 本発明の有機発光素子の製造方法において、光反射性の陰極 14 を形成する工程は、(i) 有機化合物層 13 に隣接して、厚さが 0.1 nm ~ 10 nm の Al 薄層 15 を形成する Al 薄層形成工程と、(ii) Al 薄層 15 の、有機化合物層 13 に隣接する面とは反対の面に隣接して、厚さが 70 nm ~ 10 μ m の金属層 16 を積層する金属層積層工程とを含む。

[0045] 本発明の有機発光素子の製造方法では、前記 Al 薄層形成工程を 1×10^{-8}

～ 1×10^{-2} Pa の真空中で行い、前記 A I 薄層形成工程で得られた A I 薄層を、前記金属層積層工程により該 A I 薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 1×10^{-8} ～ 1×10^{-2} Pa の真空中に保持する。すなわち、A I 薄層は、その形成の際および、A I 薄層が形成されたのち、金属層が積層される迄は、 1×10^{-8} ～ 1×10^{-2} Pa の真空中に保持される。言い換えると、前記 A I 薄層形成工程および前記金属層積層工程は、 1×10^{-8} ～ 1×10^{-2} Pa の真空中で行われ、前記 A I 薄層形成工程と、金属層積層工程との間に別の工程を含む場合には、該工程も含め 1×10^{-8} ～ 1×10^{-2} Pa の真空中で行われる。なお、別の工程としては、例えば前記 A I 薄層形成工程と前記金属層積層工程との間に、A I 薄層の検査を行う工程や、A I 薄層が形成された基板の搬送工程等が挙げられる。

[0046] 陰極 14 を構成する層の中で、A I 薄層 15 は有機化合物層 13 へ電子を注入する活性層である。A I 薄層 15 を 1×10^{-8} ～ 1×10^{-2} Pa の真空中で有機化合物層 13 に接して形成することで、電子注入材料としての A I の活性を低下させることがなく、効率的な電子注入を行うことができる。従って、A I 薄層 15 は真空成膜法を用いて成膜され、具体的には真空蒸着法（抵抗加熱蒸着法、誘導加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法など）、スパッタリング法、イオンプレーティング法、CVD 法などの方法で成膜され、中でも大面積を均一な膜厚で成膜することが容易な真空蒸着法による成膜が好ましい。

[0047] しかし真空中での A I の成膜には高いエネルギーが必要であり、例えば真空蒸着法では A I の蒸発温度が高く高温に加熱しなければならないため、従来の有機発光素子における陰極のように 100 nm 程度の厚さに A I を成膜すると、輻射熱によって有機化合物層がダメージを受け、発光効率が低下したり発光面内の輝度分布が不均一になったりする問題がある。本発明では A I 薄層 15 を 0.1～10 nm の薄い層とすることで有機化合物層 13 が高温に曝される時間を短縮でき、A I の効率的な電子注入の特性を維持しながら、有機化合物層へのダメージを抑制できる。なお、前記厚さの A I 薄層は

光透過性を有する。有機化合物層 13 へのダメージがさらに抑制される観点から、A1 薄層 15 の膜厚は 0.1 ~ 5 nm がより好ましい。なお、真空蒸着法における成膜速度は蒸着源の温度や蒸着源と被蒸着面である有機化合物層 13 の上面との距離に依存するため、A1 薄層 15 の膜厚が上記の範囲になるよう制御すれば、有機化合物層 13 へのダメージは抑えられる。すなわち、例えば蒸着源の温度を上げると成膜速度は上がるため、有機化合物層 13 はより高温に曝されるが、その時間は短縮される。

[0048] 陰極 14 を構成する層の 1 つである金属層 16 は、A1 薄層 15 の光反射性と電気伝導性を補うための層であり、A1 薄層 15 の有機化合物層 13 に隣接する面とは反対の面に隣接して形成される。金属層 16 に用いられる材料は光反射性と電気伝導性を有するものであれば特に限定されず、金属の単体または合金が望ましい。金属の単体の中では、可視光領域の全域にわたって光反射率の高い Ag、Al、Rh が好ましい。金属層 16 の厚さは、形成が容易で、光反射性と電気伝導性が高い観点から 70 nm ~ 10 μ m が好ましく、100 nm ~ 1 μ m がより好ましい。

[0049] 金属層 16 は、A1 薄層 15 を 1×10^{-8} ~ 1×10^{-2} Pa の真空中で成膜した後、この真空を保ったまま A1 薄層 15 上に積層される。これにより A1 薄層 15 と有機化合物層 13 との界面における Al の高い活性を維持して陰極 14 を形成できる。

[0050] しかし真空中で金属層 16 を直接 A1 薄層 15 上に成膜することにより積層する場合であり、該金属層 16 を構成する金属として、Al あるいは、Al よりも成膜に高いエネルギーを必要とする Rh などの金属を用いる場合には、A1 薄層 15 上に金属層 16 を直接成膜すると、有機化合物層 13 が熱などによるダメージを受ける。そこで、金属層 16 の材料を別途第 2 の基板 17 上に成膜し、これを第 2 の基板 17 とともに A1 薄層 15 に金属層 16 が重なるように密着させることで、金属層 16 を積層すると、金属層 16 の積層時の有機化合物層 13 へのダメージを抑えることができる。第 2 の基板 17 への金属層 16 の成膜方法は、上記の陽極 12 と同じ方法を用いること

ができる。また、第2の基板17への金属層16の成膜は必ずしも真空中で行う必要はなく、大気圧下で塗布法などにより成膜した後、真空中 ($1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ Pa) でAl薄層15に貼り合わせてもよい。

[0051] 第2の基板17は、光硬化性樹脂や熱硬化性樹脂などの接着部材18によって第1の基板11と接着されていることが好ましい。

[0052] 図2は本発明の有機発光素子の製造方法により製造される有機発光素子の実施形態の一例を、端子部、配線部を含めて示した断面概略図である。

[0053] 図2に示した有機発光素子10は、図1の有機発光素子10に加えて、陰極14を電源に電気接続するための端子部19と、端子部19を陰極14と電気接続するための配線部20も加えて図示している。配線部20は、第2の基板17の同一の面上に金属層16と共に形成されており、電気伝導性を有する材料であれば、どのような材料で形成されていてもよい。図2に示した有機発光素子10では、配線部20は金属層16と同じ材料により、金属層16と一体で形成されている。言い換えると、配線部20は、前記金属層16と同じ金属からなり、金属層に電氣的に接続している。すなわち、配線部20は第2の基板17上に金属層16と同時に形成された後、金属層16をAl薄層15に密着する際に、端子部19に電氣的に接続される。これにより金属層16と端子部19を電気接続するための配線部を別途形成するよりも有機発光素子の製造工程を簡略化できるだけでなく、真空成膜法により配線部を別途形成する場合に有機発光層が熱などによりダメージを受けることを防止することができる。

[0054] 図2では端子部19と配線部20が接するように、端子部19の厚さを陽極12、有機化合物層13、Al薄層15の合計の厚さと同じにしてあるが、第1の基板11および/または第2の基板17を可撓性基板とすることで、端子部19の厚さを、電気伝導性を損なわない範囲で小さくすることもできる。また端子部19と配線部20が重なる部分で、これらを導電性接着剤などで電気接続してもよい。

[0055] 端子部19は、前記第1の基板11上の少なくとも外縁部の一部を含む領

域に設けられ、前記陰極 14 を電源に電気接続するように作用する。そのため導電性を有する材料であればどのような材料で形成されてもよい。端子部 19 の形成方法は、上記陽極 12 の形成と同様の方法を使用することができ、端子部 19 の材料として陽極 12 と同じ材料を用いて、基板 11 上に陽極 12 を形成する際に、端子部 19 を陽極 12 とともに形成することで有機発光素子の製造工程を簡略化できる。

[0056] 金属層 16 は、金属層 16 を A1 薄層 15 に接するように密着させた後、第 2 の基板 17 から剥離されることで形成されてもよい。金属層 16 がこのようにして形成される場合、第 2 の基板 17 としては、表面に酸化ケイ素などの絶縁膜が形成された金属箔やポリイミドシートなどが用いられる。この場合の第 2 の基板 17 の形状は平板状でも円筒状でもよい。また剥離を容易にするため、第 2 の基板 17 の表面に、剥離層を形成してもよく、剥離層を、加熱によって軟化する材料で形成することで、金属層 16 を任意のパターンで形成することもできる。なお剥離工程は大気圧下で行ってもよい。

[0057] 有機発光素子 10 を長期安定的に用いるために、有機発光素子 10 を外部の水分や酸素から保護するための保護層や保護カバーを設けることが好ましい。保護層は有機発光素子 10 の上部および/または側部を覆うように接して設けられる。保護層の材料としては、高分子化合物、金属酸化物、金属フッ化物、金属ホウ化物や、窒化ケイ素、酸化ケイ素等のシリコン化合物などを用いることができる。また、これらの保護層が積層されていてもよい。保護カバーは有機発光素子 10 の上部および/または側部を覆うように、有機発光素子 10 に接することなく設けられる。保護カバーとしては、ガラス板、表面に低透水率処理を施したプラスチック板、金属などを用いることができる。この保護カバーは、熱硬化性樹脂や光硬化性樹脂で第 1 の基板 11 と貼り合わせて、少なくとも有機発光素子 10 の発光部分を密閉することが好ましい。保護カバーは第 2 の基板 17 が兼ねてもよい。陰極 14 の酸化などを防止しやすくなることから密閉空間内に窒素、アルゴン、ヘリウムのような不活性なガスを封入することが好ましい。

[0058] 図3は本発明の有機発光素子の製造方法により製造される有機発光素子の別の一例を示した断面概略図である。有機発光素子30は、第1の基板31上に、陽極32と、少なくとも発光層を含む有機化合物層33と、陰極34が順次積層された構造を有し、陰極34は、有機化合物層33に隣接するA1薄層35と、A1薄層35の前記有機化合物層33と隣接する面とは反対の面に隣接する金属層36を有する。陰極34を形成する工程は、(i)有機化合物層33に隣接して、光透過性を有するA1薄層35を形成するA1薄層形成工程と、(ii)A1薄層35の、有機化合物層33に隣接する面とは反対の面に隣接して、光反射性を有する金属層36を積層する金属層積層工程とを含む。本発明の有機発光素子の製造方法では、前記A1薄層形成工程は $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ Paの真空中で行われ、前記A1薄層形成工程で得られたA1薄層を、前記金属層積層工程により該A1薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ Paの真空中に保持する。有機発光素子30では、金属層36は、第1の基板31とは別の基板上に一旦形成された後で貼り合わされることなく、A1薄層35上に直接成膜されている。

[0059] 図1に示した有機発光素子10におけるA1薄層15と同様に、有機発光素子30におけるA1薄層35は有機化合物層33へ効率的な電子注入を行うため、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ Paの真空中で有機化合物層33に接して形成される。A1薄層35は真空成膜法を用いて成膜され、具体的には真空蒸着法(抵抗加熱蒸着法、誘導加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法など)、スパッタリング法、イオンプレーティング法、CVD法などの方法で成膜され、中でも大面積を均一な膜厚で成膜することが容易な真空蒸着法による成膜が好ましい。

[0060] 金属層36は、A1薄層35の光反射性と電気伝導性を補うための層であり、A1薄層35の成膜の後に、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ Paの真空中で成膜される。金属層36の材料としては、光反射性と電気伝導性を有し、A1よりも低温で成膜が可能な金属の単体または合金が用いられる。金属層36と

してはA g、S b、I n、M g、M n、P bおよびZ nからなる群より選択される少なくとも1種の金属またはその合金からなる金属層であることが好ましい。金属層36としては、中でも可視光領域の全域にわたって光反射率の高いA gおよびP bからなる群より選択される少なくとも1種の金属またはその合金からなる金属層が好ましく、A gからなる金属層が特に好ましい。金属層36は真空成膜法により成膜されるが、比較的低温で成膜でき、また大面積を均一な膜厚で成膜することが容易な真空蒸着法による成膜が好ましい。金属層36をこのように形成することで、A lの効率的な電子注入の特性を維持しながら、有機化合物層への熱などによるダメージを抑制できる。

[0061] 金属層36の厚さは、形成が容易で、光反射性と電気伝導性が高い観点から70nm~10μmが好ましく、100nm~1μmがより好ましい。

[0062] 本発明の有機発光素子の製造方法で製造される有機発光素子は、マトリクス方式またはセグメント方式による画素として画像表示装置に好適に用いられる。また、上記有機発光素子は、画素を形成せずに、面発光光源等の照明装置としても好適に用いられる。

[0063] 本発明の有機発光素子の製造方法で製造される有機発光素子は、具体的には、コンピュータ、テレビ、携帯端末、携帯電話、カーナビゲーション、標識、看板、ビデオカメラのビューファインダー等における表示装置、バックライト、電子写真、照明、レジスト露光、読み取り装置、インテリア照明、光通信システム等における光照射装置に好適に用いられる。

実施例

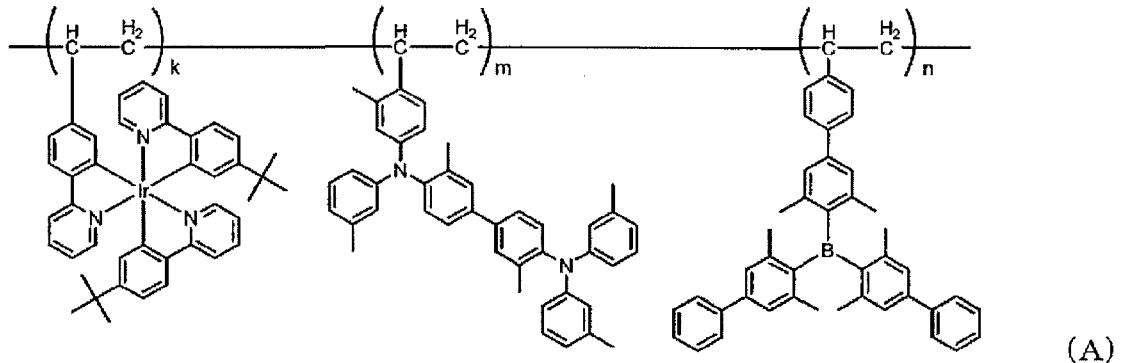
[0064] 次に本発明について実施例を示してさらに詳細に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

[0065] [発光材料溶液の調製]

WO2010/016512号公報の実施例に記載された方法に従って下記式で表される燐光発光性高分子化合物(A)を合成した。高分子化合物(A)の重量平均分子量は52,000、各繰り返し単位のリモル比はk:m:

$n = 6 : 4 : 2 : 5 : 2$ であった。

[0066] [化 1]



[0067] この燐光発光性高分子化合物 (A) 3 重量部を 97 重量部のトルエンに溶解させ、発光材料溶液 (以下、 溶液 A」ともいう。) を調製した。

[0068] [実施例 1]

有機発光素子として、図 2 に示した有機発光素子 10 を、以下の方法により作製した。

[0069] まず第 1 の基板 11 としての石英ガラスからなるガラス基板 (25 mm 角、厚さ 1 mm) 上に、スパッタ装置 (キャノンアネルバ株式会社製 E-401s) を用いて、スパッタリング法により陽極 12 として厚さ 150 nm のITOの薄膜を 20 mm 角の発光領域に対応してパターン形成し、同時にガラス基板の一边に端子部 19 として 150 μm の膜厚の ITO 膜を形成した。

[0070] 次に、ITO 陽極 12 上に溶液 A をスピンコート法 (3000 rpm、30 秒間) により塗布し、窒素雰囲気下、140℃で 1 時間放置し乾燥することで、有機化合物層 13 の一部としての発光層を 80 nm の膜厚で形成した。

[0071] 次に、真空蒸着装置を用いて、 3.3×10^{-4} Pa の真空中で、バソフェナントロリンとリチウムを重量比が 95 : 5 となるように発光層上に共蒸着し、有機化合物層 13 の一部として電子輸送層を 20 nm の膜厚で形成した。

[0072] 次に、真空蒸着装置を用いて、 2.1×10^{-4} Pa の真空中で、Al 薄層 15 として電子輸送層上に 5 nm の Al 層を形成した。

[0073] 一方、第2の基板17として、石英ガラスからなるガラス基板（23mm角、厚さ0.25mm）上に、真空蒸着装置を用いて70nmのAg層を形成した。これを上記のA1層の形成後のガラス基板上に、真空蒸着装置内で 2.1×10^{-4} Paの真空を保ったまま、Ag層がA1層と端子部19としてのITO膜とに接するように圧着し、光硬化性樹脂を用いて第1の基板11と第2の基板17を固定することによって、金属層16としてのAg層を形成した。

[0074] 作製した有機発光素子10に、定電圧電源電流計（ケイスレーインスツルメンツ株式会社製SM2400）を用いて電圧を印加し、有機発光素子10の第1の基板11に垂直な方向における発光強度を輝度計（株式会社トプコン製BM-9）で計測した。そして、電流密度に対する発光強度の比から発光効率を決定したところ、発光効率は35cd/Aであった。また、発光面を目視で観察したところ、輝度の分布は均一であった。

[0075] [実施例2]

金属層16として、70nmのAg層に替えて120nmのA1層を形成したほかは、実施例1と同様にして有機発光素子10を作製した。作製した有機発光素子の発光効率は37cd/Aであり、発光面内の輝度の分布は、目視で均一であった。

[0076] [実施例3]

有機発光素子として、図3に示した有機発光素子30を、以下の方法により作製した。

[0077] まず、実施例1と同様にして、第1の基板31としてのガラス基板上に、有機化合物層33としての発光層および電子輸送層、A1薄層35としてのA1層をそれぞれ形成した。

[0078] 次にA1層の形成に用いた真空蒸着装置内で、A1層の形成後に 2.1×10^{-4} Paの真空を保ったまま、金属層36として100nmのAg層を真空蒸着により成膜した。作製した有機発光素子30の発光効率は33cd/Aであり、発光面内の輝度の分布は、目視で均一であった。

[0079] [比較例 1]

実施例 3 において、金属層 3 6 を形成せずに、A I 薄層 3 5 としての A I 層の厚さを 5 n m から 1 0 0 n m に変更し、A I 層を光反射性の陰極とすることで有機発光素子を作製した。作製した有機発光素子の発光面内の平均発光効率 は 1 6 c d / A であり、発光面内の輝度の分布は、目視で不均一であった。

符号の説明

- [0080] 1 0 ・ ・ ・ 有機発光素子
1 1 - ・ ・ 第 1 の基板
1 2 ・ ・ ・ 陽極
1 3 ・ ・ ・ 有機化合物層
1 4 ・ ・ ・ 陰極
1 5 ・ ・ ・ A I 薄層
1 6 ・ ・ ・ 金属層
1 7 ・ ・ ・ 第 2 の基板
1 8 ・ ・ ・ 接着部材
1 9 ・ ・ ・ 端子部
2 0 ・ ・ ・ 配線部
3 0 ・ ・ ・ 有機発光素子
3 1 - ・ ・ 第 1 の基板
3 2 ・ ・ ・ 陽極
3 3 ・ ・ ・ 有機化合物層
3 4 ・ ・ ・ 陰極
3 5 ・ ・ ・ A I 薄層
3 6 ・ ・ ・ 金属層

請求の範囲

[請求項 1] 第 1 の基板、陽極、少なくとも発光層を含む有機化合物層、および光反射性の陰極がこの順で積層された有機発光素子の製造方法であつて、

前記光反射性の陰極を形成する工程が、

(i) 前記有機化合物層に隣接して、厚さが $0.1 \sim 10 \text{ nm}$ の A l 薄層を形成する A l 薄層形成工程と、

(i i) 前記 A l 薄層の、前記有機化合物層に隣接する面とは反対の面に隣接して、厚さが $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を積層する金属層積層工程とを含み、

前記 A l 薄層形成工程を $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中で行し、前記 A l 薄層形成工程で得られた A l 薄層を、前記金属層積層工程により該 A l 薄層に隣接して金属層が積層されるまで、 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ の真空中に保持する、有機発光素子の製造方法。

[請求項 2] 前記 A l 薄層形成工程が、前記有機化合物層の表面に真空蒸着法により前記 A l 薄層を形成する工程であり、

前記金属層が、A g、S b、I n、M g、M n、？ヒおよび乙門からなる群より選択される少なくとも 1 種の金属またはその合金からなり、

前記金属層積層工程が、前記 A l 薄層の表面に真空蒸着法により前記金属層を形成する工程である、請求項 1 に記載の有機発光素子の製造方法。

[請求項 3] 前記金属層積層工程が、第 2 の基板上に形成された厚さが $70 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の金属層を、前記第 2 の基板とともに前記 A l 薄層に密着させることで積層する工程である、請求項 1 に記載の有機発光素子の製造方法。

[請求項 4] 前記金属層が、A g、A l および R h からなる群より選択される少なくとも 1 種の金属または合金からなる、請求項 3 に記載の有機発光

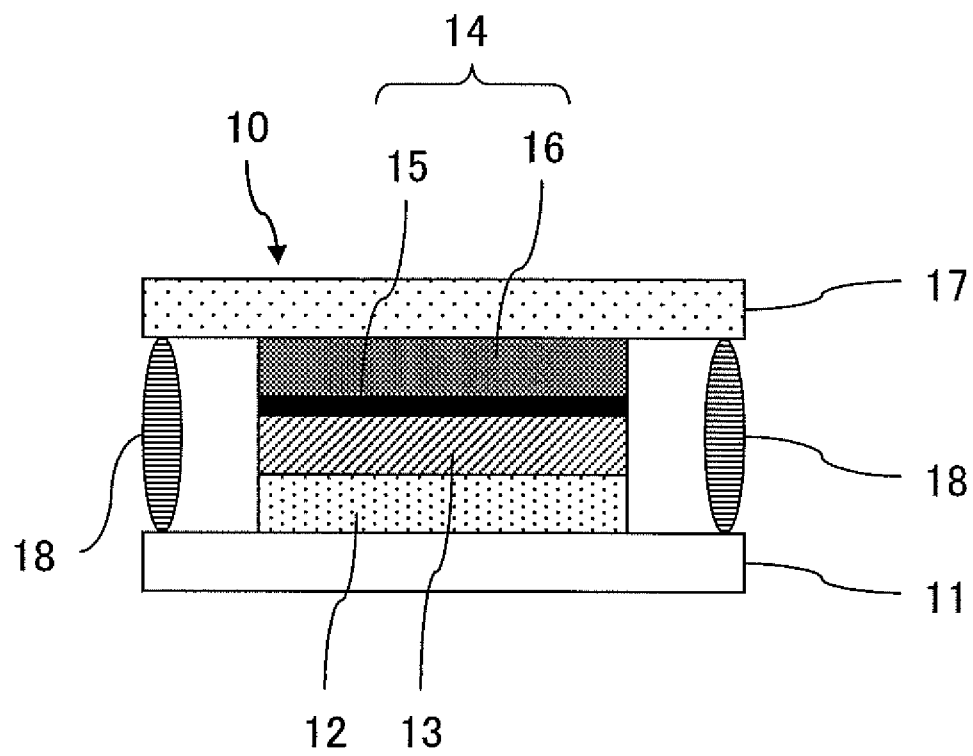
素子の製造方法。

[請求項5] 前記陰極を形成する工程が、前記金属層積層工程の後に、前記金属層を前記第2の基板から剥離する工程を含む、請求項3または4に記載の有機発光素子の製造方法。

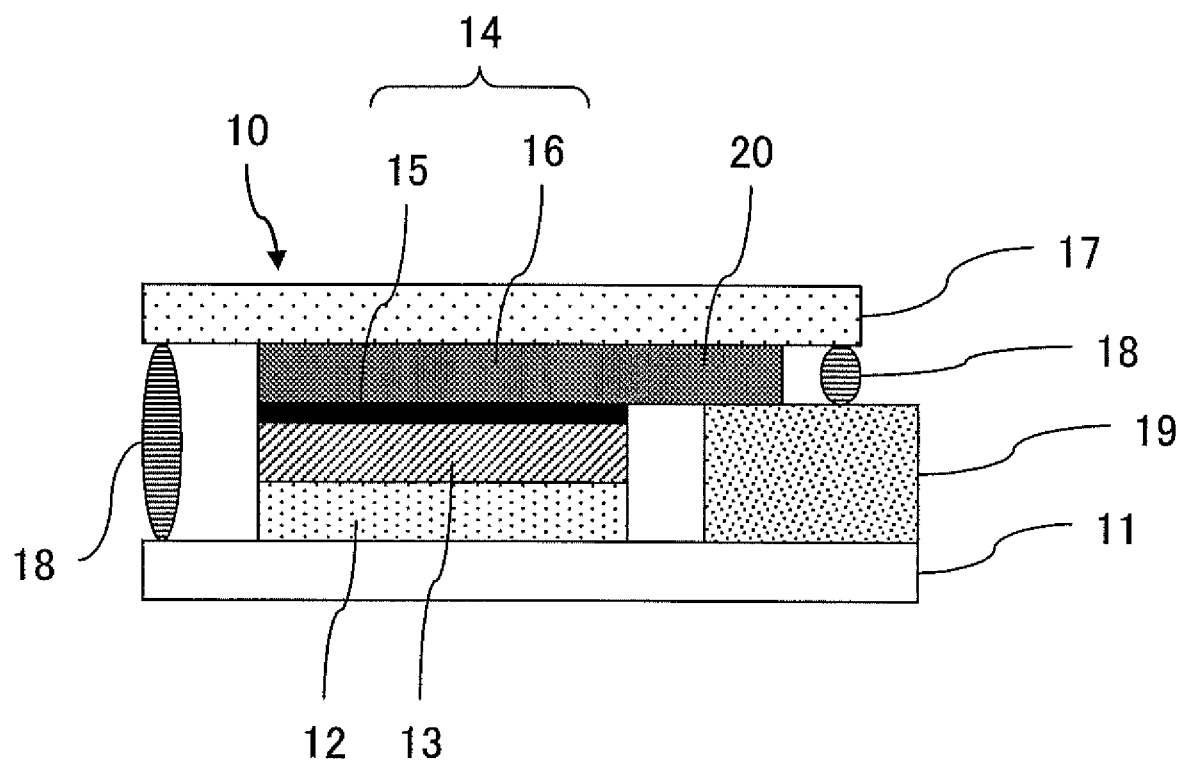
[請求項6] 前記有機発光素子が、前記第1の基板上の少なくとも外縁部の一部を含む領域に、前記陰極を電源に電気接続するための端子部を有し、
前記第2の基板が、前記金属層と同一の面上に、前記金属層と同じ金属からなり、前記金属層に電氣的に接続した配線部を有し、
前記金属層積層工程において、前記端子部と前記配線部とを電氣的に接続する、請求項3または4に記載の有機発光素子の製造方法。

[請求項7] 前記有機化合物層が、前記AⅠ薄層に隣接したアルカリ金属またはアルカリ金属化合物を含む電子輸送層を有する、請求項1～6のいずれか一項に記載の有機発光素子の製造方法。

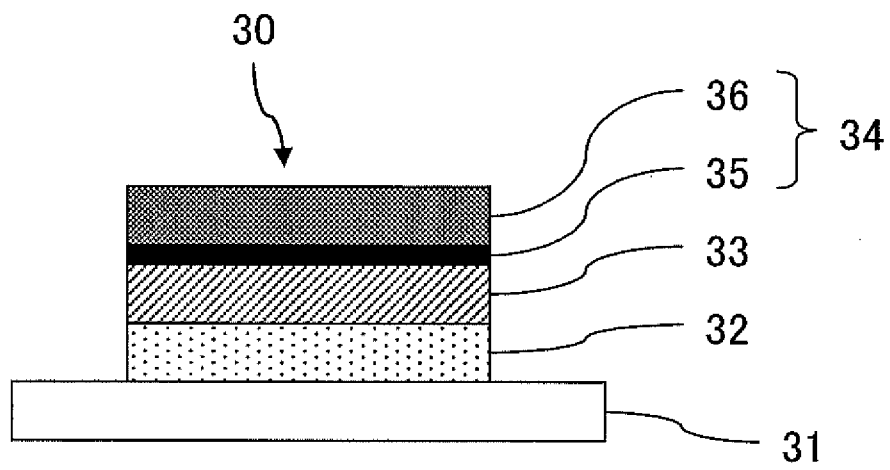
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT / JP2 0 1 2 / 0 8 0 6 9 3

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/1 0 (2006.01) i, H01L51 / 50 (2006.01) i, H05B33/0 6 (2006.01) i, H05B33/2 6 (2006.01) i

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)

H05B3 3/10, H01L51/50, H05B3 3/06, H05B3 3/26

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo	Shinan	Koho	1922-1	996	Jitsuyo	Shinan	Toroku	Koho	1996-2013
Kokai	Jitsuyo	Shinan	Koho	1971-2013	Toroku	Jitsuyo	Shinan	Koho	1994-2013

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.
Y	J P 11 - 2 6 1 6 7 A (Mit sub i sh i Ch e m i c a l C o r p .) , 2 9 J a n u a r y 1 9 9 9 (2 9 . 0 1 . 1 9 9 9) , p a r a g r a p h s [0 0 3 8] , [0 0 5 6] ; f i g . 4 & U S 6 1 2 1 7 2 7 A & E P 8 6 9 7 0 1 A 2 & D E 6 9 8 1 5 5 7 6 D & D E 6 9 8 1 5 5 7 6 T	1, 2, 7
Y	J P 2 0 1 0 - 1 5 9 9 8 A (S e m i c o n d u c t o r E n e r g y L a b o r a t o r y C o . , L t d .) , 2 1 J a n u a r y 2 0 1 0 (2 1 . 0 1 . 2 0 1 0) , p a r a g r a p h s [0 0 5 2] , [0 0 5 4] (F a m i l y : n o n e)	1, 2, 7
Y	J P 1 0 - 3 3 5 0 6 0 A (S o n y C o r p .) , 1 8 D e c e m b e r 1 9 9 8 (1 8 . 1 2 . 1 9 9 8) , p a r a g r a p h [0 0 8 8] ; f i g . - 1 (F a m i l y : n o n e)	1



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

"I" 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

2 8 J a n u a r y , 2 0 1 3 (2 8 . 0 1 . 1 3)

Date of mailing of the international search report

0 5 F e b r u a r y , 2 0 1 3 (0 5 . 0 2 . 1 3)

Name and mailing address of the ISA/

J a p a n e s e P a t e n t O f f i c e

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT / JP2 012 / 080693

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	J. 1st-27 172 A (Junji K O) 09 October 1998 (09.10.1998) para rap^o [0029] & US 6013384 A & EP 8558 8 A3 & E. 855 48 A2 & CN 119 322 A	7
A	JP 11-329743 A (Stanley Electric Co., Ltd.), 30 November 1999 (30.11.1999), paragraphs [0045] to [0048] (Family : none)	3- 6
A	JP 2002-237382 A (Stanley Electric Co., Ltd.), 23 August 2002 (23.08.2002) paragraph [0023] (Family : none)	3- 6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05B33/10 (2006. 01) i, H01L51/50 (2006. 01) i, H05B33/06 (2006. 01) i, H05B33/26 (2006. 01) i

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 (I P C))

Int.Cl. H05B33/10, H01L51/50, H05B33/06, H05B33/26

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	1 9 2 2 - 1 9
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0

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)
8 年

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 請求項の番号
Y	J P 1 1 - 2 6 1 6 7 A (三菱化学株式会社) 1 9 9 9 . 0 1 . 2 9 、 段落 [0 0 3 8]、[0 0 5 6]、図 4 & US 612 1727 A & EP 869701 A2 & DE 69815576 D & DE 69815576 T	1、2、7
Y	J P 2 0 1 0 - 1 5 9 9 8 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2 0 1 0 . 0 1 . 2 1、段落 [0 0 5 2]、[0 0 5 4] (ファミリーなし)	1、2、7

☒ c 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ 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

IA 「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」
IE 「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」
I 「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)」
IΘ 「口頭による開示、使用、展示等に言及する文献」
IP 「国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の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」
IX 「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」
IY 「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」
I& 「同一パテントファミリー文献」

国際調査を完了した日

2 8 . 0 1 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 5 . 0 2 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中山 佳美

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

2 0

3 9 1 1

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 請求項の番号
Y	J P 10 - 335060 A (ソニー株式会社) 1998. 12. 18、 段落 0088 】、図1 (ファミリーなし)	1
Y	J P 10 - 270172 A (城戸 淳二) 1998. 10. 09、段落 0029 】 & US 6013384 A & EP 855848 A3 & EP 855848 A2 & CN 1190322 A	7
A	J P 11 - 329743 A (スタンレー電気株式会社) 1999. 11. 30、段落 0045 】乃至 0048 】 (ファミリーなし)	3 - 6
A	J P 2002 - 237382 A (スタンレー電気株式会社) 2002. 08. 23、段落 0023 】 (ファミリーなし)	3 - 6