

(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
2017 年 5 月 4 日(04.05.2017)



(10) 国際公開番号

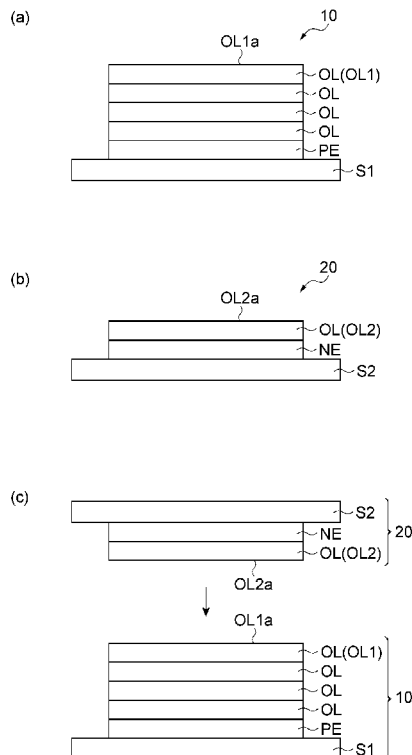
WO 2017/073409 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/10 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/080865
- (22) 国際出願日: 2016 年 10 月 18 日(18.10.2016)
- (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 2015-214530 2015 年 10 月 30 日(30.10.2015) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 岸川 英司(KISHIKAWA Eiji); 〒7920015 愛媛県新居浜市大江町 1 番 1 号 住友化学株式会社内 Ehime (JP). 森島 進一(MORISHIMA Shinichi); 〒7920015 愛媛県新居浜市大江町 1 番 1 号 住友化学株式会社内 Ehime (JP). 赤對 真人(SHAKUTSUI Masato); 〒7920015 愛媛県新居浜市大江町 1 番 1 号 住友化学株式会社内 Ehime (JP). 下河原 匡哉(SHIMOGAWARA Masaya); 〒7920015 愛媛県新居浜市大江町 1 番 1 号 住友化学株式会社内 Ehime (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番 1 号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9 階 創英国際特許法律事務所 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, SA, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING ORGANIC EL ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機 EL 素子の製造方法



(57) Abstract: A method for manufacturing an organic EL element 1 according to one embodiment of the present invention comprises: a step for preparing a first structure 10 wherein a positive electrode PE and at least one organic layer OL are arranged on a first substrate S1 and a second structure 20 wherein a negative electrode NE and at least one organic layer are arranged on a second substrate S2; and a step for bonding the first and second structures with each other. In the bonding step, the first and second structures are heated at a temperature that is higher than a specific glass transition temperature by 10°C or more; and the specific glass transition temperature is the lower one of the glass transition temperature of a first organic layer OL1, which is on the reverse side of the first substrate in the first structure, and the glass transition temperature of a second organic layer OL2, which is on the reverse side of the second substrate in the second structure.

(57) 要約: 一実施形態に係る有機 EL 素子 1 の製造方法は、陽極 PE 及び少なくとも一つの有機層 OL が第 1 の基材 S1 上に設けられた第 1 の構造体 10 と、陰極 NE 及び少なくとも一つの有機層が第 2 の基材 S2 上に設けられた第 2 の構造体 20 とを準備する工程と、第 1 及び第 2 の構造体を貼り合わせる工程とを備え、貼り合わせる工程では、所定のガラス転移温度から 10°C 以上高い温度で第 1 及び第 2 の構造体を加熱し、上記所定のガラス転移温度は、上記第 1 の構造体のうち第 1 の基材と反対側の第 1 の有機層 OL1 のガラス転移温度と、上記第 2 の構造体のうち上記第 2 の基材と反対側の第 2 の有機層 OL2 のガラス転移温度のうちより高くないガラス転移温度である。



ロシア (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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：有機ＥＬ素子の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、有機ＥＬ素子の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス(有機ＥＬ)素子の製造方法として、特許文献１に記載されている方法が知られている。特許文献１に記載の方法では、生産性の観点から、特許文献１に記載の逐次成膜法に対して貼合法を採用している。具体的には、陽極及び陰極の一方の電極上に反応性置換基を有する有機化合物を含有する第１の有機層を少なくとも一層形成し、他方の電極上に第２の有機層を少なくとも一層形成し、第１の有機層と第２の有機層とを互いに対向させて貼り合わせて有機ＥＬ素子を製造している。特許文献１記載の技術では、貼り合わせの際には、第１及び第２の有機層のガラス転移温度以下の温度で第１及び第２の有機層を加熱して貼り合わせている。この際の加熱条件としては、例えば、１００℃で１時間の加熱が例示されている。また、第１及び第２の有機層を接合する際に、第１の有機層が有する反応性置換基を活性化させる活性化光線を照射する形態も開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献１：国際公開２００７／１４８６４９号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 特許文献１に記載の技術では、特許文献１記載の第１及び第２の有機層を貼合法により貼り合わせる際に、ガラス転移温度以下の温度を利用しているため、加熱時間が長くなり、生産性が低下する。また、活性化光線を照射すると、第１及び第２の有機層以外の層が劣化し、界面での電子輸送性が低下する恐れがある。

[0005] したがって、本発明は、生産性の向上を図れ、貼合法において界面での電子輸送性の高い有機EL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

[0006] 本発明の一側面に係る有機EL素子の製造方法は、陽極及び第1の有機層を第1の基材上に有しており上記第1の有機層が上記第1の基材に対して最も外側に位置している第1の構造体を準備すると共に、陰極及び第2の有機層を第2の基材上に有しており上記第2の有機層が上記第2の基材に対して最も外側に位置している第2の構造体を準備する工程と、上記第1の構造体が有する上記第1の有機層と上記第2の構造体が有する第2の有機層を対向させるように、上記第1及び第2の構造体を貼り合わせる工程と、を備える。上記貼り合わせる工程では、所定のガラス転移温度から10℃以上高い温度で上記第1及び第2の構造体を加熱して上記第1及び第2の構造体を貼り合わせる。上記所定のガラス転移温度は、上記第1の構造体が有する上記第1の有機層のガラス転移温度と、上記第2の構造体が有する第2の有機層のガラス転移温度のうち、より高くないガラス転移温度である。

[0007] 上記製造方法では、第1及び第2の構造体を予め準備した後に、それらを貼り合わせて有機EL素子が製造される。第1及び第2の構造体を貼り合わせる際の加熱温度が前述した条件を満たすことで、例えば、上記所定のガラス転移温度以下で加熱する場合より、加熱時間を短くできると共に、製造された有機EL素子において、第1及び第2の構造体の界面での密着性が向上し、キャリア移動が阻害されにくい。その結果、有機EL素子の生産性の向上が図れると共に、貼合法において界面での電子輸送性の向上も図れる。

[0008] 上記第1及び第2の有機層のうち上記所定のガラス転移温度を有する有機層は、上記所定のガラス転移温度を有すると共に、分子量が1000以上の有機物を含んでいてもよい。分子量が1000以上である有機物は結晶化が生じにくいので、上記加熱条件において、より高い温度を実現可能である。その結果、生産性の向上が更に図れる。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、生産性の向上を図れ、貼合法において界面での電子輸送性の高い有機EL素子の製造方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図1は、一実施形態に係る有機EL素子の概略構成を示す模式図である。

[図2]図2は、一実施形態に係る有機EL素子の製造方法を説明するための図面であり、図2の(a)は第1の構造体の一例を示しており、図2の(b)は第2の構造体の一例を示しており、図2の(c)は、図2の(a)及び(b)に示した第1の構造体と第2の構造体の貼り合わせ工程を示している。

[図3]図3は、実施例1～3及び参考例1～3で使用する有機EL素子の概略構成を示す模式図である。

[図4]図4は、実施例1用、実施例2用、参考例1用及び参考例2用の有機EL素子を製造するために準備した第1及び第2の構造体の概略構成を示す模式図であり、図4の(a)は実施例1用、実施例2用、参考例1用及び参考例2用の有機EL素子を製造するために準備した第1の構造体の概略構成を示しており、図4の(b)は、実施例1用、実施例2用、参考例1用及び参考例2用の有機EL素子を製造するために準備した第2の構造体の概略構成を示している。

[図5]図5は、実施例3用の有機EL素子を製造するために準備した第1及び第2の構造体の概略構成を示す模式図であり、図5の(a)は、実施例3用の有機EL素子を製造するために準備した第1の構造体の概略構成を示しており、図5の(b)は、実施例3用の有機EL素子を製造するために準備した第2の構造体の概略構成を示している。

[図6]図6は、参考例3用の有機EL素子を製造するために準備した第1及び第2の構造体の概略構成を示す模式図であり、図6の(a)は、参考例3用の有機EL素子を製造するために準備した第1の構造体の概略構成を示しており、図6の(b)は、参考例3用の有機EL素子を製造するために準備した第2の構造体の概略構成を示している。

[図7]図7は、実施例1、実施例2、参考例1及び参考例2の結果を示す図面である。

[図8]図8は、実施例1、実施例3及び参考例3の結果を示す図面である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明の実施形態について図面を参照しながら説明する。同一の要素には同一符号を付する。重複する説明は省略する。図面の寸法比率は、説明のものと必ずしも一致していない。

[0012] 図1に模式的に示したように、一実施形態に係る有機EL素子1は、第1及び第2の基材S1、S2と、陽極PEと、陰極NEと、複数の有機層OLとを備える。図1に示した形態では、陽極PEと陰極NEとの間に5つの有機層OLを含むが、後述するように、有機層OLの数は、5つに限定されない。有機EL素子1は、陽極PEから光を出射する形態及び陰極NE側から光を出射する形態を取り得るが、以下では断らない限り、陽極PEから光を出射する形態を説明する。

[0013] 第1の基材S1は、陽極PE及び少なくとも一つの有機層OLを支持する支持体である。第1の基材S1は、可視光（波長400nm～800nmの光）に対して透光性を有する。

[0014] 第1の基材S1は、例えば、ガラス基板またはプラスチック材料を含むプラスチックフィルムである。プラスチック材料の例は、ポリエーテルスルホン（PES）；ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル樹脂；ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、環状ポリオレフィン等のポリオレフィン樹脂；ポリアミド樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリスチレン樹脂；ポリビニルアルコール樹脂；エチレン-酢酸ビニル共重合体のケン化物；ポリアクリロニトリル樹脂；アセタール樹脂；ポリイミド樹脂；エポキシ樹脂である。

[0015] これらの樹脂のなかでも、耐熱性が高く、線膨張率が低く、かつ、製造コストが低いことから、ポリエステル樹脂、ポリオレフィン樹脂が好ましく、PET、PENが特に好ましい。これらの樹脂は、1種を単独で用いられて

もよいし、２種以上が組み合わせられて用いられてもよい。

[0016] 第１の基材Ｓ１の表面上には、バリア膜が形成されていてもよい。バリア膜は、例えば、ケイ素、酸素及び炭素からなる膜、又は、ケイ素、酸素、炭素及び窒素からなる膜であり得る。具体的には、バリア膜の材料の例は、酸化ケイ素、窒化ケイ素、酸窒化ケイ素等である。バリア膜の厚さの例は、１００ｎｍ以上１０μｍ以下である。

[0017] 第１の基材Ｓ１には、有機ＥＬ素子１を駆動するための駆動回路（例えば、薄膜トランジスタなどを含む回路）が形成されていてもよい。このような駆動回路は、通常、透明材料から構成される。

[0018] 第２の基材Ｓ２は、例えば、ガラス基板またはプラスチック材料を含むプラスチックフィルムである。プラスチック材料の例は、第１の基材Ｓ１におけるプラスチック材料の例と同様である。第２の基材Ｓ２は、後述する有機ＥＬ素子の製造方法において、陰極ＮＥ及び少なくとも一つの有機層ＯＬの支持体として機能する。

[0019] 陽極ＰＥには、金属酸化物、金属硫化物及び金属などからなる薄膜を用いることができ、具体的には酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、インジウム錫酸化物（Indium Tin Oxide：略称ITO）、インジウム亜鉛酸化物（Indium Zinc Oxide：略称IZO）、金、白金、銀、及び銅などからなる薄膜が用いられる。有機ＥＬ素子１が第１の基材Ｓ１側から光を出射する形態では、陽極ＰＥには光透過性を示す電極が用いられる。

[0020] 陰極ＮＥの材料としては、仕事関数が小さく、有機ＥＬ素子１が有する後述する発光層への電子注入が容易で、電気伝導度の高い材料が好ましい。陽極ＰＥ側から光を取り出す構成の有機ＥＬ素子１では、発光層から放射される光を陰極ＮＥで陽極ＰＥ側に反射するために、陰極ＮＥの材料としては可視光反射率の高い材料が好ましい。陰極ＮＥには、例えばアルカリ金属、アルカリ土類金属、遷移金属および周期表の１３族金属などを用いることができる。陰極ＮＥとしては導電性金属酸化物および導電性有機物などからなる

透明導電性電極を用いることができる。

[0021] 陽極P Eと陰極N Eとの間に設けられる複数の有機層O Lのうちの一つは発光層である。発光層は、所定の波長の光を発光する機能を有する有機層O Lである。発光層は、通常、主として蛍光及び／又はりん光を発光する有機物、或いは、該有機物とこれを補助するドーパントとから形成される。ドーパントは、例えば発光効率を向上させるため、あるいは、発光波長を変化させるために加えられる。発光層に含まれる有機物は、低分子化合物でも高分子化合物でもよい。発光層を構成する発光材料としては、例えば公知の色素系材料、金属錯体系材料、高分子系材料、ドーパント材料を挙げることができる。

[0022] 陽極P Eと発光層との間に設けられる有機層O Lの例としては、正孔注入層及び正孔輸送層が挙げられる。陰極N Eと発光層との間に設けられる層の例としては、電子注入層及び電子輸送層が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層及び電子注入層のそれぞれの材料としては、公知の材料を用いることができる。

[0023] 正孔注入層は、陽極P Eから発光層への正孔注入効率を改善する機能を有する有機層O Lである。正孔輸送層は、陽極P E、正孔注入層または陽極P Eにより近い正孔輸送層から発光層への正孔注入を改善する機能を有する層である。正孔注入層および／または正孔輸送層が電子の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が電子ブロック層と称される場合もある。

[0024] 電子注入層は、陰極N Eから発光層への電子注入効率を改善する機能を有する層である。電子輸送層は、陰極N E、電子注入層または陰極N Eにより近い電子輸送層からの電子注入を改善する機能を有する層である。電子輸送層には公知の電子輸送材料を用いることができる。電子注入層および／または電子輸送層が正孔の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が正孔ブロック層と称される場合もある。

[0025] 上述した各種の有機層O Lを含む有機E L素子1の層構成の例を以下に示す。

- (a) 陽極／発光層／陰極
- (b) 陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- (c) 陽極／正孔輸送層／発光層／陰極
- (d) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- (e) 陽極／正孔注入層／発光層／電子輸送層／陰極
- (f) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- (g) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (h) 陽極／正孔注入層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (i) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (j) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／陰極
- (k) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- (l) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (m) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- (n) 陽極／発光層／電子注入層／陰極
- (o) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- (p) 陽極／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極

記号「／」は、記号「／」の両側の層同士が接合していることを意味している。

[0026] 有機EL素子1は単層の発光層を有していても2層以上の発光層を有していてもよい。上記(a)～(p)の層構成のうちのいずれか1つにおいて、陽極PEと陰極NEとの間に配置された積層構造を「構造単位A」とすると、2層の発光層を有する有機EL素子1の構成として、例えば、下記(q)に示す層構成を挙げることができる。2個ある(構造単位A)の層構成は互いに同じであっても、異なってもよい。

- (q) 陽極／(構造単位A)／電荷発生層／(構造単位A)／陰極

[0027] ここで電荷発生層とは、電界を印加することにより、正孔と電子とを発生する層である。電荷発生層としては、例えば酸化バナジウム、ITO、酸化

モリブデンなどからなる薄膜を挙げることができる。

[0028] 「（構造単位 A）／電荷発生層」を「構造単位 B」とすると、3 層以上の発光層を有する有機 EL 素子 1 の構成として、例えば、以下の（r）に示す層構成を挙げることができる。

（r）陽極／（構造単位 B） $\times$ ／（構造単位 A）／陰極

[0029] 記号「 $\times$ 」は、2 以上の整数を表し、「（構造単位 B） $\times$ 」は、（構造単位 B）が $\times$ 段積層された積層体を表す。また複数ある（構造単位 B）の層構成は同じでも、異なってもよい。

[0030] 電荷発生層を設けずに、複数の発光層を直接的に積層させて有機 EL 素子 1 を構成してもよい。

[0031] 図 1 に例示したように、陽極 PE と陰極 NE との間に 5 つの有機層 OL を有する場合、上記構成の（m）に対応し得る。

[0032] 図 2 の（a）～図 2 の（c）を参照して、一実施形態に係る有機 EL 素子の製造方法を説明する。有機 EL 素子 1 の製造方法では、まず、図 2 の（a）及び図 2 の（b）に示した第 1 の構造体 10 及び第 2 の構造体 20 を準備する（構造体準備工程）。次に、図 2 の（c）に示したように、第 1 及び第 2 の構造体 10、20 を貼り合わせることによって、有機 EL 素子 1 を得る（貼り合わせ工程）。よって、第 1 及び第 2 の構造体 10、20 には、有機 EL 素子 1 が有する複数の有機層 OL が割り振られていることになる。

[0033] 構造体準備工程で準備する第 1 の構造体 10 は、陽極 PE と、有機 EL 素子 1 が有する複数の有機層 OL の一部（図 2 の（a）では 4 つの有機層 OL）をこの順に第 1 の基材 S1 上に積層することによって製造される。陽極 PE 及び有機層 OL は、例えば、蒸着法または塗布法により形成され得る。

[0034] 塗布法としては、スピコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレーコート法、ノズルコート法、グラビア印刷法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、反転印刷法、インクジェットプリン

ト法などを挙げることができる。

[0035] 塗布法に用いる塗布液の溶媒としては、塗布法により形成すべき対象物（陽極P E及び有機層O L等）の材料を溶解させるものであれば制限はなく、例えば、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタンなどの塩素系溶媒、テトラヒドロフランなどのエーテル系溶媒、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒、メタノール、エタノール、シクロヘキサノール、エチレングリコールなどのアルコール系溶媒、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテートなどのエステル系溶媒、および水を挙げることができる。

[0036] 第2の構造体2 0は、陰極N Eと、有機E L素子1が有する複数の有機層O Lの残部の有機層O L（図2の（b）では一つの有機層O L）をこの順に第2の基材S 2上に形成することで製造される。陰極N Eおよび有機層O Lは、例えば、蒸着法または塗布法により形成され得る。塗布法の例及び溶媒の例は、第1の構造体1 0の場合と同様である。

[0037] 図2の（c）に示した貼り合わせ工程では、第1及び第2の構造体1 0，2 0を貼合法で貼り合わせる。すなわち、第1の構造体1 0のうち第1の基材S 1からみて反対側に位置する有機層O Lである有機層（第1の有機層）O L 1と、第2の構造体2 0のうち第2の基材S 2からみて反対側に位置する有機層O Lである有機層（第2の有機層）O L 2と、を接触させた状態でそれらを加熱することによって、第1及び第2の構造体1 0，2 0を貼り合わせる。よって、有機層O L 1の表面O L 1 a及び有機層O L 2の表面O L 2 aが第1及び第2の構造体1 0，2 0の界面を構成する。

[0038] 加熱条件について説明する。加熱温度をT（℃）とし、所定のガラス転移温度をT L（℃）としたとき、加熱温度Tは、次の式（1）を満たす。

$$T L（℃）+ 10℃ \leq T（℃） \cdots (1)$$

[0039] 上記所定のガラス転移温度T Lは、有機層O L 1及び有機層O L 2のガラス転移温度のうちより高くない方のガラス転移温度である。具体的には、所定のガラス転移温度T Lは、有機層O L 1及び有機層O L 2のガラス転移温

度が異なる場合は、より低い方のガラス転移温度に相当し、有機層OL1及び有機層OL2のガラス転移温度が実質的に同じ場合は、有機層OL1又は有機層OL2のガラス転移温度に相当する。

[0040] 加熱温度Tの上限は、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で適宜設定され得るが、例えば、有機層OL1の融点または分解温度及び有機層OL2の融点または分解温度のうち最も低い温度であり得る。

[0041] 有機層OL1及び有機層OL2を構成する材料が混合物でない場合、有機層OL1及び有機層OL2のガラス転移温度は有機層OL1及び有機層OL2を構成する材料のガラス転移温度である。有機層OL1及び有機層OL2が混合物から構成されている場合、それらのガラス転移温度は、混合物中に最も多く含まれている有機物のガラス転移温度とする。有機層OL1において、混合物中に最も多く含まれている有機物とは、有機層OL1における主成分を意味しており、例えば、組成割合で50%超含まれる成分を意味する。同様に、有機層OL2において、混合物中に最も多く含まれている有機物とは、有機層OL2における主成分を意味しており、例えば、組成割合で50%超含まれる成分を意味する。

[0042] 加熱方法は限定されないが、ホットプレートによる加熱、光による加熱、及び、高熱ガスの噴射による加熱が挙げられる。

[0043] 上記有機EL素子1の製造方法では、第1及び第2の構造体10, 20を製造した後、それらを貼合法で貼り合わせて、有機EL素子1を製造している。そのため、陰極NE及び陽極PE間の短絡が生じにくい。

[0044] 第1及び第2の構造体10, 20を貼り合わせる際、加熱温度Tが式(1)を満たしており、有機層OL1及び有機層OL2のガラス転移温度のうちより高くない方のガラス転移温度（すなわち、所定のガラス転移温度TL）より10℃以上高い温度で加熱する。よって、例えば、所定のガラス転移温度TL以下で加熱する場合よりも短時間でかつ有機層OL1及び有機層OL2の密着性を向上させながら第1及び第2の構造体10, 20を貼り合わせられる。したがって、界面でのキャリア移動の阻害が生じにくいので、界面で

の電子輸送性が向上し易いと共に、生産性の向上が図れる。

[0045] 上記製造方法において、有機層OL1及び有機層OL2のうち所定のガラス転移温度 T_L をガラス転移温度とする有機層は、所定のガラス転移温度 T_L をガラス転移温度として有すると共に、分子量が1000以上である有機物を含んでいることが好適である（有機物が高分子化合物である場合、分子量は、ポリスチレン換算重量平均分子量である）。この場合、結晶化し難いので、式（1）を満たす加熱温度を実現し易い。なお、所定のガラス転移温度 T_L をガラス転移温度として有すると共に、分子量が1000以上である有機物は、その有機物を含む有機層が混合物から構成されている場合、有機層における主成分であり得る。本明細書における主成分の定義は、前述した通りである。

[0046] 以下、実施例1～3及び参考例1～3を参考にして、第1及び第2の構造体を貼り合わせる際の加熱温度が上記式（1）を満たす場合の作用効果を具体的に説明する。実施例1～3及び参考例1～3に対して6個の有機EL素子を製造した。説明のために、製造した6個の有機EL素子を有機EL素子E1, E2, E3, E4, E5, E6と称す。

[0047] 有機EL素子E1, E2, E3, E4, E5, E6に含まれる発光層、電子輸送層および電子注入層の成膜方法について説明する。

[0048] （発光層の成膜）

フルオレン-芳香族共重合体ポリマー（ガラス転移温度144℃、ポリスチレン換算重量平均分子量 2.3×10^5 ）を大気中においてキシレン溶媒中へ溶解させた。調製した溶液を用いて大気中でスピンコート法を用いて下地層上に成膜を行った。その後、不活性ガス雰囲気下において130℃、10分間ホットプレート上で加熱を行い、残留溶媒の除去を行った。

[0049] （電子輸送層の成膜）

特開2012-033845号公報の段落401に記載の共役高分子化合物（ガラス転移温度219℃、ポリスチレン換算重量平均分子量 1.5×10^5 ）を大気中においてメタノール溶媒中へ溶解させた。調製した溶液を用い

てスピンコート法を用いて大気中で下地層上に成膜を行った。その後、不活性ガス雰囲気下において130℃、10分間ホットプレート上で加熱を行い、残留溶媒の除去を行った。

[0050] (電子注入層の成膜)

特開2008-056909号公報の段落262に記載の高分子化合物(ガラス転移温度126℃、ポリスチレン換算重量平均分子量 1.7×10^5)を大気中においてキシレン溶媒中へ溶解させた。その後、不活性中雰囲気下において調製した溶液に1,3-ジメチル-2-フェニル-2,3-ジヒドロ-1H-ベンゾイミダゾール(アルドリッチ製)を特開2008-056909号公報の段落262に記載の高分子化合物の質量に対し25%となるように溶解させた。調製した溶液を用いて大気中でスピンコート法を用いて下地層上に成膜を行った。その後、不活性ガス雰囲気下において130℃、10分間ホットプレート上で加熱を行い、残留溶媒の除去を行った。

[0051] 有機EL素子E1～E6は何れも第1の基材S1としてPENからなるフィルムを使用し、第2の基材S2としてガラス基板を用いた。陽極PEとしては銀(Ag)からなる薄膜を使用し、陰極NEとしては、アルミニウム(Al)の薄膜と酸化亜鉛(ZnO)の薄膜の2層構造を使用した。陽極PEは、蒸着法で形成した。陰極NEは、第2の基材S2側から順にアルミニウムの薄膜及び酸化亜鉛の薄膜をそれぞれ蒸着法とスパッタリング法により形成した。図3に示したように、有機EL素子E1～E6における陽極PEから陰極NEの間の層構成は、前述した構成(p)の通りであった。有機EL素子E1～E6が有する各層の厚さ及び材料は同じである。

[0052] すなわち、有機EL素子E1～E6のそれぞれでは、陽極PE上に有機層OLとして、発光層11、電子輸送層12及び電子注入層21が積層され、電子注入層21上に陰極NEが設けられていた。

[0053] 電子輸送層12のガラス転移温度は219℃であった。電子注入層21のガラス転移温度は126℃であった。

[0054] (有機EL素子E1の製造)

有機EL素子E 1を製造するために、図4の（a）に示したように、第1の基材S 1上に、陽極P E、発光層1 1、電子輸送層1 2及び電子注入層2 1 aを順次形成することで第1の構造体1 0 Aを準備すると共に、図4の（b）に示したように、第2の基材S 2上に、陰極N E及び電子注入層2 1 bを順次形成することで第2の構造体2 0 Aを準備した。第1の構造体1 0 Aの準備において、発光層1 1、電子輸送層1 2及び電子注入層2 1 aのそれぞれに対する下地層は、陽極P E、発光層1 1及び電子輸送層1 2であり、第2の構造体2 0 Aの準備において、電子注入層2 1 bに対する下地層は陰極N Eである。

[0055] 第1の構造体1 0 Aでは、第1の基材S 1上の積層構造において最表層は電子注入層2 1 aであった。第2の構造体2 0 Aでは、第2の基材S 2上の積層構造において最表層は、電子注入層2 1 bであった。電子注入層2 1 a, 2 1 bはそれらが貼合されて図3に示した有機EL素子E 1の電子注入層2 1となる層である。すなわち、電子注入層2 1 a, 2 1 bの厚さは、それらの厚さの合計が、電子注入層2 1の厚さと同じ厚さとなるように設定されていた。図4の（a）及び図4の（b）において、図示のため、電子注入層2 1 a, 2 1 bの厚さを厚く示している。

[0056] その後、第1の構造体1 0 Aの電子注入層2 1 aと第2の構造体2 0 Aの電子注入層2 1 bとを対向させた状態でそれらを重ねた後、第1及び第2の構造体1 0 A, 2 0 Aをホットプレートで加熱し、電子注入層2 1 a及び電子注入層2 1 bを貼合することによって有機EL素子E 1を得た。ホットプレートの加熱は、150℃で20分、行った。なお、電子注入層2 1 a, 2 1 bのガラス転移温度は、前述した電子注入層2 1のガラス転移温度と同じである。

[0057] （有機EL素子E 2の製造）

図4の（a）及び図4の（b）に示した第1の構造体1 0 Aと第2の構造体2 0 Aの貼り合わせの際、すなわち、電子注入層2 1 a及び電子注入層2 1 bを貼合する際に、加熱温度を170℃に変更した点以外は、有機EL素

子E 1と同様の方法で、有機EL素子E 2を製造した。

[0058] (有機EL素子E 3の製造)

図4の(a)及び図4の(b)に示した第1の構造体10Aと第2の構造体20Aの貼り合わせの際に、加熱温度を110℃に変更した点以外は、有機EL素子E 1と同様の方法で、有機EL素子E 3を製造した。

[0059] (有機EL素子E 4の製造)

図4の(a)及び図4の(b)に示した第1の構造体10Aと第2の構造体20Aの貼り合わせの際に、加熱温度を130℃に変更した点以外は、有機EL素子E 1と同様の方法で、有機EL素子E 4を製造した。

[0060] (有機EL素子E 5の製造)

有機EL素子E 5を製造するために、図5の(a)に示したように、第1の基材S 1上に、陽極PE、発光層11及び電子輸送層12を順次形成することで第1の構造体10Bを準備すると共に、図5の(b)に示したように、第2の基材S 2上に、陰極NE及び電子注入層21を順次形成することで第2の構造体20Bを準備した。有機EL素子E 5を構成する第1の構造体10Bの準備において、発光層11及び電子輸送層12のそれぞれに対する下地層は、陽極PE及び発光層11であり、第2の構造体20Bの準備において、電子注入層21に対する下地層は陰極NEである。第1の構造体10Bでは、第1の基材S 1上の積層構造において最表層は電子輸送層12であった。第2の構造体20Bでは、第2の基材S 2上の積層構造において最表層は、電子注入層21であった。その後、第1の構造体10Bの電子輸送層12と第2の構造体20Bの電子注入層21を対向させた状態でそれらを重ねた後、第1及び第2の構造体10B、20Bをホットプレートで加熱し、電子輸送層12及び電子注入層21を貼合することによって有機EL素子E 5を得た。ホットプレートの加熱は、150℃で20分、行った。

[0061] (有機EL素子E 6の製造)

有機EL素子E 6を製造するために、図6の(a)に示したように、第1の基材S 1上に、陽極PE、発光層11及び電子輸送層12aを順次形成す

ることで第1の構造体10Cを準備すると共に、図6の(b)に示したように、第2の基材S2上に、陰極NE、電子注入層21及び電子輸送層12bを順次形成することで第2の構造体20Cを準備した。第1の構造体10Cの準備において、発光層11及び電子輸送層12aのそれぞれに対する下地層は、陽極PE及び発光層11であり、第2の構造体20Cの準備において、電子注入層21及び電子輸送層12bのそれぞれに対する下地層は陰極NE及び電子注入層21である。

[0062] 第1の構造体10Cでは、第1の基材S1上の積層構造において最表層は電子輸送層12aであった。第2の構造体20Cでは、第2の基材S2上の積層構造において最表層は、電子輸送層12bであった。電子輸送層12a, 12bはそれらが貼合されて図3に示した有機EL素子E6の電子輸送層12となる層である。すなわち、電子輸送層12a, 12bの厚さは、それらの厚さの合計が、電子輸送層12の厚さと同じ厚さとなるように設定されていた。図6の(a)及び図6の(b)において、図示のため、電子輸送層12a, 12bの厚さを厚く示している。

[0063] その後、第1の構造体10Cの電子輸送層12aと第2の構造体20Cの電子輸送層12bとを対向させた状態でそれらを重ねた後、第1及び第2の構造体10C, 20Cをホットプレートで加熱し、電子輸送層12a及び電子輸送層12bを貼合することによって有機EL素子E6を得た。ホットプレートの加熱は、150℃で20分、行った。電子輸送層12a, 12bのガラス転移温度は、前述した電子輸送層12のガラス転移温度と同じである。

[0064] (実施例1)

有機EL素子E1が有する陽極PEと陰極NEとの間に電圧を印加し、印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

(実施例2)

有機EL素子E2が有する陽極PEと陰極NEとの間に実施例1と同様に

電圧を印加し、実施例 1 と同様に印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

(参考例 1)

有機 E L 素子 E 3 が有する陽極 P E と陰極 N E との間に実施例 1 と同様に電圧を印加し、実施例 1 と同様に印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

(参考例 2)

有機 E L 素子 E 4 が有する陽極 P E と陰極 N E との間に実施例 1 と同様に電圧を印加し、実施例 1 と同様に印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

(実施例 3)

有機 E L 素子 E 5 が有する陽極 P E と陰極 N E との間に実施例 1 と同様に電圧を印加し、実施例 1 と同様に印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

(参考例 3)

有機 E L 素子 E 6 が有する陽極 P E と陰極 N E との間に実施例 1 と同様に電圧を印加し、実施例 1 と同様に印加電圧を変化させながら電流密度に基づいて界面での電子輸送性を評価した。

[0065] (結果の比較)

実施例 1, 2 及び参考例 1, 2 の結果は、図 7 に示した通りであった。有機 E L 素子 E 1 ~ E 4 の製造において、第 1 及び第 2 の構造体 10 A, 10 B の界面を構成する 2 つの有機層は、電子注入層 21 a と電子注入層 21 b であり、それらのガラス転移温度は 126℃であった。よって、有機 E L 素子 E 1, E 2 の製造における加熱温度が式 (1) を満たし、有機 E L 素子 E 3, E 4 の製造における加熱温度は式 (1) を満たしていない。

[0066] 図 7 に示したように、式 (1) を満たす加熱温度で製造された有機 E L 素子 E 1, E 2 では、式 (1) を満たさない加熱温度で製造された有機 E L 素子 E 3, E 4 より高い電流密度が実現できており、有機 E L 素子 E 1, E 2

の方が、有機EL素子E3、E4より界面での電子輸送性が向上していることがわかる。

[0067] 実施例1、実施例3及び参考例3の結果は、図8に示した通りであった。有機EL素子E1の製造における加熱温度が式(1)を満たしていることは前述した通りである。有機EL素子E5の製造において、第1及び第2の構造体10B、20Bの界面を構成する2つの有機層は、電子輸送層12及び電子注入層21であり、それらのガラス転移温度は、219℃及び126℃であった。よって、有機EL素子E5の製造における加熱温度も式(1)を満たしていた。一方、有機EL素子E6の製造において、第1及び第2の構造体10C、20Cの界面を構成する2つの有機層は、電子輸送層12a、12bであり、それらのガラス転移温度は、219℃であった。よって、有機EL素子E6の製造における加熱温度は式(1)を満たしていなかった。

[0068] 図8に示したように、式(1)を満たす加熱温度で製造された有機EL素子E1、E5では、式(1)を満たさない加熱温度で製造された有機EL素子E6より高い電流密度が実現できており、有機EL素子E1、E5の方が、有機EL素子E6より電子注入性が向上していることがわかる。すなわち、第1及び第2の構造体の貼り合わせの際に接する有機層の材料に依存することなく、加熱温度が式(1)を満たすことで、界面での電子輸送性の向上を実現できることがわかる。

[0069] したがって、実施例1～3及び参考例1～3の結果より、第1及び第2の構造体10、20を貼り合わせる際の加熱温度が式(1)を満たすことで、界面での電子輸送性の向上を実現できる。また、第1及び第2の構造体10、20を予め製造した後に、それらを貼り合わせて有機EL素子1を製造しているため、陽極PE及び陰極NEの短絡などが生じにくい。その結果、生産性の向上も図れる。

[0070] 以上、本発明の種々の実施形態について説明した。しかしながら、本発明は上述した種々の実施形態に限定されず、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で種々の変形が可能である。

符号の説明

[0071] 1…有機EL素子、10…第1の構造体、20…第2の構造体、S1…第1の基材、S2…第2の基材、PE…陽極、NE…陰極、OL…有機層、OL1…有機層（第1の有機層）、OL2…有機層（第2の有機層）。

請求の範囲

[請求項1] 陽極及び第1の有機層を第1の基材上に有しており前記第1の有機層が前記第1の基材に対して最も外側に位置している第1の構造体を準備すると共に、陰極及び第2の有機層を第2の基材上に有しており前記第2の有機層が前記第2の基材に対して最も外側に位置している第2の構造体を準備する工程と、

前記第1の構造体が有する前記第1の有機層と前記第2の構造体が有する第2の有機層を対向させるように、前記第1及び第2の構造体を貼り合わせる工程と、

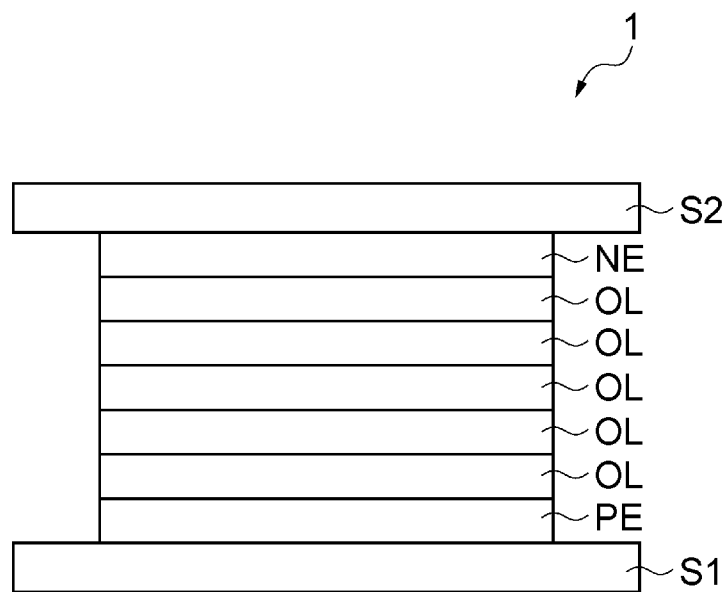
を備え、

前記貼り合わせる工程では、所定のガラス転移温度から10℃以上高い温度で前記第1及び第2の構造体を加熱して前記第1及び第2の構造体を貼り合わせ、

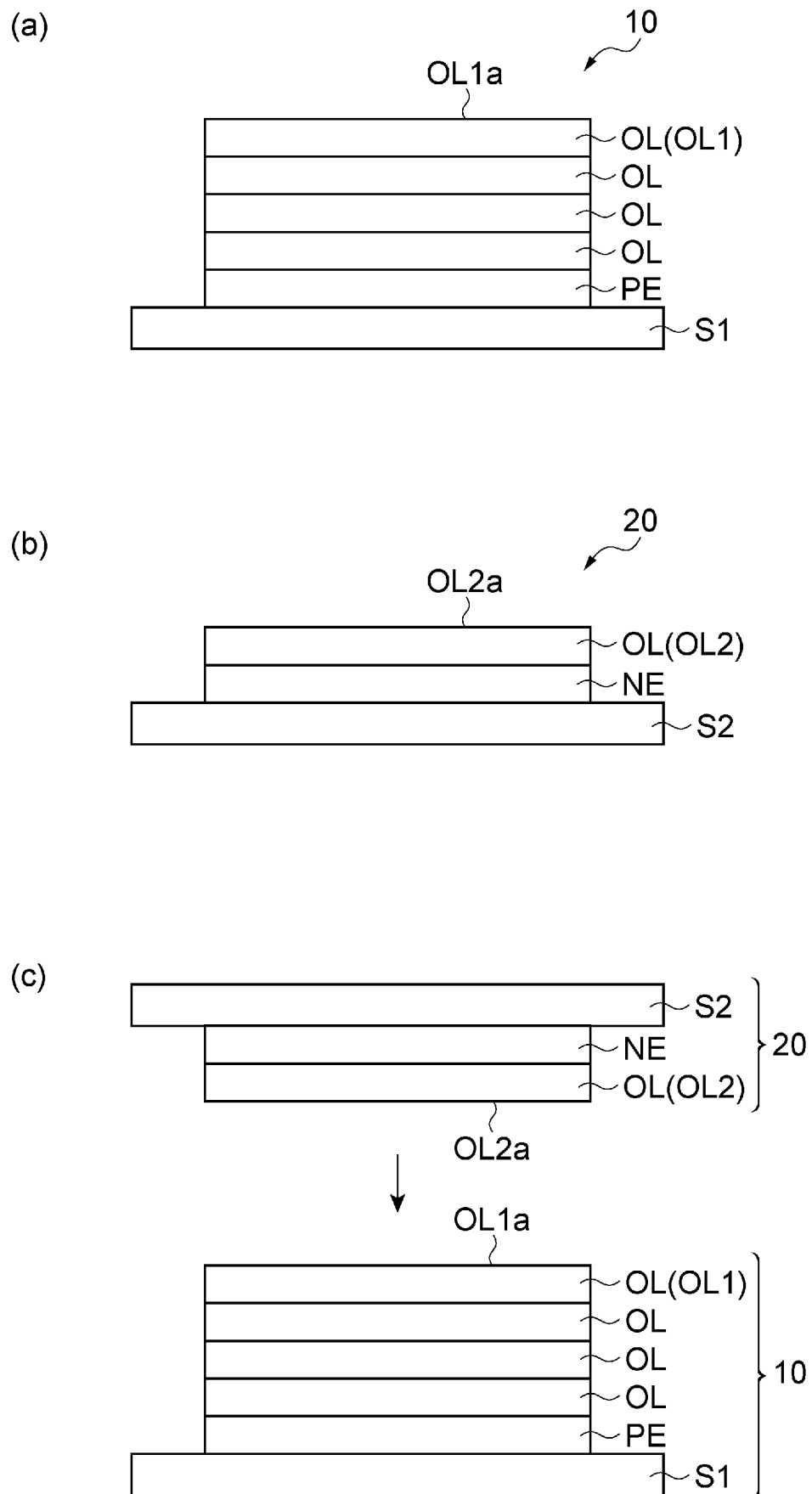
前記所定のガラス転移温度は、前記第1の構造体が有する前記第1の有機層のガラス転移温度と、前記第2の構造体が有する第2の有機層のガラス転移温度のうち、より高くないガラス転移温度である、有機EL素子の製造方法。

[請求項2] 前記第1及び第2の有機層のうち前記所定のガラス転移温度を有する有機層は、前記所定のガラス転移温度を有すると共に、分子量が1000以上の有機物を含んでいる、請求項1に記載の有機EL素子の製造方法。

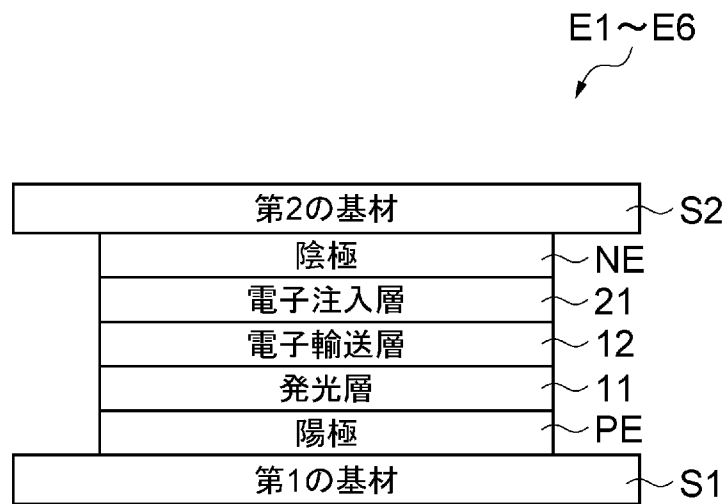
[図1]



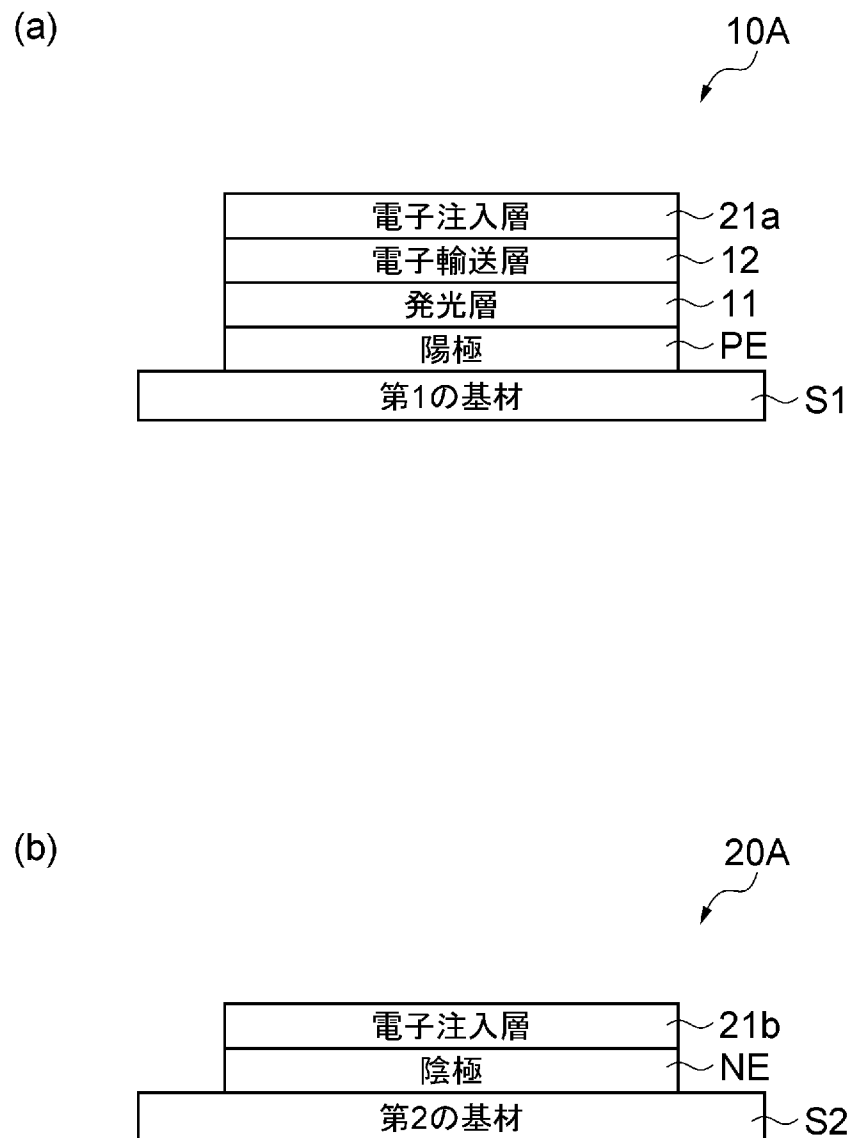
[図2]



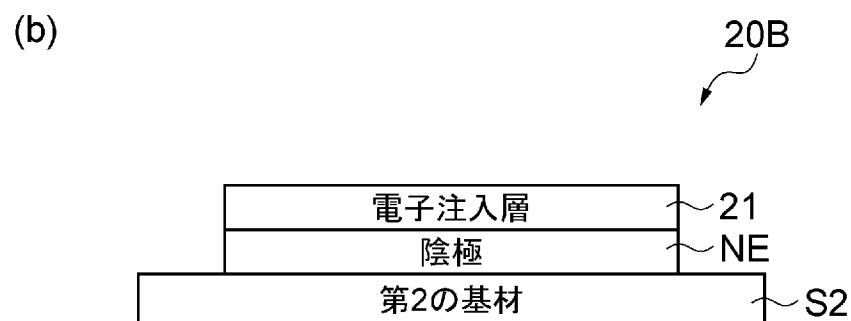
[図3]



[図4]

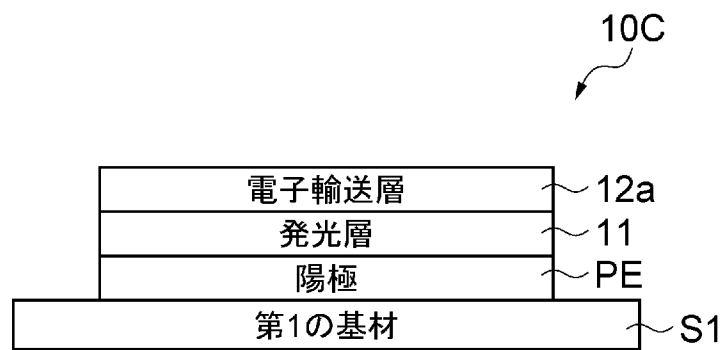


[図5]

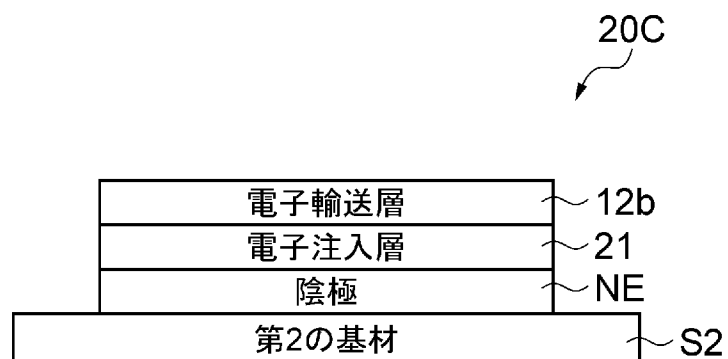


[図6]

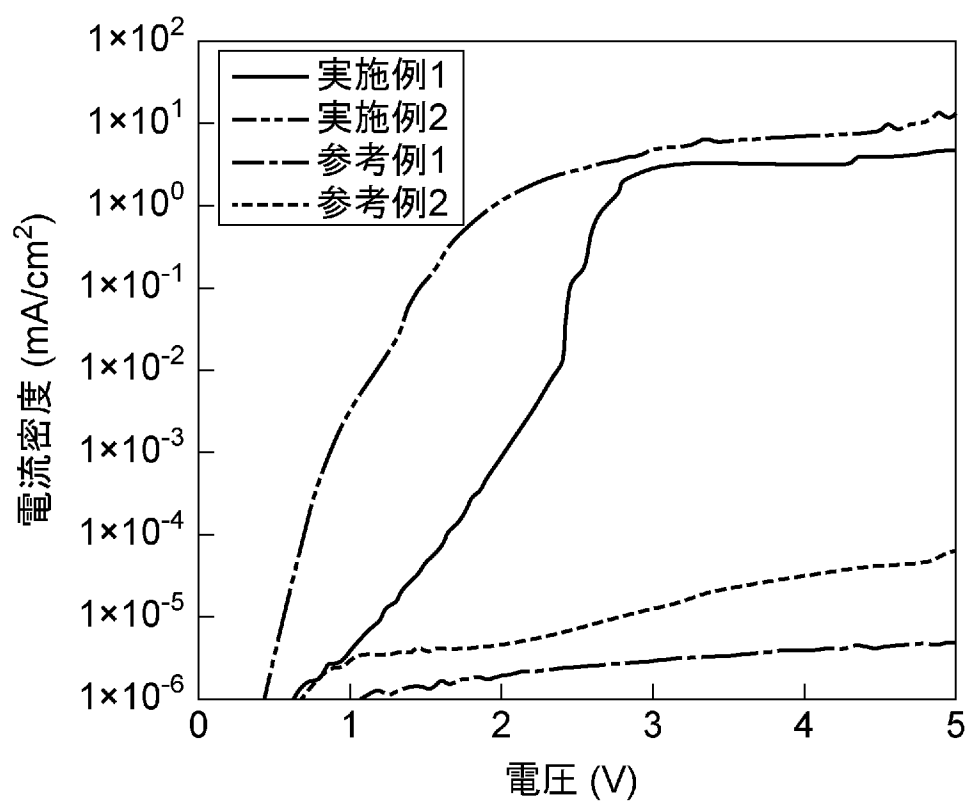
(a)



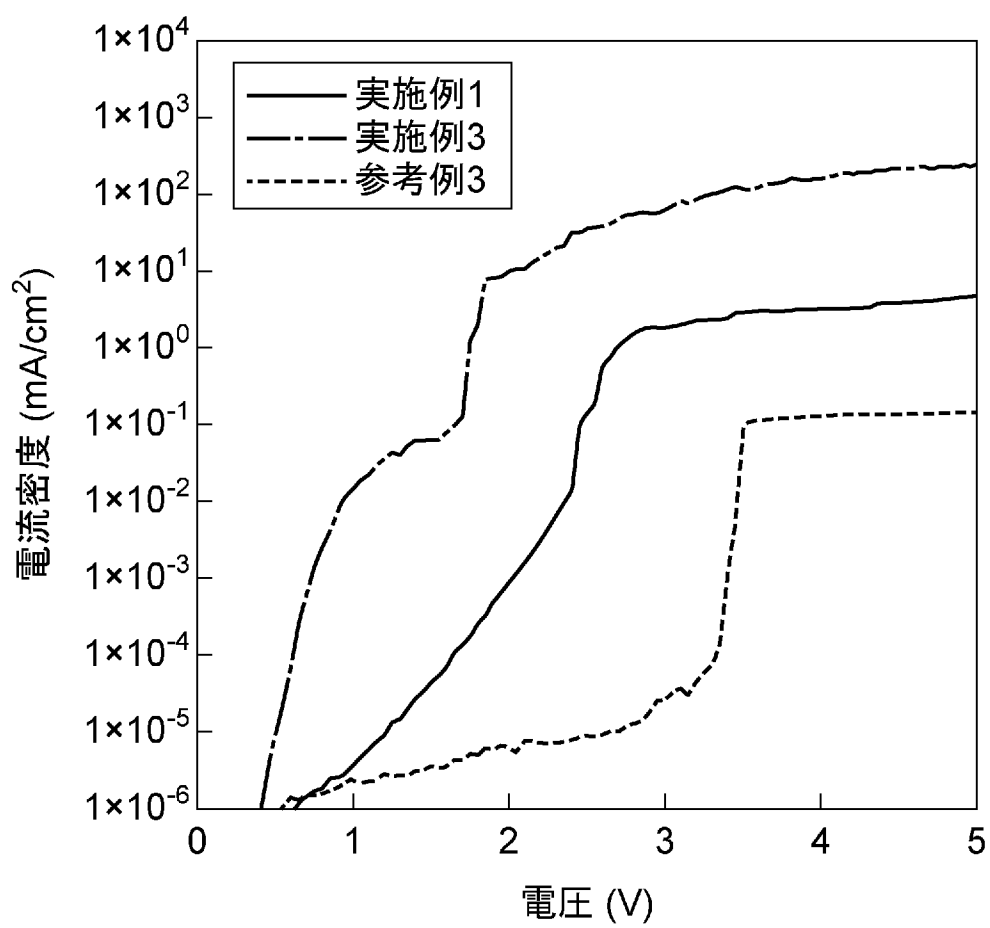
(b)



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/080865

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/10(2006.01) i, H01L51/50(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)

H05B33/10, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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.
A	JP 2008-210615 A (Tokai Rubber Industries, Ltd.), 11 September 2008 (11.09.2008), paragraphs [0040], [0044], [0079], [0093] to [0094] (Family: none)	1-2
A	JP 2002-203675 A (Canon Inc.), 19 July 2002 (19.07.2002), paragraphs [0028] to [0031]; fig. 1 & US 2002/0053401 A1 fig. 1A to 1B; paragraphs [0033] to [0050]	1-2
A	JP 2000-77192 A (Pioneer Corp.), 14 March 2000 (14.03.2000), claims 1 to 4 (Family: none)	1-2

☒ 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

"T" 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
24 November 2016 (24.11.16)

Date of mailing of the international search report
06 December 2016 (06.12.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/080865

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2007/148649 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 27 December 2007 (27.12.2007), entire text; all drawings & JP 2008-4671 A	1-2
A	JP 2004-303653 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 28 October 2004 (28.10.2004), entire text; all drawings & US 2004/0192070 A1 entire text; all drawings	1-2

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H05B33/10(2006.01)i, H01L51/50(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（IPC））

Int.Cl. H05B33/10, H01L51/50

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

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）

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
A	JP 2008-210615 A（東海ゴム工業株式会社）2008.09.11, [0040],[0044],[0079],[0093]-[0094]（ファミリーなし）	1-2
A	JP 2002-203675 A（キヤノン株式会社）2002.07.19, [0028]- [0031],[図1] & US 2002/0053401 A1(Fig.1A-1B, [0033]-[0050])	1-2
A	JP 2000-77192 A（パイオニア株式会社）2000.03.14, [請求項1]- [請求項4]（ファミリーなし）	1-2

☒ 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

「A」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
「E」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
「L」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）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」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
「X」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
「Y」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
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

24.11.2016

国際調査報告の発送日

06.12.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

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）

大竹 秀紀

20

5554

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

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
A	WO 2007/148649 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2007.12.27, 全文全図 & JP 2008-4671 A	1-2
A	JP 2004-303653 A (富士写真フイルム株式会社) 2004.10.28, 全文全図 & US 2004/0192070 A1(全文全図)	1-2