

(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
2010 年 10 月 21 日(21.10.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/119503 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/057484
- (22) 国際出願日: 2009 年 4 月 14 日(14.04.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 富士電機ホールディングス株式会社 (Fuji Electric Holdings Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒2100856 神奈川県川崎市川崎区田辺新田 1 番 1 号 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 寺尾 豊 (TERAO, Yutaka) [JP/JP]; 〒1918502 東京都日野市富士町 1 番地 富士電機アドバンステクノロジー株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 谷 義一, 外 (TANI, Yoshikazu et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂 2 丁目 6 - 20 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

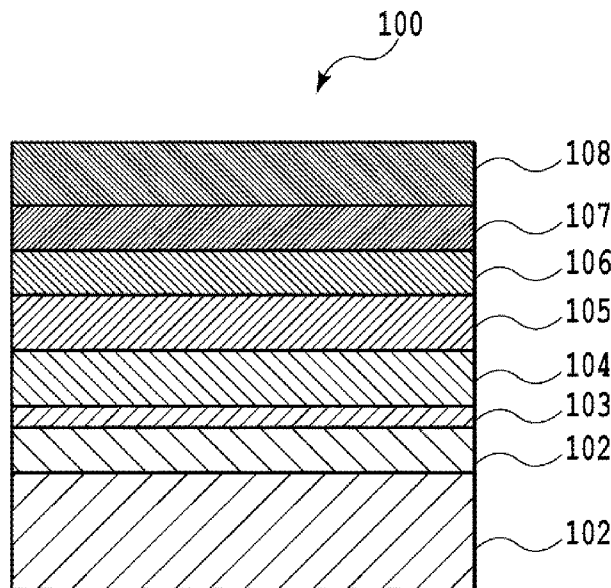
添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法

[図1]



板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送層、発光層、電子輸送層は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物材料からなり、電子注入層が、光学バンドギャップが2.1 eV以上の、n型カルコゲナイド半導体からなることを特徴とする。また、本発明の有機EL素子の製造方法は、n型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層を、プラズマ放電を用いない物理気相成長法で形成することを特徴とする。

(57) Abstract: Disclosed are an organic electroluminescent element and a manufacturing method thereof. A low-voltage, high-efficiency top emission or transparent organic electroluminescent (EL) element is provided. The organic EL element comprises an anode, an organic EL layer, and a cathode deposited successively on a support substrate. The organic EL layer is provided with at least a positive hole transport layer, a light emitting layer, an electron transport layer, and an electron injection layer in order from the anode side. The positive hole transport layer, the light emitting layer, and the electron transport layer are composed of organic materials. The cathode is composed of a transparent conductive oxide material. The electron injection layer is composed of an n-type chalcogenide semiconductor having an optical band gap of at least 2.1 eV. In addition, the manufacturing method of the organic EL element involves forming the electron injection layer which is composed of the n-type chalcogenide semiconductor by a physical vapor deposition method which does not use plasma discharge.

(57) 要約: 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法に関する。本発明は、低電圧かつ高効率なトップエミッション型、あるいは透明有機EL素子を提供する。本発明の有機EL素子は、支持基板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送層、発光層、電子輸送層は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物材料からなり、電子注入層が、光学バンドギャップが2.1 eV以上の、n型カルコゲナイド半導体からなることを特徴とする。また、本発明の有機EL素子の製造方法は、n型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層を、プラズマ放電を用いない物理気相成長法で形成することを特徴とする。

明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下有機ＥＬ素子とも称する）およびその製造方法を提供することを目的とする。特に、本発明は高発光効率で、低消費電力な透明有機ＥＬ素子、（特に、トップエミッション型有機ＥＬ素子）及びその製造方法を提供することを目的とする。この有機ＥＬ素子は、フラットパネルディスプレイおよび照明用光源、特にアクティブマトリクス（ＡＭ）駆動有機ＥＬディスプレイおよび有機ＥＬ照明に応用可能である。

背景技術

[0002] 有機ＥＬ素子は低電圧で高い電流密度が実現できるため、高い発光輝度および発光効率を実現することができ、近年、液晶ディスプレイのようなフラットパネルディスプレイへの応用が既に実用化され、また、照明用光源としても期待されている。

[0003] この有機ＥＬ素子は、少なくとも発光層を含む有機ＥＬ層、ならびに有機ＥＬ層を挟持する陽極および陰極を含む。光を取り出す側の電極は、発光層からのＥＬ光に対し高透過率であることが求められている。光取り出し側の電極を構成する材料として、通常、例えば、インジウムスズ酸化物（ＩＴＯ）、インジウム亜鉛酸化物（ＩＺＯ）、インジウムタングステン酸化物（ＩＷＯ）等の透明導電性酸化物材料が用いられる。これらの透明導電性酸化物材料は、仕事関数が約 5 eV と比較的大きいので有機材料への正孔注入電極（陽極）として用いられる。

[0004] 有機ＥＬ素子の発光は、発光層材料の最高占有分子軌道（ＨＯＭＯ、一般にイオン化ポテンシャルとして計測される）へ注入された正孔と、最低非占有分子軌道（ＬＵＭＯ、一般に電子親和力として測定される）へ注入された

電子が再結合することによって生成された励起子の励起エネルギーが緩和するときに光を放出することによって得られる。有機EL素子としては、発光層への正孔注入と電子注入を効率的に行うために、一般的に、発光層の他に、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層のいずれかまたは全てを用いた積層構造がとられている。

[0005] 従来は、透明な支持基板上に、下部電極としてITOからなる陽極を形成し、その上に有機EL層として正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層などを順次形成し、その上に上部電極としてAl等の金属膜からなる陰極を形成し、支持基板側から光を取り出すタイプ（ボトムエミッションタイプ）の有機EL素子が一般的であった。

[0006] しかし、近年、フラットパネルディスプレイとしての応用においては、高輝度、低消費電力が見込めることから、画素毎にアモルファスSiやポリSiからなる薄膜トランジスタ（TFT）によるスイッチング素子を設けて、その上に有機EL素子を形成するAM駆動有機ELディスプレイが主流となってきている。

[0007] この場合、スイッチング素子が不透明であるため、画素の開口率（発光面積）が低下するという問題がある。この画素の開口率低下を防ぐ手段として、上部電極を透明にして光を成膜面側から取り出すタイプ（トップエミッション型）の有機EL素子を適用することが望ましくなっている。

[0008] 透明電極を上部電極とする場合、下部反射電極を陽極として、正孔注入／輸送層、発光層、および電子注入／輸送層を順次形成して上部透明電極を陰極とする手法（非特許文献1参照）と、下部反射電極を陰極として、その上に電子注入／輸送層、発光層、および正孔注入／輸送層を順次形成し、上部透明電極を陽極とする手法（非特許文献2参照）がある。

[0009] 特に、ポリSi-TFTをスイッチング素子として用いる場合は、スイッチング回路構成の点から下部電極を陽極とすることが一般的であり、上部透明電極を陰極とするニーズが高い。

[0010] 上部透明陰極にはMg-Ag合金等の金属薄膜が用いられることがある。

しかしながら金属薄膜を用いた上部透明電極には、金属が可視光を少なからず吸収するため発光強度が低下するという問題があり、また、高反射性であるためにマイクロキャビティ効果を伴い、下部反射電極と金属薄膜間の距離を決める有機層の膜厚分布制御を非常に精巧に制御する必要が生じるという問題もある。そのため、従来陽極に用いてきた透明導電性酸化物材料を上部透明陰極として用いることが望まれている。

[0011] ところが、透明導電性酸化物材料をスパッタリング法等によって有機EL層の上に堆積させる際に、有機物からなる発光層材料および／または、電子注入輸送材料が容易に酸化されるおそれがある。これらの材料の酸化は、その機能を劣化させ、有機EL素子の発光効率を著しく損なうおそれがある。

[0012] この有機EL層の酸化による劣化の問題を解決する方法として、透明導電性酸化物材料からなる電極と電子輸送層との間に、ダメージ緩和層を設ける方法が従来用いられてきた。ダメージ緩和層としては、陰極材料として用いられてきたMg-Ag合金の非常に薄い膜（非特許文献1参照）、および銅フタロシアニン（CuPc）薄膜（非特許文献3参照）が提案されている。

[0013] 一方、無機材料からなる電子注入層を電子輸送層上に設けることにより、スパッタリング法によるダメージを防止する方法も提案されている（特許文献1参照）。

[0014] また、無機半導体からなる正孔注入／輸送層および／または電子注入／輸送層を有機EL素子の電荷注入／輸送層に適用する方法が提案されている（特許文献2-7）。特許文献2-7に記載の技術は、以下に挙げる当時の有機EL素子の課題に鑑みて提案されたものである。

- ・有機半導体は真性半導体であって、無機半導体と比べて電荷密度が極めて少ない。また、有機半導体は電荷の移動度も小さいので、その電気伝導度が低く、有機EL素子の駆動電圧を高くする必要がある。

- ・有機半導体材料の耐熱性が低いため、信頼性および／または熱安定性に欠ける。

[0015] 無機半導体層をトップエミッション型あるいは透明有機EL素子に適用す

る場合、無機半導体層は発光層から見て光取出し側に形成されるため、可視光、少なくとも発光層から放射される光に対して透明であることが求められ、この観点からSiC、SiN、a-C（アモルファスカーボン）、酸化物半導体、II-VI族化合物半導体、III-V族化合物半導体等が好ましく用いられる。

先行技術文献

特許文献

[0016] 特許文献1：特開2000-340364号公報

特許文献2：特開昭62-76576号公報

特許文献3：特開平1-312874号公報

特許文献4：特開平2-196475号公報

特許文献5：特開平3-77299号公報

特許文献6：特開平3-210792号公報

特許文献7：特開平11-149985号公報

非特許文献

[0017] 非特許文献1：Nature、Vol. 380（1996年3月7日）29頁

非特許文献2：Applied Physics Letters、Vol. 70 Iss. 22（1997年6月2日）2954頁

非特許文献3：Applied Physics Letters、Vol. 72 Iss. 17（1998年4月27日）2138頁

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0018] ダメージ緩和層として金属薄膜を用いる方法（非特許文献1）においては、十分なダメージ緩和効果を得るためには、金属薄膜の膜厚を厚くする必要がある。しかし、金属薄膜の膜厚を厚くすると、発光層からの光を吸収してしまう問題が浮上してくる。また、ダメージ緩和層としてCuPcを用いる方法（非特許文献3）は、ダメージ緩和層における光吸収の問題は軽減され

る。しかしながら、電子輸送層へのC u P cの電子注入性が十分ではないために、素子の駆動電圧が高くなり、かつ、発光効率が低下してしまうという課題を抱えている。

[0019] また、無機材料からなる電子注入層を電子輸送層上に設けることにより、スパッタリング法によるダメージを防止する方法（特許文献1）では、無機電子注入層は、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、あるいはランタノイド系元素の酸化物であり、無機電子注入層自体の電気伝導性が高くない。そこで、膜厚を薄くして素子の駆動電圧を低下させる効果と、膜厚を厚くして電子輸送層のダメージを緩和する効果との間で、トレードオフの課題を有している。また、形成方法によっては依然として無機電子注入層に隣接する有機電子輸送層の酸化劣化を引起すおそれがある。

[0020] また、トップエミッション型あるいは透明有機E L素子に適用するにあたり、無機半導体層としてS i C、S i N、a - Cを用いる方法（特許文献2-7）においては、その形成には、通常、プラズマ化学気相成長法（P E C V D）、スパッタリング法が用いられる。したがって、発光層を含む有機E L層がこれら無機半導体層形成時のプラズマに曝されることにより劣化してしまうという課題を有している。

[0021] また、無機半導体層として酸化物半導体を用いる場合、酸化物半導体の伝導電子のエネルギー準位である価電子帯が、有機発光層、有機電子輸送層の伝導電子のエネルギー準位である最低非占有分子軌道（L U M O）準位より大幅に深いことが多い。そのため、有機層／無機半導体層界面での電子輸送におけるポテンシャル障壁が大きくなることにより、駆動電圧が上昇し、実際の適用が困難な場合が多い。加えて、酸化物半導体層形成時に供給される酸素によって、下地の有機層を酸化劣化させてしまうという課題も有している。

[0022] 本発明は、前述の課題に鑑みてなされたものであり、透明導電性酸化物からなる上部陰極をスパッタリング法などにより形成しても有機機能層の酸化劣化がなく、かつ低駆動電圧で高効率なトップエミッション型、あるいは透

明の有機EL素子を提供することである。

課題を解決するための手段

[0023] 即ち、本発明の有機EL素子は、支持基板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送材料、発光層材料、電子輸送材料は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物からなる有機EL素子であって、前記電子注入層が、光学バンドギャップが2.1 eV以上の、n型カルコゲナイド半導体からなることを特徴とする。

[0024] また、本発明の有機EL素子の製造方法は、支持基板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送材料、発光層材料、電子輸送材料は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物からなる有機EL素子の製造方法であって、前記n型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層を、プラズマ放電を用いない物理気相成長法で形成することを特徴とする。

発明の効果

[0025] 以上のような構成をとる有機EL素子においては、有機物からなる電子輸送層と上部陰極との間にn型カルコゲナイド半導体からなる無機半導体層が形成されているため、上部陰極として透明導電性酸化物をスパッタリング法によって形成しても、発光層または電子輸送層の酸化劣化が防止される。加えて、無機半導体層形成時にも発光層、電子輸送層への劣化を引起すことがない。また、n型カルコゲナイド半導体電子注入層が、透明酸化物陰極から電子を効率的に引抜くとともに、有機電子輸送層を発光層とn型カルコゲナイド半導体電子注入層の間に配置することにより、電子注入層から発光層への電子輸送障壁の緩和、発光層から電子注入層への正孔注入阻止性能を付与することができ、低電圧、高効率なトップエミッション型、あるいは透明有機EL素子を実現することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1] 図1は、本発明の有機EL素子の一例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0027] 以下に図面を参照しながら本発明を説明する。

[0028] 本発明の有機EL素子100の構成の一例を示す模式図を図1に示す。図示されている有機EL素子100は、基板101上に陽極102、正孔注入層103、正孔輸送層104、発光層105、電子輸送層106、電子注入層107、陰極108がこの順に積層してなる層構造を有している。この層構成は従来技術で示された構造と同様である。

[0029] ただし、本発明の有機EL素子は、トップエミッション型あるいは透明の有機EL素子であるため、陰極は光透過性であり、透明導電性酸化物材料からなる。トップエミッション型の場合、発光層から放射される光は、陰極を通して視認される。また、陽極も透明導電性酸化物材料からなる透明有機EL素子の場合、陽極も光透過性となり、発光層から放射される光は、陽極側と陰極側の双方から視認される。

[0030] 図1において、正孔注入層103は、陽極102から正孔輸送層104への正孔注入を促進するために設けられているが、必ずしも正孔注入層103を必要とするものではない。

[0031] また、従来、無機半導体を電子注入層107に用いていた場合と同様に、*n*型カルコゲナイド半導体を電子注入層107に用いた場合も、有機物からなる電子輸送層106を省略して発光層105上に直接に電子注入層107を形成する構成をとることも考えられる。ただし、この場合、駆動電圧の上昇、発光効率の低下などの不具合を生じることが多い。これは、有機EL素子において、発光層105に隣接する電子輸送層106には、1) 発光層105へ電子を効率的に注入する機能、2) 発光層105から陰極108方向へ移動する正孔を阻止する機能、の2つの機能が求められている。しかしながら、*n*型カルコゲナイド半導体を用いた電子注入層107ではこれらの機能を同時に満足することが難しいことに起因し、前述の不具合が発生する。

[0032] 従って、本発明においては、発光層 105 と、n 型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層 107 の間に、有機物からなる電子輸送層 106 を設けておく必要がある。電子輸送層 106 を形成する有機物は、下記に詳述するように多種の材料の中から発光層材料に合わせて選択することができ、発光効率の低下や駆動電圧の上昇といった課題を解決することが可能となる。

[0033] 以下、各層に関して詳細を説明する。

[0034] [基板]

本発明に用いることのできる基板 101 は、一般的にフラットパネルディスプレイで用いられているアルカリガラス基板、ノンアルカリガラス基板のほか、シリコン基板、ポリカーボネートなどのプラスチック基板、プラスチックフィルム、ステンレス箔上に絶縁膜を形成したものなどを用いることができる。トップエミッション型有機 EL 素子を作製する場合は、特に基板 101 は透明である必要はない。一方、透明有機 EL 素子を作製する場合は、光透過性の基板を用いる必要がある。

[0035] プラスチック材料などのガス透過性、特に水蒸気および/または酸素を透過する基板の場合には、その基板に別途ガスバリア機能を持った膜を形成することが必要となる。

[0036] [陽極]

本発明の有機 EL 素子に用いられる陽極 102 は、光透過性でも光反射性でもよい。陽極 102 を光透過性とする場合は、一般的に知られている、ITO（インジウムスズ酸化物）、IZO（インジウム亜鉛酸化物）、IWO（インジウムタングステン酸化物）、AZO（Al ドープ亜鉛酸化物）、GZO（Ga ドープ亜鉛酸化物）等の透明導電性酸化物材料を用いて形成することができる。また、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）（PEDOT：PSS）などの高導電性高分子材料を用いることもできる。

[0037] トップエミッション型有機 EL 素子を作製する場合、陽極 102 は光反射性の金属材料単体、あるいは前述の透明導電性酸化物材料と光反射性金属材料

料の積層構造体とすることもできる。また、基板 101 上に金属膜による光反射層を形成し、その上に絶縁層を介して透明導電性酸化物材料からなる陽極 102 を形成し、光反射層と陽極 102 を電氣的に接続させない構成としてもよい。

[0038] 光反射性の陽極 102 または光反射層を形成する金属材料は、高反射率の金属、アモルファス合金または微結晶性合金、あるいはそれらの積層体を用いることができる。高反射率の金属は、Al、Ag、Ta、Zn、Mo、W、Ni、Cr などを含む。高反射率のアモルファス合金は、NiP、NiB、CrP および CrB などを含む。高反射率の微結晶性合金は、NiAl、銀合金などを含む。

[0039] [有機 EL 層]

図 1 に示す構成では、有機 EL 層は、正孔注入層 103、正孔輸送層 104、発光層 105、電子輸送層 106、および電子注入層 107 が陽極 102 側からこの順に積層されて形成されている。前述のように、正孔注入層 103 は任意選択的に設けてもよい層である。

[0040] [正孔注入層]

本発明における有機 EL 素子の正孔注入層 103 に用いることのできる材料は、トリアリールアミン部分構造、カルバゾール部分構造、オキサジアゾール部分構造を有する材料など、一般に有機 EL 素子または有機 TFT 素子で用いられている正孔輸送材料を含む。

[0041] 具体的には、例えば、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(TPD)、N, N', N'-テトラキス(4-メトキシフェニル)-ベンジジン(MeO-TPD)、4, 4', 4"-トリス[1-ナフチル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(1-TNATA)、4, 4', 4"-トリス[2-ナフチル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(2-TNATA)、4, 4', 4"-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(m-MTDA)、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-

N-フェニルアミノ} ビフェニル (NPB)、2, 2', 7, 7'-テトラキス (N, N'-ジフェニルアミノ) -9, 9'-スピロビフルオレン (Spiro-TAD)、N, N'-ジ (ビフェニル-4-イル) -N, N'-ジフェニル (1, 1'-ビフェニル) -4, 4'-ジアミン (p-BPD)、トリ (o-ターフェニル-4-イル) アミン (o-TTA)、トリ (p-ターフェニル-4-イル) アミン (p-TTA)、1, 3, 5-トリス [4- (3-メチルフェニルフェニルアミノ) フェニル] ベンゼン (m-MTDAPB)、4, 4', 4''-トリス-9-カルバゾリルトリフェニルアミン (TCTA) 等を用いて、正孔注入層 103 を形成することができる。

[0042] また、これらの一般的な材料の他に、各有機電子材料メーカーが市販している正孔輸送性材料などを使用して正孔注入層 103 を形成することもできる。

[0043] また、正孔注入層 103 に電子受容性ドーパントを添加 (p タイプドーピング) してもよい。電子受容性ドーパントとしては、例えば、テトラシアノキノジメタン誘導体などの有機半導体、具体的には、2, 3, 5, 6-テトラフルオロ-7, 7, 8, 8-テトラシアノキノジメタン (F_4 -TCNQ) 等を用いることができる。また、酸化モリブデン (MoO_3)、酸化タングステン (WO_3)、酸化バナジウム (V_2O_5) などの無機半導体も電子受容性ドーパントとして用いることができる。

[0044] [正孔輸送層]

本発明における有機 EL 素子の正孔輸送層 104 に用いることのできる材料は、前記正孔注入層で例示したような、有機 EL 素子または有機 TFT の正孔輸送材料に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。一般的には、発光層 105 への正孔注入性を促進するという観点から、陽極 102 の仕事関数 W_a 、正孔注入層 103 のイオン化ポテンシャル I_p (HIL)、正孔輸送層 104 のイオン化ポテンシャル I_p (HTL)、および発光層 105 のイオン化ポテンシャル I_p (EML) が、

$$W_a \leq I_p (\text{HIL}) < I_p (\text{HTL}) < I_p (\text{EML})$$

の関係を満たすことが好ましい。

[0045] [発光層]

発光層 105 の材料は、所望する色調に応じて選択することが可能であり、例えば青色から青緑色の発光を得るためには、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系などの蛍光増白剤、スチリルベンゼン系化合物、芳香族ジメチリデイン系化合物などを使用することが可能である。具体的には、青色から青緑色に発光する材料として、9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(ADN)、4, 4'-ビス(2, 2'-ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)、2-メチル-9, 10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(MADN)、9, 10-ビス-(9, 9-ビス(n-プロピル)フルオレン-2-イル)アントラセン(ADF)、9-(2-ナフチル)-10-(9, 9-ビス(n-プロピル)-フルオレン-2-イル)アントラセン(ANF)などを用いることができる。

[0046] 発光層 105 には、蛍光色素をドーピングしてもよく、発光ドーパントとして用いる色素材料は、所望の色調に応じて選ぶことができる。具体的には、発光ドーパントとして、従来から知られている、ペリレン、ルブレンなどの縮合環誘導体、キナクリドン誘導体、フェノキサゾン660、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM)、4-(ジシアノメチレン)-6-メチル-2-[2-(ジユロリディン9-イル)エチル]-4H-ピラン(DCM2)、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(1, 1, 7, 7-テトラメチルジュロリジル-9-エニル)-4H-ピラン(DCJT)、4-(ジシアノメチレン)-2-t-ブチル-6-(1, 1, 7, 7-テトラメチルジュロリジル-9-エニル)-4H-ピラン(DCJT B)などのジシアノメチレン誘導体、ペリノン、クマリン誘導体、パイロメタン誘導体、シアニン色素などが使用できる。

[0047] また、本発明において、発光色の色調を整えるために、同一発光層材料内に複数の発光ドーパントを添加することもできる。

[0048] [電子輸送層]

本発明において、発光層 105 と n 型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層 107 との間に設ける電子輸送層 106 は、素子の性能を引き出す上で重要である。電子輸送層 106 は一般的に知られている有機電子輸送材料の中から選ばれる、電子輸送性に優れた材料で構成されていることが好ましい。また、電子輸送層 106 を構成する材料の電子親和力は、発光層 105 を構成する材料の電子親和力と電子注入層 107 を構成する n 型カルコゲナイド半導体の電子親和力の間の値を取ることが望ましい。更に、電子輸送層 106 のイオン化ポテンシャル I_p (ETL) は、発光層 105 のイオン化ポテンシャル I_p (EML) よりも大きいことが望ましい。

[0049] そのような電子輸送性材料として、具体的には、3-フェニル-4-(1'-ナフチル)-5-フェニル-1, 2, 4-トリアゾール (TAZ) のようなトリアゾール誘導体；1, 3-ビス[(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]フェニレン (OXD-7)、2-(4-ビフェニル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール (PBD)、1, 3, 5-トリス(4-t-ブチルフェニル-1, 3, 4-オキサジアゾリル)ベンゼン (TPOB) のようなオキサジアゾール誘導体；5, 5'-ビス(ジメシチルボリル)-2, 2'-ビチオフェン (BMB-2T)、5, 5'-ビス(ジメシチルボリル)-2, 2':5' 2'-ターチオフェン (BMB-3T) のようなチオフェン誘導体；アルミニウムトリス(8-キノリノラート) (Alq_3) のようなアルミニウム錯体；4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン (BPhen)、2, 9-ジメチル-4, 7-ジフェニル-1, 10-フェナントロリン (BCP) のようなフェナントロリン誘導体；2, 5-ジ(3-ビフェニル)-1, 1'-ジメチル-3, 4-ジフェニルシラシクロペンタジエン (PPSP)、1, 2-ビス(1-メチル-2, 3, 4, 5-テトラフェニルシラシクロペンタジエニル)エタン (2PSP)、2, 5-ビス-(2, 2-ビピリジン-6-イル)-1, 1'-ジメチル-3, 4-ジフェニルシラシクロペンタ

ジエン（P y P y S P y P y）のようなシロール誘導体などを含む。

[0050] [電子注入層]

本発明において、電子注入層 107 には n 型カルコゲナイド半導体からなる無機半導体層を用いる。電子注入層 107 の上に設けられる陰極 108 は後述のように、透明導電性酸化物材料からなり、スパッタリング法あるいはリアクティブプラズマ成膜法などで成膜される。電子注入層 107 として無機材料を用いると、この陰極 108 成膜時に電子注入層 107 に隣接する有機物からなる電子輸送層 106、または発光層 105 にスパッタリング法またはプラズマ成膜法によるダメージを与えないようにすることができ、また、有機層（電子輸送層 106 および発光層 105）の酸化劣化を防止することができる。

[0051] また、本発明においては、電子注入層 107 として無機半導体の中からカルコゲナイド半導体を選択している。先行技術文献で公知の材料のうち、Si、SiC、SiN、III-V 族半導体、アモルファスカーボン（a-C）などの無機材料を用いても陰極形成時の有機層の保護は可能であるが、これらの無機材料を成膜する際に、有機層の結晶化を防ぐため、基板加熱しない成膜方法を採用する必要がある。このような成膜法として、PECVD、スパッタリング法などを挙げることができる。しかしながら、これらの成膜法は下地となる有機層にプラズマ暴露による損傷を与えるおそれが高く、不適切である。

[0052] また、電子注入層 107 として蒸着法などで形成できる酸化物半導体を用いることも考えられるが、前述のように、酸化物半導体は、電子注入層 107 / 電子輸送層 106 界面での電子輸送ポテンシャル障壁の増大による駆動電圧の上昇、形成時の酸素による下地の有機層の酸化劣化という課題を有している。

[0053] これに対して、n 型カルコゲナイド半導体は、1) 電子注入層成膜時に下地の有機層酸化を起しにくい、2) プラズマプロセスを用いず、かつ基板を加熱せずに形成可能である、3) 伝導帯準位が酸化物よりも浅いものが多い

、有機電子輸送層のLUMOとマッチングし易いという特徴を有する。かつ、カルコゲナイド半導体を構成する金属元素、例えば、S、Se、およびTeの電気陰性度は、それぞれ、2.58、2.55、および2.1であり、Oの3.44と比べて低い。そのため、下地となる有機層の酸化劣化を格段に起しにくく、有機EL素子の特性劣化を防止することができる。n型カルコゲナイド半導体を用いることによって、隣接する有機物からなる電子輸送層106、または発光層105への電子注入性に優れた電子注入層107を得ることができる。以上の理由から、本発明においては、電子注入層107としてn型カルコゲナイド半導体を用いる。

[0054] また、太陽電池等に利用されている多くのn型カルコゲナイド半導体は、光学バンドギャップが狭く、可視光に吸収を持つものが多い。しかしながら、EL光を効率よく素子外に取出すために、発光層105の発光域での吸収が少ないことが重要である。光学バンドギャップが2.1 eV以上であるカルコゲナイド半導体を用いることで発光層105の発光域での吸収を抑えることが可能となる。この要件は、有機EL素子の発光色によってより好ましい条件が変わり、赤色発光素子の場合には2.1 eV以上であればよいが、緑色発光素子の場合には2.4 eV以上、青色発光素子の場合には2.6 eV以上であることがより好ましい。

[0055] n型カルコゲナイド半導体として、具体的には、硫化亜鉛(ZnS)、硫化マンガン(MnS)、これらの混合組成である硫化亜鉛マンガン(Mn_xZn_{1-x}S)あるいは、前記材料でSをSeまたはTeに置き換えた材料を用いることができる。この他に、硫化ランタン(LaS)、硫化セリウム(CeS)、硫化プラセオジウム(PrS)、硫化ネオジウム(NdS)のいずれか、あるいは、前記材料でSをSeまたはTeに置き換えた材料、またはこれらの混合組成からなる希土類n型カルコゲナイド半導体を好適に用いることができる。

[0056] また、n型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層107に、n型ドーパントとなる不純物を添加することが好ましい。n型ドーパントを添加する

ことによって、仕事関数の大きい透明導電性酸化物を陰極材料に用いても、良好な電子注入性を得ることができる。また、電子注入層 107 の電気伝導度が向上し、厚膜化しても素子の駆動電圧上昇を防ぐことができる。これにより、膜厚選択性の幅が広がり光学設計の自由度が広がる、あるいは陰極—陽極間短絡不良を防止できるといった効果を奏することができる。

[0057] n 型ドーパントとしては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素の中から選ばれた一つ以上のハロゲン元素、あるいはホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウムの中から選ばれた一つ以上の金属元素を用いることができる。

[0058] [陰極]

従来、陰極 108 としては仕事関数の小さい (4.0 eV 以下) 金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられていたが、本発明に用いられる陰極 108 は、光透過性が要求されるため、透明導電性酸化物材料を含む。

[0059] 透明導電性酸化物材料は、陽極材料で紹介した、ITO (インジウムスズ酸化物)、IZO (インジウム亜鉛酸化物)、IWO (インジウムタングステン酸化物)、AZO (Al ドープ亜鉛酸化物)、GZO (Ga ドープ亜鉛酸化物) 等の材料を含む。

[0060] 次に本発明の有機 EL 素子の製造方法につき説明する。

まず、基板 101 の上に陽極 102 を形成する。陽極 102 が透明導電性酸化物材料、高反射率の金属、アモルファス合金または微結晶性合金からなる場合は、蒸着法、スパッタリング法などの当該技術において知られている任意の方法で形成することができる。

[0061] また、陽極 102 が PEDOT: PSS 等の導電性高分子材料からなる場合は、スピンコート法、インクジェット法、印刷など当該技術で知られている任意の方法で形成することができる。

[0062] 正孔注入層 103、正孔輸送層 104、発光層 105、および電子輸送層 106 はいずれも有機物あるいは有機物金属錯体からなり、これらの層を劣化させないため、プラズマプロセスを用いずに薄膜が形成可能な物理気相成

長法により成膜する。

[0063] 電子注入層 107 の形成は、隣接する有機材料からなる電子輸送層 106 あるいは発光層 105 への劣化を防ぐために、プラズマ放電を用いない物理気相成長法で行う。このような形成方法としては、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法などの真空蒸着法、またはパルスレーザ堆積（レーザアブレーション）法が好適に用いられる。

[0064] 陰極 108 は、蒸着やスパッタリング等により作製することができる。好適には、液晶ディスプレイ製造技術および／またはプラズマディスプレイ製造技術で確立されている、スパッタリング法、イオンプレーティング法、またはリアクティブプラズマ成膜法などが用いられる。

実施例

[0065] 以下に、実施例により本発明を詳細に説明する。

[0066] （実施例 1）

ガラス基板（縦 50 mm × 横 50 mm × 厚さ 0.7 mm；コーニング製 1737 ガラス）上に、DC マグネトロンスパッタリング法（ターゲット： $\text{In}_2\text{O}_3 + 10 \text{ wt} \% \text{ZnO}$ 、放電ガス： $\text{Ar} + 0.5 \% \text{O}_2$ 、放電圧力：0.3 Pa、放電電力：1.45 W/cm²、基板搬送速度 162 mm/min）にて IZO を成膜し、フォトリソグラフィ法により 2 mm 幅のストライプ形状に加工することにより、膜厚 110 nm、幅 2 mm の陽極を形成した。

[0067] 次に陽極上に抵抗加熱蒸着法にて、2-TNATA を、蒸着レート 1 Å/s で成膜し、2-TNATA 膜からなる正孔注入層を 20 nm 成膜した。その上に、正孔輸送層として、NPB を抵抗加熱蒸着法にて蒸着レート 1 Å/s で 40 nm 成膜した。次いで ADN を発光層ホストとし、4,4'-ビス（2-（4-（N,N-ジフェニルアミノ）フェニル）ビニル）ビフェニル（DPAVB i）を発光ドーパントとした発光層を、ADN の蒸着レート 1 Å/s、DPAVB i の蒸着レートを 0.03 Å/s として発光層を 30 nm 成膜した。発光層上に、電子輸送層として Alq₃ を蒸着レート 1 Å/s で 10 nm 成膜した。

- [0068] 引き続き、窒化ホウ素（BN）セラミックス製るつぼに、粒状ZnS材料を5g入れて、成膜チャンバー内（到達真空度 10^{-5} Pa）にて加熱し、蒸着レート 1Å/s にて25nmのZnSからなる電子注入層を蒸着した。
- [0069] 電子注入層上に幅1mmのスリットの空いたメタルマスクを通して、DCマグネトロンスパッタリング法（ターゲット： $\text{In}_2\text{O}_3 + 10\text{wt}\%\text{ZnO}$ 、放電ガス： $\text{Ar} + 0.5\%\text{O}_2$ 、放電圧力：0.3Pa、放電電力： 1.45W/cm^2 、基板搬送速度 162mm/min ）にてIZOを成膜して、膜厚110nm、幅2mmの陰極を形成した。メタルマスクを用いてIZOをスパッタリング法により成膜する際に、メタルマスクと基板が密着していないことから、IZO成膜粒子がマスクと基板の間に回りこむため、IZOの成膜パターンの輪郭があいまいになる。このため、2mm幅の電極を形成するのに、1mm幅スリットのメタルマスクを用いた。正孔注入層以降の各工程は、真空を破らずに一貫して行った。
- [0070] 続いて、試料を窒素置換ドライボックスに移し、その中にて、封止用ガラス板（縦 $41\text{mm} \times$ 横 $41\text{mm} \times$ 厚さ 0.7mm 、日本電気硝子製OA-10）の4辺付近にエポキシ系接着剤を塗布し、有機EL層を覆うように試料に貼り付け、実施例1の透明青色有機EL素子を得た。陰極形成後のドライボックスへ搬送時、試料は大気に触れることのないよう工程を行った。得られた有機EL素子の特性として、電流密度が 10mA/cm^2 の時の電圧、電流効率を表1に示す。
- [0071] （実施例2）
- 長さ $50\text{mm} \times$ 幅 $50\text{mm} \times$ 厚さ 0.7mm の支持基板（コーニング製1737ガラス）を、アルカリ洗浄液にて洗浄し、純水にて十分にリンスした。続いて、洗浄済みの支持基板上に、DCマグネトロンスパッタリング法にて銀合金（フルヤ金属製、APC-TR）を付着させ、膜厚100nmの銀合金膜を成膜した。スピコート法を用いて、銀合金膜上に、膜厚 $1.3\mu\text{m}$ のフォトレジスト（東京応化工業製、TFR-1250）膜を成膜し、 80°C のクリーンオープンにて15分間にわたって乾燥した。フォトレジスト

膜に対して、2 mm幅のストライプパターンのフォトマスクを通して高圧水銀ランプによる紫外光を照射し、現像液（東京応化工業製 NMD-3）にて現像することにより、銀合金薄膜上に2 mm幅のフォトレジストパターンを作製した。

[0072] 次いで、銀用エッチング液（関東化学製 SEA 2）を用いてエッチングを行った。続いて、剥離液（東京応化製 剥離液 104）を用いてフォトレジストパターンを剥離し、線幅2 mmのストライプ形状部分からなる金属層を作製した。金属層上に、実施例1と同様にDCマグネトロンスパッタリング法を用い、インジウム亜鉛酸化物（IZO）からなる膜厚100 nmの透明導電膜を成膜し、銀合金薄膜と同様にフォトリソグラフィ法にてパターンニングを行い、導電層のパターンに合致したストライプ形状部分からなる透明導電層を形成し、反射性陽極を得た。IZOのエッチングには、シュウ酸を用いた。

[0073] 続いて、反射性陽極を形成した基板を、低圧水銀ランプを備えたUV/O₃洗浄装置にて室温で10分間処理した後、実施例1と同様にして有機EL層及び陰極を形成して、ZnS電子注入層を備えたトップエミッション型青色有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の特性を実施例1と同様にして測定した。その結果を表1に示す。

[0074] （実施例3）

電子注入層材料としてMnSを用いた以外は実施例2と同様にして、トップエミッション型青色有機EL素子を作製した。得られた有機EL素子の特性を、表1に示す。

[0075] （比較例1）

Alq₃電子輸送層の膜厚を35 nmにし、n型カルコゲナイド半導体電子注入層の代わりに、ボトムエミッション素子で従来用いられているLiFによって電子注入層（1 nm）を形成したこと以外は実施例2と同様にして、青色有機EL素子を作製した。LiF層は粉末材料をMo製の蒸着用舟に入れて、抵抗加熱蒸着にて蒸着レート0.2 Å/sで形成した。得られた有機EL

素子の特性を表 1 に示す。

[0076] (比較例 2)

電子注入層材料として、酸化インジウムを用いた以外は実施例 2 と同様にして、トップエミッション型青色有機 EL 素子を作製した。電子注入層の形成は、Mo 製の蒸着用容器に粒状酸化インジウム (In_2O_3) 材料を入れて、抵抗加熱蒸着法にて蒸着レート $1 \text{ \AA/s}$ で 25 nm の酸化インジウムからなる電子注入層を形成した。得られた有機 EL 素子の特性を表 1 に示す。

[0077] (比較例 3)

発光層成膜後に、 Alq_3 からなる電子輸送層を形成せず、発光層上に直接 ZnS 電子注入輸送層を 35 nm 形成したこと以外は実施例 2 と同様にしてトップエミッション型青色有機 EL 素子を作製した。得られた有機 EL 素子の特性を表 1 に示す。

[0078] [表 1]

1. 電流密度 10 mA/cm^2 の時の EL 素子の特性

	電子輸送層	電子注入層	電圧 (V)	電流効率 (cd/A)	
比較例 1	Alq_3	LiF	—	—	トップ
比較例 2	Alq_3	InO_x	9.6	3.5	トップ
比較例 3	—	ZnS_x	5.8	6.8	トップ
実施例 1	Alq_3	ZnS_x	6.2	5.5	透明
実施例 2	Alq_3	ZnS_x	6.2	11.5	トップ
実施例 3	Alq_3	MnS_x	5.6	12.1	トップ

[0079] 電子注入層に 1 nm の LiF を用いた比較例 1 は、 10 V まで電圧をかけても殆ど電流が流れず、発光しなかった。これは、スパッタリング法による IZO 陰極の形成時に Alq_3 からなる電子輸送層の酸化劣化を防げず、電子輸送機能を著しく損なった結果である。

[0080] 酸化インジウムを電子注入層に用いた比較例 2 では、電流を 10 mA/cm^2 流すのに、約 10 V 程度電圧をかける必要があったのに対し、実施例 1 から 3 の有機 EL 素子は、約 6 V と駆動電圧が下がっている。更に電流効率も、比較例 2 と比べて実施例 2、3 では大幅に向上している。実施例 1 は透明有機 EL 素子であり、反射電極が存在しないため、膜面側から測定した輝度

に基づいた電流効率は少なくなっているが、それでも比較例 2 よりも高い効率となっている。

[0081] 電子注入層として ZnS を用いて、電子輸送層を設けなかった比較例 3 では、実施例 2 に比べて駆動電圧が下がっているが、効率も大きく下がっている。このことは、本発明に於けるように、電子輸送層を用いることで、駆動電圧と発光効率のバランスの取れた素子の実現できることを示唆している。

[0082] 以上により、n 型カルコゲナイド半導体からなる電子注入層を用いた本発明の有機 EL 素子の構成とすることにより、透明導電性酸化物材料からなる上部陰極をスパッタリング法により形成した場合でも、低駆動電圧にて高発光効率をもたらす有機 EL 素子を提供できることがわかる。

符号の説明

- [0083] 100 有機 EL 素子
101 基板
102 陽極
103 正孔注入層
104 正孔輸送層
105 発光層
106 電子輸送層
107 電子注入層
108 陰極

請求の範囲

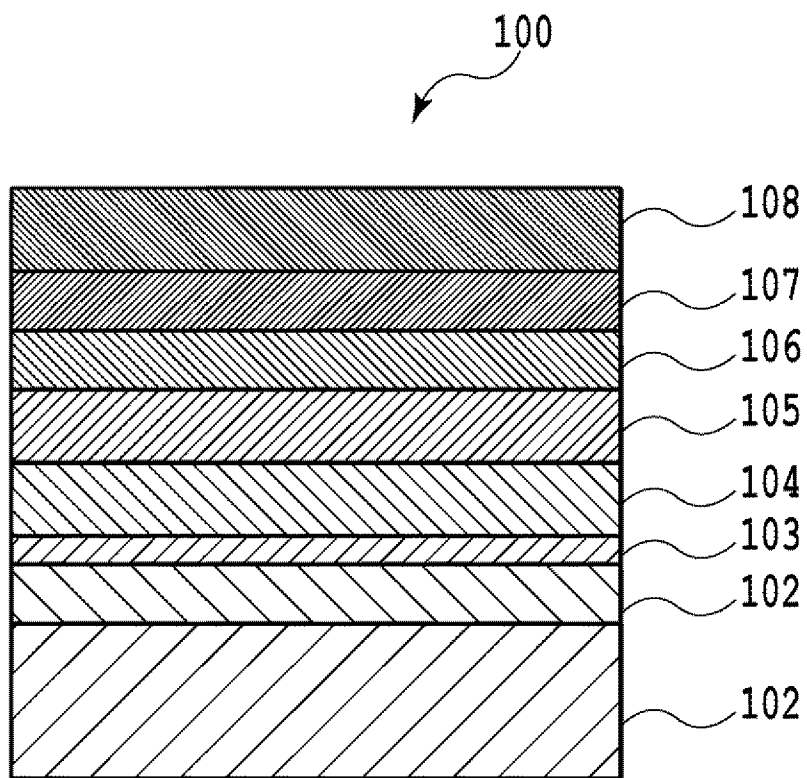
- [請求項1] 支持基板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送層、発光層、電子輸送層は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物からなる有機EL素子であって、前記電子注入層が、光学バンドギャップが 2.1 eV 以上の、 n 型カルコゲナイド半導体からなることを特徴とする有機EL素子。
- [請求項2] 前記電子注入層に、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素の中から選ばれた一種以上のハロゲン元素が添加されていることを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子。
- [請求項3] 前記電子注入層に、ホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウムの中から選ばれた一つ以上の金属元素が添加されていることを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子。
- [請求項4] 前記 n 型カルコゲナイド半導体が、硫化亜鉛(ZnS)、硫化マンガ(MnS)、硫化亜鉛マンガ($\text{Mn}_x\text{Zn}_{1-x}\text{S}$)のいずれかであることを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子。
- [請求項5] 前記 n 型カルコゲナイド半導体が、硫化ランタン(LaS)、硫化セリウム(CeS)、硫化プラセオジウム(PrS)、硫化ネオジウム(NdS)のいずれか、またはこれらの混合組成からなる希土類 n 型カルコゲナイド半導体であることを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子。
- [請求項6] 支持基板上に陽極と、有機EL層と、陰極がこの順に設けられ、前記有機EL層は陽極側から、少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層がこの順に設けられてなり、前記正孔輸送層、発光層、電子輸送層は有機材料からなり、かつ陰極が透明導電性酸化物からなる有機EL素子の製造方法であって、前記電子注入層を、プラズマ放電を用いない物理気相成長法で形成することを特徴とする有機EL

Ｌ素子の製造方法。

[請求項7] 前記物理気層成長法が、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、およびパルスレーザ堆積（レーザアブレーション）法からなる群から選ばれるいずれか１種であることを特徴とする請求項６に記載の有機ＥＬ素子の製造方法。

[請求項8] 前記陰極の形成方法が、スパッタリング法によることを特徴とする請求項６に記載の有機ＥＬ素子の製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/057484

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

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

H01L51/50, H05B33/10

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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.
X	JP 2000-215984 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 04 August, 2000 (04.08.00), Claims 1 to 3; Par. Nos. [0035], [0050] (example 5); Par. No. [0059], table 1, example 5 (Family: none)	1, 4
X	JP 2005-293980 A (Junji KIDO, Dainippon Printing Co., Ltd.), 20 October, 2005 (20.10.05), Par. Nos. [0020], [0057] to [0060] & US 2005/0218412 A1 & GB 2412788 A & GB 506426 D0	1, 6-8

☒ 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 July, 2009 (24.07.09)

Date of mailing of the international search report
04 August, 2009 (04.08.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/057484

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-281454 A (Toppoly Optoelectronics Corp.), 25 October, 2007 (25.10.07), Claims 1, 3, 4, 7 & US 2007/0236140 A1 & CN 101051674 A	1, 5
X	JP 3-8375 A (Ricoh Co., Ltd.), 16 January, 1991 (16.01.91), Claims; page 1, lower left column, 'Industrial Field of Invention'; page 2, lower left column, 'Means for Solving The Problem'; page 2, lower right column, 'examples' to page 3, upper left column, line 8 & US 5006915 A & US 5126802 A	1, 4
A	JP 2008-277799 A (Fujikura Ltd.), 13 November, 2008 (13.11.08), Claims; Par. Nos. [0031] to [0033] & US 2008/0246394 A1 & EP 1978576 A2 & KR 10-2008-0090349 A & CN 101281955 A	1-8
A	JP 2008-517454 A (OLED-T Ltd.), 22 May, 2008 (22.05.08), Claims 1, 4; Par. No. [0086]; table 1 & US 2009/0009062 A1 & GB 422913 D & EP 1800361 A & WO 2006/040593 A1	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））
Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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. H01L51/50, H05B33/10

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 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 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
X	J P 2 0 0 0 - 2 1 5 9 8 4 A(松下電工株式会社) 2 0 0 0 . 0 8 . 0 4, 【請求項1】～【請求項3】, 【0 0 3 5】, 【0 0 5 0】(実施例5), 【0 0 5 9】【表1】実施例5, (ファミリーなし)	1・4
X	J P 2 0 0 5 - 2 9 3 9 8 0 A(城戸淳二, 大日本印刷株式会社) 2 0 0 5 . 1 0 . 2 0, 【0 0 2 0】, 【0 0 5 7】～【0 0 6 0】 & US 2005/0218412 A1 & GB 2412788 A & GB 506426 D0	1・6-8

☒ 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

2 4 . 0 7 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

0 4 . 0 8 . 2 0 0 9

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）

磯貝 香苗

2 0

9 6 0 7

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 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
X	J P 2007-281454 A(統寶光電股▲ふん▼有限公司) 2007.10.25, 【請求項1】, 【請求項3】, 【請求項4】, 【請求項7】, & US 2007/0236140 A1 & CN 101051674 A	1・5
X	J P 3-8375 A(株式会社リコー)1991.01.16, 特許請求の範囲、第1頁左下欄「産業上の利用分野」, 第2頁左下欄「課題を解決するための手段」, 第2頁右下欄「実施例」～第3頁左上欄第8行 & US 5006915 A & US 5126802 A	1・4
A	J P 2008-277799 A(株式会社フジクラ) 2008.11.13, 【特許請求の範囲】, 【0031】～【0033】 & US 2008/0246394 A1 & EP 1978576 A2 & KR 10-2008-0090349 A & CN 101281955 A	1-8
A	J P 2008-517454 A (オーエルイーディーティー リミテッド)2008.05.22, 【請求項1】, 【請求項4】, 【0086】【表1】 & US 2009/0009062 A1 & GB 422913 D & EP 1800361 A & WO 2006/040593 A1	1-8