

發明專利說明書

200305000

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：91138039

※申請日期：91-12-31

※IPC 分類：H05B33/10

壹、發明名稱：(中文/英文)

使用有機材料以製造有機發光裝置

USING ORGANIC MATERIALS IN MAKING AN ORGANIC LIGHT-
EMITTING DEVICE

貳、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

美商柯達公司

EASTMAN KODAK COMPANY

代表人：(中文/英文)

J. 傑佛瑞 豪利

J. JEFFREY HAWLEY

住居所或營業所地址：(中文/英文)

美國紐約州羅徹斯特市史谷特街 343 號

343 STATE STREET, ROCHESTER, NEW YORK 14650, U.S.A.

國籍：(中文/英文)

美國 U.S.A.

參、發明人：(共 4 人)

姓 名：(中文/英文)

1.西梅 古瑪 哥許

SYAMAL KUMAR GHOSH

2.唐 波頓 卡爾頓

DONN BURTON CARLTON

3.圖卡蘭 基桑 海華

TUKARAM KISAN HATWAR

4.史帝芬 亞蘭 凡 史賴克

STEVEN ARLAND VAN SLYKE

住居所地址：(中文/英文)

1.美國紐約州羅徹斯特市史谷特街 343 號

343 STATE STREET, ROCHESTER, NEW YORK 14650, U.S.A.

2.美國紐約州羅徹斯特市史谷特街 343 號

343 STATE STREET, ROCHESTER, NEW YORK 14650, U.S.A.

3.美國紐約州羅徹斯特市史谷特街 343 號

343 STATE STREET, ROCHESTER, NEW YORK 14650, U.S.A.

4.美國紐約州羅徹斯特市史谷特街 343 號

343 STATE STREET, ROCHESTER, NEW YORK 14650, U.S.A.

國 籍：(中文/英文)

1.美國 U.S.A.

2.美國 U.S.A.

3.美國 U.S.A.

4.美國 U.S.A.

肆、聲明事項：

☐ 本案係符合專利法第二十條第一項 ☐ 第一款但書或 ☐ 第二款但書規定之期間，其日期為： 年 月 日。

☒ 本案申請前已向下列國家（地區）申請專利：

1. 美國；2002 年 02 月 11 日；10/073,690

2.

3.

4.

5.

☒ 主張國際優先權(專利法第二十四條)：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 美國；2002 年 02 月 11 日；10/073,690

2.

3.

4.

5.

☐ 主張國內優先權(專利法第二十五條之一)：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

☐ 主張專利法第二十六條微生物：

☐ 國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

玖、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係一般性關於一種製造有機發光裝置(OLED)之方法，更特別關於自有機材料粉末形成固態丸粒之改良方法，及在物理蒸氣沈積中用此等丸粒在將形成OLED部分的基材上製造有機層之方法。

【先前技術】

有機發光裝置亦稱為有機電致發光(EL)裝置，該裝置可藉由將二或多個有機層夾在第一和第二電極間製造。

在習知結構的被動式矩陣OLED中，複數個側向隔開的光透射性陽極(例如，氧化錫銦(ITO)陽極)作為第一電極形成於光透射性基材上，例如，玻璃基材。然後自各源由各有機材料之物理蒸氣沈積在減壓保持的室內依次形成二或多個有機層，一般小於 10^{-3} 托(Torr)。複數個側向隔開的陰極作為第二電極沈積於有機層的最上一層上。陰極相對於陽極以一定角度定向，一般為直角。

為操作此等習知被動式矩陣有機發光裝置，一般在適宜列(陽極)和依次各行(陰極)間施加一電壓(亦稱為驅動電壓)。當相對於陽極對陰極施加負偏壓時，光自陰極和陽極之重疊區域界定的圖元發射，而發射光通過陽極和基材達到觀察者。

在主動式矩陣有機發光裝置(OLED)中，陽極陣列作為第一電極由連接到各自光透射部分的薄膜電晶體(TFTs)提供。然後由蒸氣沈積以實質上相當於構造前述被動式矩陣裝置

之方式連續形成二或多個有機層。公共陰極作為第二電極沈積於有機層的最上一層上。主動式矩陣有機發光裝置的構造和功能描述於普通轉讓美國專利申請案第5,550,066號，其揭示係以引用之方式併入本文中。

構造有機發光裝置所用的有機材料、蒸氣沈積有機層的厚度和層配置描述於(例如)普通轉讓美國專利申請案第4,356,429號、第4,539,507號、第4,720,432號及第4,769,292號，其揭示係以引用之方式併入本文中。

製造 OLEDs 所用有機材料可具有具相對弱分子結合力的相對複雜分子基材，如有機空穴輸送材料、用有機摻雜劑預摻雜的有機發光材料及有機電子輸送材料，因此，必須注意避免在物理蒸氣沈積期間有機材料分解。

前述有機材料係合成到相對高純度並以粉末、薄片或顆粒形式提供。迄今為止已將此等粉末或薄片用於放入物理蒸氣沈積源，在其中應用加熱，以由有機材料昇華或蒸發形成蒸氣，而蒸氣凝結在基材上，以在其上提供有機層。

在物理蒸氣沈積中使用有機粉末、薄片或顆粒已觀察到數個問題：

(i) 粉末、薄片或顆粒難以處理，因為它們由一被稱為摩擦起電的過程獲得靜電荷；

(ii) 與約 1 克/釐米³的理想化固態有機材料物理密度相比，有機材料粉末、薄片或顆粒一般具有在約 0.05 至約 0.2 克/釐米³範圍之相對低物理密度(以每單位體積的重量表示)；

(iii) 有機材料粉末、薄片或顆粒具有不理想低熱導率，特

別在放入一布置於抽到 10^{-6} 托減低壓力室之物理蒸氣沈積源時。因此，粉末顆粒、薄片或顆粒只由自經加熱源的輻射加熱以及直接與該源經加熱表面接觸的顆粒或薄片之導熱加熱。不與該源經加熱表面接觸的粉末顆粒、薄片或顆粒因相對低顆粒-顆粒接觸面積不能由導熱有效加熱；及

(iv)粉末、薄片或顆粒可具有相對高此等顆粒表面積對體積之比以及在此等環境條件下顆粒間殘存空氣和/或濕氣之對應高傾向。因此，一旦沈積室已抽至一減低壓力，裝入布置於室的物理蒸氣沈積源之有機粉末、薄片或顆粒之填料必須由預加熱該源徹底脫氣。如果脫氣省略或不完全，在基材上物理蒸氣沈積有機層期間，顆粒即可與蒸氣流一起自該源噴出。如果此等層包括微粒或顆粒，則具有多個有機層的OLED可能或變得功能失效。

有機粉末、薄片或顆粒的前述各方面或其組合可能導致在物理蒸氣沈積源中此等有機材料的不均勻加熱，並伴隨有機材料的空間不均勻昇華或蒸發，且可因此產生基材上形成的潛在不均勻蒸氣沈積有機層。

【發明內容】

本發明一個目的為提供一種處理有機材料之方法，該有機材料適用於在形成部分OLED的基材上製造有機層。

本發明另一目的為提供一種將有機粉末固結成固態丸粒之方法。

本發明進一步目的為提供自有機材料之固態丸粒且在將形成部分OLED之基材上製造有機層之方法。

本發明另一目的為提供一種將可昇華有機材料粉末和熱導不可昇華陶瓷粉末之混合物固結成固態丸粒之方法。

一方面，本發明提供一種自有機材料在將要形成部分 OLED 之基材上製造有機層之方法，其包括以下步驟：

- (a) 以粉末形式提供一種可昇華有機材料；
- (b) 以粉末形式提供一種熱導不可昇華陶瓷材料；
- (c) 形成一種可昇華有機材料粉末和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之混合物；
- (d) 將此混合物放入一模中，並用兩個衝頭(一個下衝頭和一個上衝頭)對混合物施加足夠壓力，以將粉末之混合物固結成固態丸粒；
- (e) 在由相對衝頭施加壓力期間或之前對模加熱，以幫助粉末之混合物固結成固態丸粒；及
- (f) 自模移除丸粒。

另一方面，本發明提供一種用所形成固態丸粒製造用於 OLED 裝置的有機材料層之方法，其包括以下步驟：

- (a) 將該固態丸粒放入布置於一室的物理蒸氣沈積源；
- (b) 在該室並以相對於源成相隔關係放置基材；
- (c) 將該室抽空到減低壓力；及
- (d) 對該源加熱，以使丸粒中的至少部分有機材料昇華，而熱導性陶瓷材料保持不昇華，以提供有機材料蒸氣，有機材料蒸氣在基材上形成有機層。

本發明一個特徵為使有機粉末固結成固態丸粒之方法能夠用相對簡單工具且在自物理蒸氣沈積裝置中使用此丸粒

位置的遠端位置完成。

本發明另一特徵為使有機粉末固結成固態丸粒之方法實質上有利於在不同位置之中及之間處理、轉移或運輸有機材料。

本發明另一特徵為，由本發明方法製備的複數個有機材料丸粒可在相對於以粉末態及可比較重量處理、轉移或運輸有機材料所用之容器具有顯著減小體積的容器中處理、轉移或運輸。

本發明另一特徵為，OLED材料固態丸粒可由本發明之方法製造，其中將至少一種OLED基質材料粉末和至少一種有機摻雜劑材料粉末混合或摻合，以在混合物固結成固態丸粒之前提供一種混合物。

本發明另一特徵為，將粉末固結成固態丸粒之方法及由在物理蒸氣沈積源中蒸發部分固態丸粒於基材上製造有機層之方法實質上消除粉末顆粒自該源噴射，並因此提供實質無顆粒包含的有機層。

本發明另一特徵為，將粉末固結成固態丸粒之方法適用於提供具有一形狀之丸粒，其形狀經選擇，以順應由其蒸發部分丸粒以在基材上形成有機層的物理蒸氣沈積源之形狀。

本發明另一特徵為，熱導陶瓷粉末在另外非熱導固態有機丸粒中均勻分散由遍及固態丸粒均勻分配熱量幫助固結製程及熱蒸發。

本發明另一重要特徵為，熱導陶瓷粉末不干擾或污染熱

蒸發有機分子。

【實施方式】

在本文中，“粉末”及“以粉末形式”用於表示大量可為薄片、顆粒或不同顆粒形狀之混合物之單獨顆粒。

OLED之發射層(EML)包括由於層中電子-空穴重組產生光線(稱為電致發光)之有機或有機金屬材料。在後文中，“有機”應被認為包括純有機和有機金屬材料二者。在最簡單先前技藝結構中，如圖1所示，發射層14夾在陽極12和陰極15之間。發射層14可為具有高發光效率之單純材料。用於此意圖的熟悉材料為叁(8-喹啉酚根-N1,O8)合鋁(Alq)，該材料可產生極佳綠色電致發光。發射層14亦可包括較少量其他材料，習稱為摻雜劑，其作用為改變發射光的電致發光(EL)效率或顏色。基材11對OLED 10提供機械支撐體，並提供將OLED連接到電流源的電引線。層12至15與基材11一起包括OLED 10。陰極15或陽極12和基材11對電致發光透明，並使光線被觀察到。“透明”指傳輸不小於80%電致發光光線之能力。在該基材的一種變體中，陰極而非陽極安置在基材上。在那種變體中，陽極或陰極和載體二者對電致發光光線透明。在將陰極和陽極連接到一個電流源(未顯示)時，空穴自陽極注入，而電子自陰極注入，且它們在發射層中重組產生電致發光。

在一更詳細OLED 20中，如圖2所示，發射層(EML) 25位於空穴輸送層24和電子輸送層16之間。此等層分別主要由有機材料組成。兩個輸送層分別將空穴自陽極22及將電子自

陰極27傳送到發射層25。選擇性空穴注入層23促進空穴自陽極22注入空穴輸送層24。發射層25作為電子-空穴重組和發射所產生電致發光的主要部位。在此方面，單獨有機層的作用明顯不同，並可因此獨立最佳化。因此，發射層25可對理想EL顏色及高發光效率為最佳化。發射層25亦可包含較小量摻雜劑，摻雜劑作用為改變EL效率或發射光的顏色。同樣，空穴-和電子-輸送層24和26可各自為其電荷輸送特性最佳化。基材21對OLED 20提供機械支撐體，並提供將OLED 20連接到電流源的電引線。層22至27與基材21一起包括OLED 20。陰極或陽極和基材二者對電致發光透明。在該基材的一種變體中，陰極而非陽極安置在基材上。在那種變體中，陽極或陰極和載體二者對電致發光光線透明。在該基材的另一變體中，可使發射層和電子輸送層組合，以形成起兩種作用的單層。然而，在該基材的另一變體中，空穴輸送層可包括至少兩個不同組合物之亞層，兩亞層經選擇，以單獨使在陽極的電荷注入界面和空穴輸送層餘者的電荷運載性能最佳化。

在陽極22和陰極27之間施加電壓差時，陰極27將電子注入電子輸送層26，且它們跨那層遷移到發射層25。與此同時，空穴自陽極22注入空穴輸送層24，且它們跨那層遷移到發射層25。空穴和電子在發射層25中重組，通常在空穴輸送層24和發射層25間之結附近。由重組過程釋放的部分能量作為電致發光發射，且通過透明陽極或陰極及/或基材逸出。

轉向圖3，圖3顯示一具有部分剝回元件以顯露各層的被動式矩陣OLED 30之示意透視圖。光透射性基材31在其上形成複數個側向隔開的第一陽極32。有機空穴輸送(HTL) 33、有機發射層(EML) 34及有機電子輸送層(ETL) 35按次序由物理蒸氣沈積製程形成，如後文所詳細描述。複數個側向陰極36在有機電子輸送層35上且以實質上垂直於第一陽極32之方向形成。包封或蓋38密封對環境敏感的部分基材，由此提供一完成的OLED 30。

轉向圖4，圖4顯示一適用於製造相對大量有機發光裝置之系統100之示意透視圖，製造發光裝置使用在自緩衝輪轂102和轉移輪轂104延伸的複數個台間輸送或轉移基材之自動化或機械化構件(未顯示)。真空泵106由泵抽口107在輪轂102和104內及自此等輪轂延伸的各台內提供減低壓力。壓力錶108顯示系統100內的減低壓力。壓力可在 10^{-3} 至 10^{-6} 托(Torr)之範圍內。

各台包括用於負載基材的負載台110、用於形成有機空穴輸送層(HTL)的蒸氣沈積台130、用於形成有機發光層(LEL)的蒸氣沈積台140、用於形成有機電子輸送層(ETL)的蒸氣沈積台150、用於形成複數個第二電極(陰極)的蒸氣沈積台160、用於自緩衝輪轂102將基材轉移到轉移輪轂104的卸載台103，該台依次提供貯存台170及由連接器口105連接到輪轂104的包封台180。此等台分別具有伸入輪轂102和104的開口，且各台具有真空密封入口(未顯示)，以提供材料清洗、補充及替換或修理部件的台之入口。各台包括界定一

個室的外殼。

圖 5 為沿圖 4 切割線 5-5 切取的負載台 110 之示意截面圖。負載台 110 具有界定一室 110C 之外殼 110H。在室 110C 內放置載體 111，載體設計用於負載具有預形成第一電極 32 的複數個基材 31(見圖 3)。可提供替代性載體 111 支撐複數個主動式矩陣基材。載體 111 亦可提供於卸載台 103 和貯存台 170 中。

轉向圖 6A-6F，圖 6A-6F 示意顯示一序列製程步驟，該製程步驟用於在單軸衝床 500 布置的模腔 526 中由固結有機空穴材料或發射材料之粉末 13a 形成有機空穴輸送材料(NPB)和發射材料(Alq)所用有機基質之固態丸粒 13p。單軸衝床 500 包括固定式平臺 512 及固定於柱 516 的可移動平臺 514。可移動平臺 514 可由液壓構件或液壓和空氣或機械構件(未顯示)驅動並支撐模 520 及下衝頭 522。

在圖 6A 中，有機空穴輸送材料或有機發射材料之粉末、薄片微粒或顆粒 13a 在下衝頭 522 上於模腔 526 中填充達到平面 13b。加熱線圈 530 可將模 520 自約 20°C 環境溫度加熱到約 300°C 之溫度，且至少一個冷卻盤管 540 能夠使經加熱模相對快速冷卻，例如，自 300°C 之溫度冷卻到 50°C 之溫度或環境溫度。亦可將模 520 感應加熱。

在圖 6B 中，上衝頭 524 位於模腔 526 中，以接觸有機粉末 13a 的上表面(填充平面 13b)。

模 520 的內表面 521 為一拋光表面，且至少下衝頭 522 的表面 523 和上衝頭 524 的表面 525 為經拋光表面。在此揭示部分中，亦可將模和上下衝頭一起稱為模具。

在圖 6C 中顯示可移動平臺 514 以朝向固定平臺 512 的方向向上驅動，而壓力分別由上下衝頭 524, 522 施加。只以一個方向施加壓力的單軸衝床 500 作用於上衝頭 524 和下衝頭 522，使此上下衝頭(分別為衝頭 524 和 522)一起施加壓力，以使模 526 中的有機材料粉末 13a 固結成固態丸粒 13p。為獲得高密度固態丸粒，由單軸衝床 500 施加的壓縮壓力在 2,000 和 15,000 磅/平方英寸 (psi) 之間變化，更佳在 4,000 和 10,000 磅/平方英寸之間。衝頭預置於模內，以形成預定包含適合體積 OLED 粉末的空腔，從而在固結後取得所需固體尺寸。

在圖 6D 中，可移動平臺 514 已降低，且上衝頭 524 已自模 520 移出。可在由相對衝頭 524, 522 施加壓力期間或之前將模 520 加熱。這是可行的，只要經加熱顆粒混合物有助於粉末之混合物固結成固態丸粒。如果在形成固態丸粒 13p 之前或期間加熱模 520，則在由至少一個冷卻盤管 540 冷卻到 20°C 至 80°C 之溫度時將上衝頭 524 自模移出。

圖 6E 中顯示模 520 自單軸衝床 500 移開，且下衝頭 522 自模 520 移出。只為說明性目的，所繪有機固態丸粒 13p 附著到模 520 的內表面 521。

圖 6F 中，丸粒柱塞 550 用於自模 520 移除固態丸粒 13p。固態丸粒 13p 被捕獲在順應性容器 560 中，以使固態丸粒 13p 損傷最小化。

在單軸衝床 500 中施加壓力之前或期間加熱模 520 可在縮短壓力施加間隔期間或在較低壓力使固態丸粒 13p 增加緻密作用。模溫度較佳範圍自 50°C 至 300°C。模溫度一般保持在

低於有機材料形成固態丸粒 13p 的玻璃轉移溫度 T_g 。在自模 520 移出固態丸粒 13p 之前且較佳在自模 520 移去上衝頭 524 之前，將模 520 冷卻到 80°C 至 20°C 範圍之較佳溫度。

“粉末”包括材料的細粒，有機空穴輸送材料 13a 的薄片、微粒或顆粒可包括一種混合物，該混合物包括一或多種空穴輸送基質材料及一或多種有機摻雜劑材料。可將自此混合物的固態丸粒 13p 放入物理蒸氣沈積源，用以在基材上製造經摻雜有機空穴輸送層 13。

有效在基材上提供蒸氣沈積摻雜有機發光層之摻雜劑已揭示於普通轉讓美國專利申請案第 4,769,292 號及第 5,294,870 號。

可用可移動罩(未顯示)包圍下衝頭 522、模 520 和至少部分上衝頭 524。可將罩及由其包圍的元件抽到減低壓力。或者，可將惰性氣體引入該罩，以在罩內提供惰性(即，化學非反應性)氣氛，因此在將模 520 加熱到至高 300°C 之溫度情況下保護有機粉末(例如，13a)及由其形成的固態丸粒(例如，13p)不分解。這亦有益於對濕氣敏感的有機粉末，因為可在固結製程期間將其捕獲在丸粒 13p 內。

衝頭表面 523 和 525 可為平表面。或者，下衝頭 522 的表面 523 或上衝頭 524 的表面 525 可為凹表面，或者表面 523 和 525 二表面可具有凹形形狀，以使固態丸粒各自具有共表面主表面、一個平面主表面和一個凸狀主表面或兩個凸狀主表面。

圖 7A-7E 為易於由選擇模 520 和對應上下衝頭 524 和 522 在圖

6A-6D的單軸衝床500中形成的有機材料固態丸粒形狀之說明性實例。

圖7A描繪具有兩個共平面主表面13pA-1和13pA-2之有機空穴輸送材料之圓柱形丸粒13pA。

圖7B顯示具有一個平面主表面13pB-1及一個相對凸狀主表面13pB-2之圓形丸粒13pB。

圖7C顯示具有兩個凸狀主表面13pC-1和13pC-2之圓形丸粒13pC。

圖7D顯示具有兩個共平面主表面13pD-1和13pD-2之伸長型丸粒13pD；

圖7E描繪具有一個平面主表面13pE-1及一個相對凸狀主表面13pE-2之伸長型丸粒13pE。

應選擇特定丸粒形狀與丸粒所放入的特定蒸氣沈積源相容。例如，可有利在具有平面底表面之圓筒形蒸氣沈積源中使用一丸粒或多個丸粒13pA(見圖7A)。可有利在伸長型圓管狀蒸氣沈積源中使用一或多個丸粒13pE(見圖7E)，且凸狀主表面13pE-2之曲率接近匹配此圓管狀源空腔之半徑。

轉向圖8，圖8顯示一沿圖4中切割線8-8切開的有機HTL、ETL或EML物理蒸氣沈積台130之示意橫截面圖。外殼130H界定一室130C。基材31(見圖1)保持在作為罩架構造的夾具131中。蒸氣沈積源134位於絕熱性支撐體132上，源134用有機空穴輸送材料之丸粒13p填充，例如，圖5A的丸粒13pA。源134由加熱元件135加熱，加熱元件135由引線245和247連接到電源240的對應輸出端244和246。

在源溫度被足夠升高時，部分丸粒將昇華或蒸發，並因此提供有機空穴輸送材料蒸氣的沈積區域13v，如短劃線和箭頭所示。類似可由物理蒸氣沈積順序形成其他有機層，如ETL和EML，以形成OLED 30。

基材31和習知晶體質量感應器200位於沈積區域內，且此等元件分別具有在其上形成的有機空穴輸送層(HTL)，如短劃線輪廓線所示的名稱13f指示。

如技藝上所熟悉，晶體質量感應器200由引線210連接到沈積速率監測器220的輸入端216。感應器200為監測器220中提供的振蕩器電路部分，該電路以近似與晶體質量負荷成反比的頻率振蕩，如由所形成層13f提供的質量負荷。監測器220包括產生與質量負荷速率成比例信號的微分電路，且質量負荷速率與層13f沈積速率成比例。該信號由沈積速率監測器220顯示，並在其輸出端222提供。引線224將此信號連接到控制器或放大器230的輸入端226，控制器或放大器在輸出端232提供輸出信號。後一輸出信號由引線234和輸入端236成為電源240的輸入信號。

因此，如果蒸氣沈積區域13v內的蒸氣流臨時穩定，則層13f的質量積累或生長以恒定速率進行。速率監測器220將在輸出端222提供恒定信號，而電源240將由引線245和247對源134的加熱元件135提供恒定電流，由之將臨時穩定蒸氣流保持在沈積區域內。在穩定蒸氣沈積條件下，即，恒定沈積速率之條件，在固定沈積時間於基材和晶體質量感應器200上取得所需最終厚度的有機空穴輸送層33或有機發射層

34或有機電子輸送層35(見圖3)，此時，蒸氣沈積由終止加熱源134或在源上放置擋板(未顯示)終止。

雖然在圖8中出於說明目的顯示相對簡單坩堝源134，但應瞭解，可有效用大量其他源配置在沈積區域內提供有機材料的蒸發或昇華蒸氣。

為保持繪圖的清晰性，單個晶體質量感應器200顯示於圖8中。

轉向圖9，圖9顯示一圓管狀物理蒸氣沈積源裝配體700之示意縱向截面圖。該裝配體包括具有中心線CL之管狀源710。管狀源710由熱及電絕緣性端蓋732和734支撐，此端蓋亦支撐具有熱反射表面742之熱罩740。

管狀源710與熱罩支撐體和端蓋732和734界定一空腔712，其中有機空穴輸送材料的三個伸長型固態丸粒13p已通過可移動空腔密封758放入。

管狀源710包括複數個伸入空腔712的開口714。開口714在長度尺寸L線布置，該長度尺寸比管狀源的高度尺寸H至少大3倍(對於圓管狀源，H相當於空腔712的直徑)。開口714具有直徑d及中心-中心間隔l。

滑架760結合到熱罩740，並具有鴿尾形舌片760T及螺紋孔762。螺紋孔762由一引導螺杆(未顯示)嚙合，以便能夠將裝配體700在室中相對於此室中布置的基材平移、移動或掃描。

當置於保持在小於 10^{-3} 托減低壓力的室中時(例如，圖2的HTL蒸氣沈積台130之室130C)，丸粒13p有機空穴輸送材料昇

華或蒸發由燈引線 757a 和 757b 藉提供電源到加熱燈 757 的燈絲 757F 促使。加熱燈 757 布置於空腔 712 內，並在自中心線 CL 向上位置以朝向管狀源 710 的開口 714 方向由熱罩支撐體及端蓋 732, 734 支撐。如此在空腔 712 中形成的蒸氣雲通過開口 714 離開空腔。

伸長型丸粒 13p 可成形為類似於圖 7E 丸粒 13pE 之形狀，以使凸狀主表面與圓管狀源 710 的內表面接觸，而丸粒的平面狀主表面向上面對加熱燈 757。

雖然已在圖(圖 8 和圖 9)中顯示兩個蒸氣沈積源之實例，但應瞭解，由提供固態丸粒及使用此等丸粒製造 OLEDs 處理有機材料之發明性方法可在不同熱物理蒸氣沈積源和系統中應用。

在圖 6A-6F、圖 7A-7E、圖 8 和圖 9 中，已關於有機空穴輸送材料及由其製造的丸粒 13p 描述製造及使用此等固態丸粒之方法。本發明方法亦包括製造和使用經摻雜或未摻雜有機發光材料及經摻雜或未摻雜有機電子輸送材料之固態丸粒，以提供用於在基材上分別製造經摻雜或未摻雜有機發光層和經摻雜或未摻雜有機電子輸送層之對應固態丸粒，如圖 3 中所示且於圖 4 OLED 裝置 100 之蒸氣沈積台 140 (EML) 和 150 (ETL) 製造的層 34 (EML) 和層 35 (ETL)。

圖 10 為一製程流程圖，其顯示自可昇華 OLED 材料粉末和不可昇華熱導性陶瓷材料粉末之混合物製造固態丸粒之步驟。

此製程開始於步驟 800。在步驟 810 中，可昇華 OLED 材料

以粉末形式提供。可昇華有機材料包括有機經摻雜或未摻雜空穴輸送材料、有機發射(發光)材料及經摻雜或未摻雜有機電子輸送材料。

在步驟 812 中，選擇 OLED 材料粉末之重量分數(以欲形成的混合物計)。OLED 材料粉末之較佳重量分數在 50-99% 之範圍內。

在步驟 820 中，以粉末形式提供熱導不可昇華陶瓷材料。較佳熱導不可昇華陶瓷材料包括氮化鋁、碳化鈦或碳化鎢或其他熱導碳化物或氮化物或其混合物之粉末。

在步驟 822 中，熱導不可昇華陶瓷材料粉末之重量分數(以欲形成的混合物計)選擇在 1.0-50 重量%之較佳範圍內。

在步驟 830 中，將所選擇重量分數的可昇華 OLED 材料粉末和熱導不可昇華陶瓷材料粉末混合或摻合，以提供相對均勻且同質混合物。

在步驟 840 中，將混合物(或部分混合物)放入一個模中，對上下衝頭施加足夠壓力，以將混合物固結成固態丸粒。在衝頭中對混合物施加足夠壓力之前或期間，可將模加熱到一溫度，該溫度選擇在 50°C 至 300°C 範圍內，不超過有機材料之 T_g 。

在步驟 850 中，自模移除固態丸粒。如果將模加熱，則在自模移除固態丸粒之前將模冷卻到 50°C 至 20°C 範圍之溫度。此製程現在完成，如 860 所示。

可將一或多個丸粒放入布置於一個室的物理蒸氣沈積源中，以在將形成部分 OLED 之基材上形成有機層。

圖 11 為一顯示固結丸粒步驟之製程流程圖，其包括首先將可昇華 OLED 基質有機材料 (Alq 和 NPB) 粉末與可昇華有機摻雜劑材料粉末混合，其次將基質-摻雜劑混合物與熱導不可昇華陶瓷材料粉末混合。

此製程開始於步驟 900。在步驟 902 中，以粉末形式提供可昇華 OLED 基質有機材料。可昇華 OLED 基質有機材料包括有機空穴輸送基質材料、有機發射基質材料及有機電子輸送基質材料。

在步驟 904 中，提供所選擇重量分數的可昇華有機摻雜劑材料粉末。所選擇重量分數依賴欲經摻雜的 OLED 基質材料、所選擇的摻雜劑種類及欲在基質材料中取得的摻雜劑之濃度，以使在基材上製造的層具有在基質材料中的預定摻雜劑濃度。

在步驟 906 中，將所選擇重量分數的有機摻雜劑材料與有機基質材料混合或摻合，以提供相對同質有機材料之第一混合物。

在開始指令 900 的延遲 905 後，延遲的開始指令 915 開始，在步驟 920 以粉末形式提供熱導不可昇華陶瓷材料。較佳熱導不可昇華陶瓷材料包括氮化鋁、碳化鈦或碳化鎢或其他熱導碳化物或氮化物或其混合物之粉末。

在步驟 912 中，選擇第一基質-摻雜劑混合物之重量分數 (以欲形成的第二混合物計)。該有機混合物之較佳重量分數在 50-99 重量 % 之範圍內。

在步驟 922 中，將熱導不可昇華陶瓷材料粉末之重量分數

(以欲形成的第二混合物計)選擇1-50重量%之較佳範圍內。

在步驟930中，將所選擇重量分數的第一有機基質-摻雜劑粉末混合物與熱導不可昇華陶瓷材料粉末混合或摻合，以提供相對均勻的第二混合物，第二混合物包括所選擇部分的第一混合物與熱導不可昇華陶瓷材料粉末。

在步驟940中，將第二混合物(或部分第二混合物)放入一個模中，對衝頭中的第二混合物施加足夠壓力，以將第二混合物固結成固態丸粒。在對衝頭中第二混合物施加足夠壓力之前或期間，可將模加熱到一溫度，該溫度選擇在20°C至300°C之範圍內。

在步驟950中，自模移除固態丸粒。如果將模加熱，則在自模移除固態丸粒之前將模冷卻到80°C至20°C範圍之溫度。此製程現在完成，如960所示。

可將一或多個丸粒放入布置於一個室的物理蒸氣沈積源中，以在將形成部分有機發光裝置(OLED)之基材上形成經摻雜有機層。

經摻雜有機空穴輸送層或亞層及經摻雜有機電子輸送層或亞層可提供增強的OLED發光工作穩定性，經摻雜有機發射層可提供增強的OLED發光工作穩定性及在可見光譜區域內增強的光發射發光效率。經摻雜層或亞層亦可提供能夠在減低驅動電壓水平工作的OLEDs。

工作實例

實例1：

將有機發射材料Alq粉末在球磨機中以5和10重量%之比例

與熱導 AlN 陶瓷粉末緊密混合。然後在液壓機中將粉末混合物於模中以 3,000 磅/平方英寸至 15,000 磅/平方英寸壓力範圍及 60 和 300°C 間之模溫度固結。然後用具有優良物理完整性和密度高於理論密度 90% 之固態丸粒作為蒸發源沈積 OLED 裝置的發射層。與自 Alq 材料粉末製造的對照樣品比較，在 50°C 和 120°C 間範圍溫度於約 3,000 磅/平方英寸和 12,000 磅/平方英寸間且較佳約 5,000 磅/平方英寸和 10,000 磅/平方英寸間壓力的丸粒固體產生最佳裝置性能。

實例 2：

將有機空穴輸送基質材料 NPB 粉末在球磨機中以 5 和 10 重量 % 之比例與熱導 AlN 陶瓷粉末緊密混合。然後在液壓機中將粉末混合物於模中以 2,000 磅/平方英寸至 15,000 磅/平方英寸壓力範圍及 60 和 200°C 間之模溫度固結。然後用具有優良物理完整性和密度高於理論密度 90% 之固態丸粒作為蒸發源沈積 OLED 裝置的空穴輸送層。與自 NPB 材料粉末製造的對照樣品比較，在 50°C 和 100°C 間範圍溫度於約 2,000 磅/平方英寸和 10,000 磅/平方英寸間且較佳約 3,000 磅/平方英寸和 8,000 磅/平方英寸間壓力的丸粒固體產生最佳裝置性能。

比較性實例

將有機 Alq 和 NPB 粉末與 5 至 25 重量 % 銅和鋁之熱導金屬粉末混合。分別將有機發射材料 Alq 和有機空穴輸送材料 NPB 粉末在球磨機中以 5 和 10 重量 % 之比例與熱導 Al 和 Cu 金屬粉末緊密混合。然後在液壓機中將粉末混合物於模中以 2,000 磅/平方英寸至 15,000 磅/平方英寸壓力範圍及 60 和 200°C 間之

模溫度固結。然後用具有優良物理完整性和密度高於理論密度90%之固態丸粒作為蒸發源沈積OLED裝置的發射層和空穴輸送層。相對於自各粉末源製造的對照裝置，該裝置顯示較差電光學性能。顯然，Cu和Al金屬種類污染OLED裝置。

可將一或多種粉末狀有機基質材料和一或多種粉末狀有機摻雜劑材料混合或摻合，以提供第一有機材料混合物，然後將此混合物與熱導不可昇華陶瓷材料粉末混合或摻合，以提供第二混合物，並自第二混合物形成固態丸粒。

【圖式簡單說明】

圖1描繪一先前技藝之OLED；

圖2描繪另一先前技藝之OLED；

圖3為一具有部分剝回元件以顯露各層的被動式矩陣OLED之示意透視圖；

圖4為一適用於製造相對大量OLEDs且具有複數個自輪轂延伸之台之裝置之示意透視圖；

圖5為一載體之示意圖，該載體包含相對大量基材且位於如圖4切割線5-5所示切開的圖4系統之負載台；

圖6A-6F示意顯示一序列製程步驟，該製程步驟用於根據本發明在單軸衝床布置的模中自有機和陶瓷粉末之混合物形成固態丸粒，其中：

圖6A顯示在下衝頭上具有在模腔內填充的有機和陶瓷粉末混合物之模；

圖6B顯示置入模腔且接觸粉末材料上表面的上衝頭；

圖 6C 顯示由單軸衝床對上下衝頭施加壓力，以使有機和陶瓷粉末混合物材料固結成固態丸粒；

圖 6D 顯示上衝頭已自模腔移出；

圖 6E 顯示自衝床移出的模及自模腔移出的下衝頭，且所示丸粒附著到模腔的側表面；及

圖 6F 描繪用於自模移除丸粒及將丸粒捕陷在順應性容器之丸粒柱塞；

圖 7A-7E 為能夠在圖 6A-6D 衝床中由選擇所需模及對應上下衝頭形成的固態丸粒形狀之說明性實例，其中：

圖 7A 描繪具有兩個共平面主表面之圓柱形丸粒；

圖 7B 顯示具有一個平面主表面及一個相對凸狀主表面之圓形丸粒；

圖 7C 顯示具有兩個凸狀主表面之圓形丸粒；

圖 7D 顯示具有兩個共平面主表面之伸長型丸粒；及

圖 7E 描繪具有一個平面主表面及一個相對凸狀主表面之伸長型丸粒；

圖 8 為一物理蒸氣沈積台之示意橫截面圖，該沈積台用於在如圖 4 中切割線 8-8 所示圖 4 裝置中的基材上形成有機空穴輸送層 (HTL)，並顯示根據本發明一方面放入蒸氣沈積源之有機空穴輸送材料之固態丸粒；

圖 9 為一具有空腔之管狀蒸氣沈積源之部分橫截面圖，其中放置三個有機空穴輸送材料之伸長型丸粒；

圖 10 為一製程流程圖，其顯示根據本發明另一方面自可昇華有機材料粉末和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之混合物

製造固態丸粒之步驟；且

圖 11 為一製程流程圖，其顯示根據本發明另一方面製造固態丸粒之步驟，其包括首先將可昇華 OLED 基質材料粉末與可昇華有機摻雜劑材料粉末混合，其次將基質-摻雜劑混合物與熱導不可昇華陶瓷材料粉末混合。

【圖式代表符號說明】

10, 20	有機發光裝置
11, 21	基材
12, 22	陽極
14, 25	發射層
15, 27	陰極
23	選擇性空穴注入層
24	空穴輸送層
26	電子輸送層
30	主動式矩陣 OLED
31	光透明性基材
32	側向隔開的第一陽極
33	有機空穴輸送層
34	有機發射層
35	有機空穴輸送層
36	側向陰極
38	包封或蓋
100	系統
102	緩衝輪轂

104	轉移輪轂
103	卸載台
105	連界面
106	真空泵
107	泵抽口
108	壓力錶
110	負載台
130 (圖 4)	用於形成有機空穴輸送層的蒸氣沈積台
140	用於形成有機發光層的蒸氣沈積台
150	用於形成有機電子輸送層蒸氣沈積台
160	用於形成複數個第二電極(陰極)的蒸氣沈積台
170	貯存台
110C	室
110H	外殼
111	載體
13a	有機空穴輸送材料或發射材料之粉末
13p (圖 6)	有機空穴輸送材料(NPB)和發射材料(Alq) 所用有機基質之固態丸粒
13b	填充平面
500	單軸衝床
512	固定平臺
514	可移動平臺
516	柱

520	模
521	模之內表面
522	下衝頭
523	下衝頭之表面
524	上衝頭
525	上衝頭之表面
526	模腔
530	加熱線圈
540	加熱盤管
550	丸粒柱塞
560	順應性容器
13pA	圓柱形丸粒
13pA-1, 13pA-2	共表面主表面
13pB	圓形丸粒
13pB-1	平面主表面
13pB-2	相對凸狀主表面
13pC	圓形丸粒
13pC-1, 13pC-2	凸狀主表面
13pD	伸長型丸粒
13pD-1, 13pD-2	共表面主表面
13pE	伸長型丸粒
13pE-1	平面主表面
13pE-2	相對凸狀主表面
130	HTL、ETL或EML物理蒸氣沈積台

131	夾具
132	熱絕緣性基材
134	蒸氣沈積源
135	加熱元件
13p (圖 8)	有機空穴輸送材料和發射材料所用有機 基質之固態丸粒
13f	所形成的層
13v	有機空穴輸送材料蒸氣之沈積區域
200	晶體質量感應器
210	引線
216	沈積速率監測器之輸入端
220	沈積速率監測器
222	沈積速率監測器之輸出端
224	引線
226	控制器或放大器之輸入端
230	控制器或放大器
232	輸入端
234	引線
236	輸出端
240	電源
244, 245, 246, 247	引線
700	圓管形物理沈積源裝配體
710	管狀源
712	空腔

714	開口
732, 734	熱及電絕緣性端蓋
740	熱罩
742	熱反射表面
757	加熱燈
757F	燈絲
757a, 757b	引線
758	可移動腔密封
760	滑架
760T	鵠尾形舌片
762	螺紋孔
H	管狀源之高度尺寸
L	長度尺寸
l	中心-中心間隔
d	直徑
CL	中心線
800	開始
810	以粉末形式提供可昇華有機 OLED 材料
812, 822	選擇重量分數
820	以粉末形式提供熱導不可昇華材料
830	將經選擇重量分數的粉末混合
840	將混合物放入模，並對衝頭施加壓力， 以形成固態丸粒
850	自模移除固態丸粒

860	完成
900	開始
905	延遲
902	以粉末形式提供可昇華有機 OLED 基質材料
904	提供經選擇重量分數的有機摻雜劑
906	將 OLED 基質材料和摻雜劑混合
915	開始
920	以粉末形式提供熱導不可昇華材料
912, 922	選擇重量分數
930	將經選擇重量分數的粉末混合
940	將混合物放入模，並對衝頭施加壓力， 以形成固態丸粒
950	自模移除固態丸粒
960	完成

伍、中文發明摘要：

一種自有機材料在將形成部分有機發光裝置的基材上製造有機層之方法，其包括以下步驟：以粉末形式提供一種可昇華有機材料；以粉末形式提供一種熱導不可昇華陶瓷材料；形成一種可昇華有機材料粉末和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之混合物；將此混合物放入一模中，並用衝頭對經加熱混合物施加足夠壓力，以將粉末混合物固結成固態丸粒；並自該模移除丸粒。

陸、英文發明摘要：

A method of making an organic layer from an organic material on a substrate which will form part of an organic light-emitting device, including the steps of providing a sublimable organic material in a powder form; providing a thermally conductive and non-sublimable ceramic material in a powder form; forming a mixture of the sublimable organic material powder and thermally conductive and non-sublimable ceramic material powder; placing such mixture into a die and using a punch to apply sufficient pressure to the heated mixture to cause the mixture of powders to consolidate into a solid pellet; and removing the pellet from the die.

拾、申請專利範圍：

1. 一種自有機材料在將形成部分有機發光裝置的基材上製造有機層之方法，其包括以下步驟：
 - (a) 以粉末形式提供一種可昇華有機材料；
 - (b) 以粉末形式提供一種熱導不可昇華陶瓷材料；
 - (c) 形成一種可昇華有機材料粉末和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之混合物；
 - (d) 將此混合物放入一模中，並用兩個相對衝頭對混合物施加足夠壓力；
 - (e) 在由相對衝頭施加壓力期間或之前對模加熱，以幫助粉末之混合物固結成固態丸粒；及
 - (f) 自模移除丸粒。
2. 一種用根據申請專利範圍第1項形成的丸粒製造用於OLED裝置之有機材料層之方法，其包括以下步驟：
 - (a) 將丸粒放入配置於一室中的物理蒸氣沈積源；
 - (b) 在該室中並以相對於源成相隔關係放置基材；
 - (c) 將該室抽空到減低壓力；及
 - (d) 對該源加熱，以使丸粒中的至少部分有機材料昇華，而熱導性陶瓷材料保持不昇華，以提供在基材上形成有機層之有機材料蒸氣。
3. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該步驟(a)包括提供有機空穴輸送材料、有機發射材料或有機電子輸送材料。
4. 根據申請專利範圍第3項之方法，其中該步驟(a)進一步包

- 括提供至少一種有機空穴輸送基質材料和為此的至少一種有機摻雜劑材料、至少一種有機發射基質材料和為此的至少一種有機摻雜劑材料或至少一種電子輸送基質材料和為此的至少一種有機摻雜劑材料。
5. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該熱導陶瓷材料係選自由氮化鋁、碳化鎢和碳化鈦或其混合物所組成之群組。
 6. 根據申請專利範圍第5項之方法，其中該步驟(c)包括將部分可昇華有機材料粉末選擇在50至99重量%之範圍內以及將部分熱導不可昇華陶瓷材料粉末選擇在1至50重量%之範圍內。
 7. 根據申請專利範圍第2項之方法，其中該步驟(a)包括將一個以上的丸粒放入物理蒸氣沈積源。
 8. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該步驟(f)包括在50至200°C範圍之溫度。
 9. 一種製造可昇華有機材料之固態丸粒之方法，該固態丸粒可用於在將形成部分有機發光裝置的基材上製造有機層，該方法包括以下步驟：
 - (a) 以粉末形式提供至少一種可昇華有機基質材料；
 - (b) 以粉末形式並作為有機基質材料之經選擇重量分數提供至少一種可昇華有機摻雜劑材料；
 - (c) 形成至少一種有機基質材料和至少一種有機摻雜劑材料之第一混合物；
 - (d) 以粉末形式提供熱導不可昇華陶瓷材料；

(e) 形成所選擇部分第一混合物和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之第二混合物；

(f) 將此混合物放入一模中，並用兩個相對衝頭對混合物施加足夠壓力；

(g) 在由相對衝頭施加壓力期間或之前對模加熱，以幫助粉末之第二混合物固結成固態丸粒；及

(h) 自模移除丸粒。

10. 一種自有機材料在將形成部分有機發光裝置之基材上製造有機層之方法，其包括以下步驟：

(a) 以粉末形式提供至少一種可昇華有機基質材料；

(b) 以粉末形式並作為有機基質材料之經選擇重量分數提供至少一種可昇華有機摻雜劑材料；

(c) 形成至少一種有機基質材料和至少一種有機摻雜劑材料之第一混合物；

(d) 以粉末形式提供一種熱導不可昇華陶瓷材料；

(e) 形成所選擇部分第一混合物和熱導不可昇華陶瓷材料粉末之第二混合物；

(f) 將此混合物放入一模中，並用兩個相對衝頭對模中的第二混合物施加足夠壓力；

(g) 在由相對衝頭施加壓力期間或之前對模加熱，以幫助模中的粉末之第二混合物固結成固態丸粒；

(h) 自模移除丸粒；

(i) 將丸粒放入布置於一個室的物理蒸氣沈積源；

(j) 在該室並以相對於源成相隔關係放置基材；

(k) 將該室抽空到一減低壓力；及

(l) 對該源加熱，以使部分丸粒昇華，從而提供有機材料之第一混合物蒸氣，自蒸氣在基材上製造有機層。

拾壹、圖式：

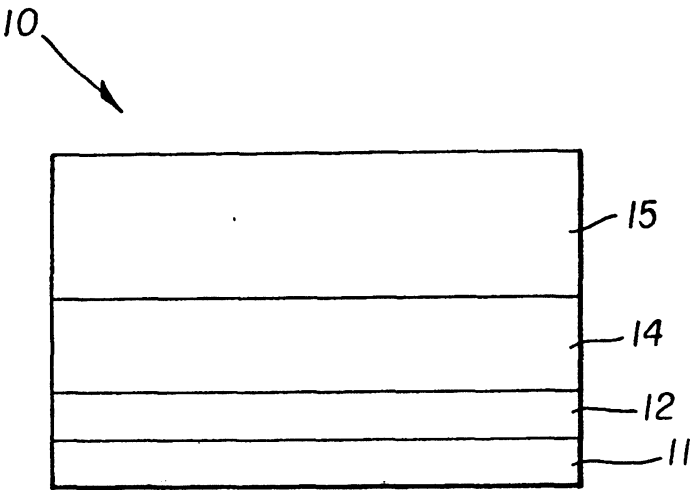


圖 1
(先前技藝)

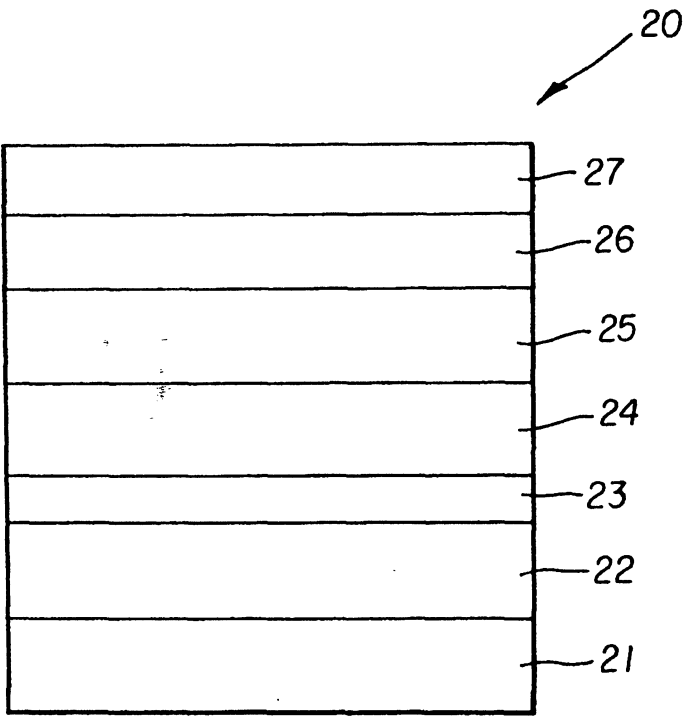


圖 2
(先前技藝)

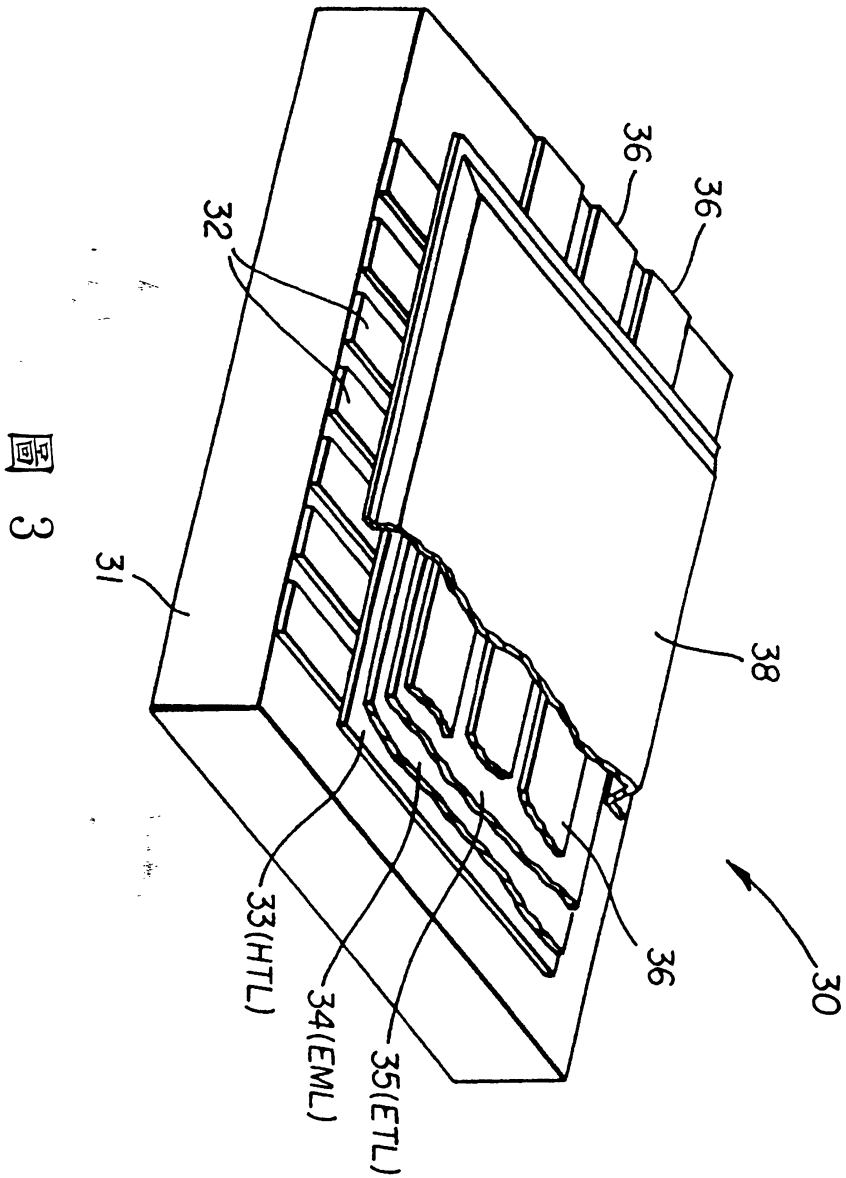


圖 3

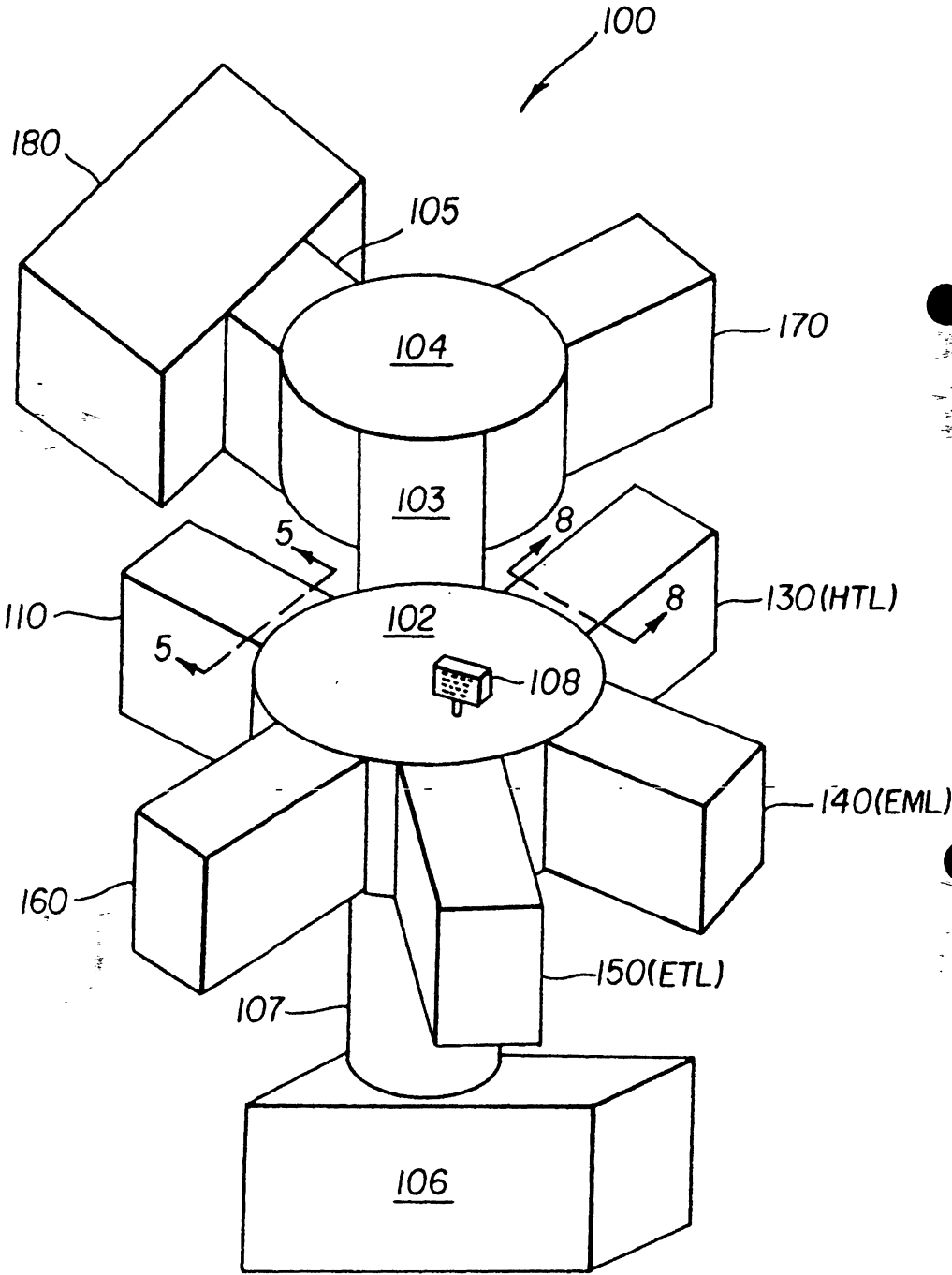


圖 4

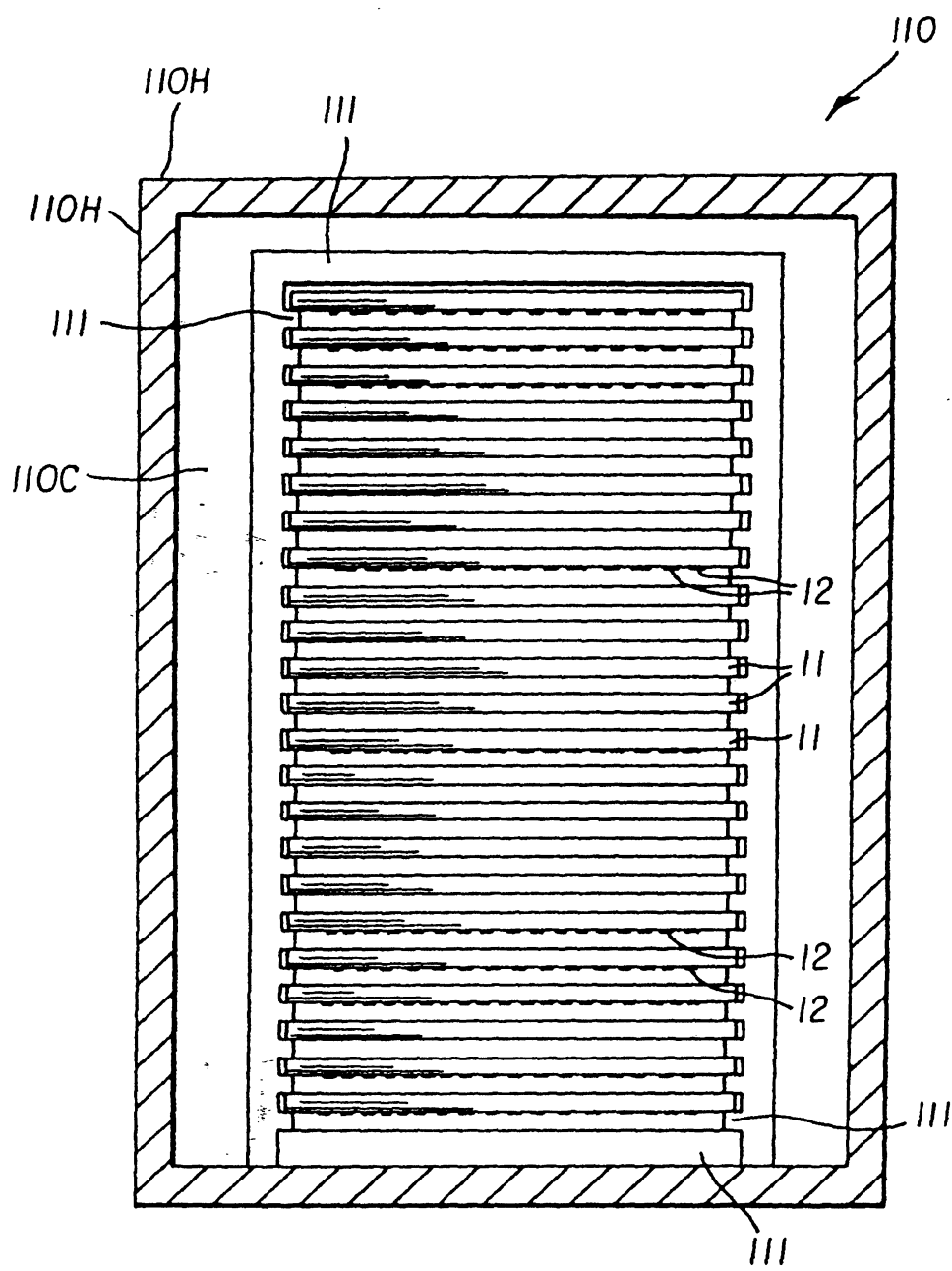


圖 5

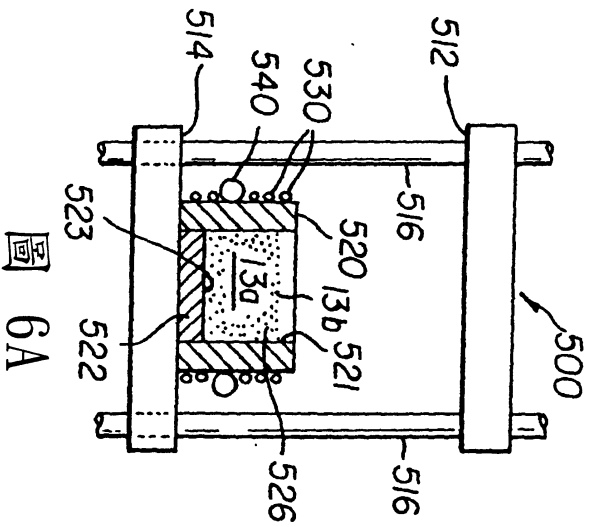


圖 6A

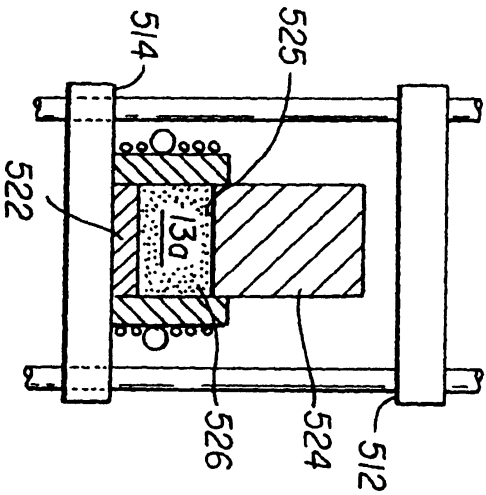


圖 6B

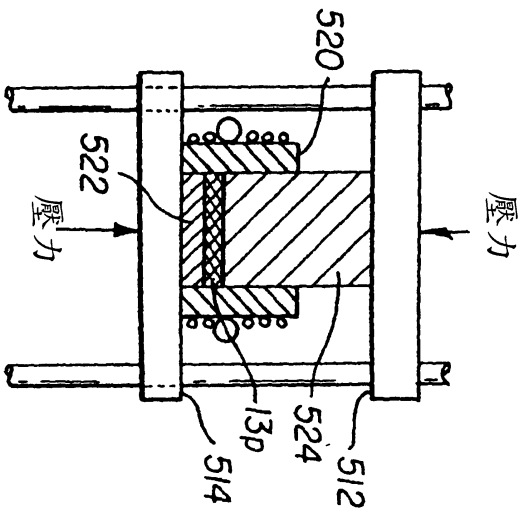


圖 6C

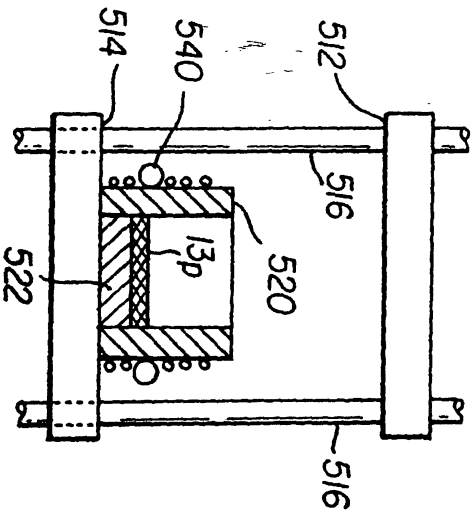


圖 6D

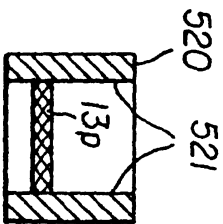


圖 6E

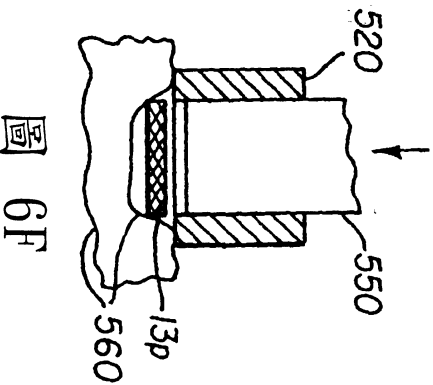
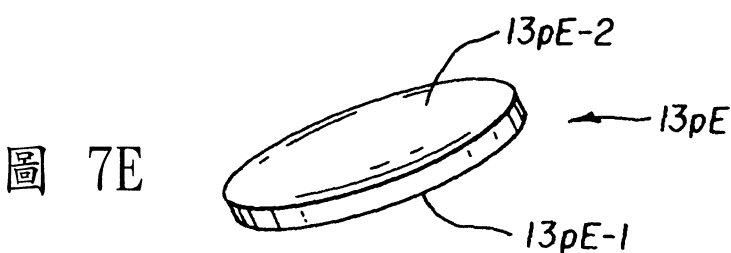
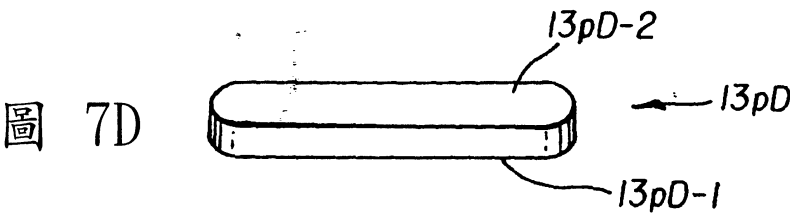
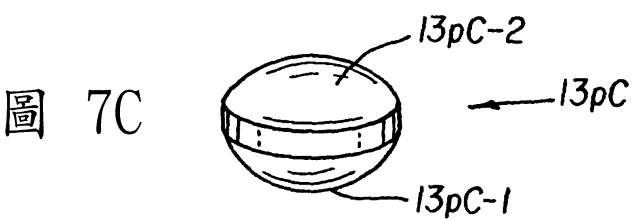
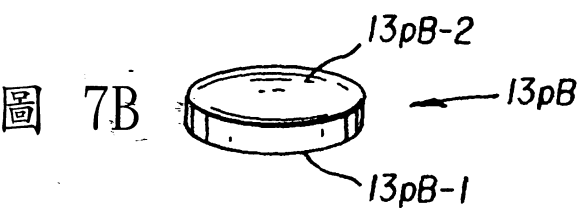
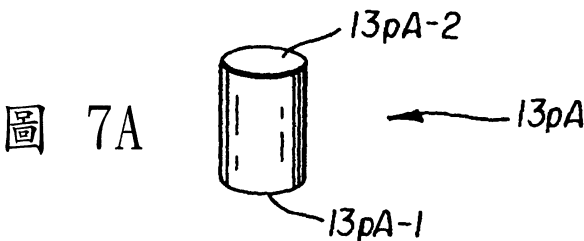
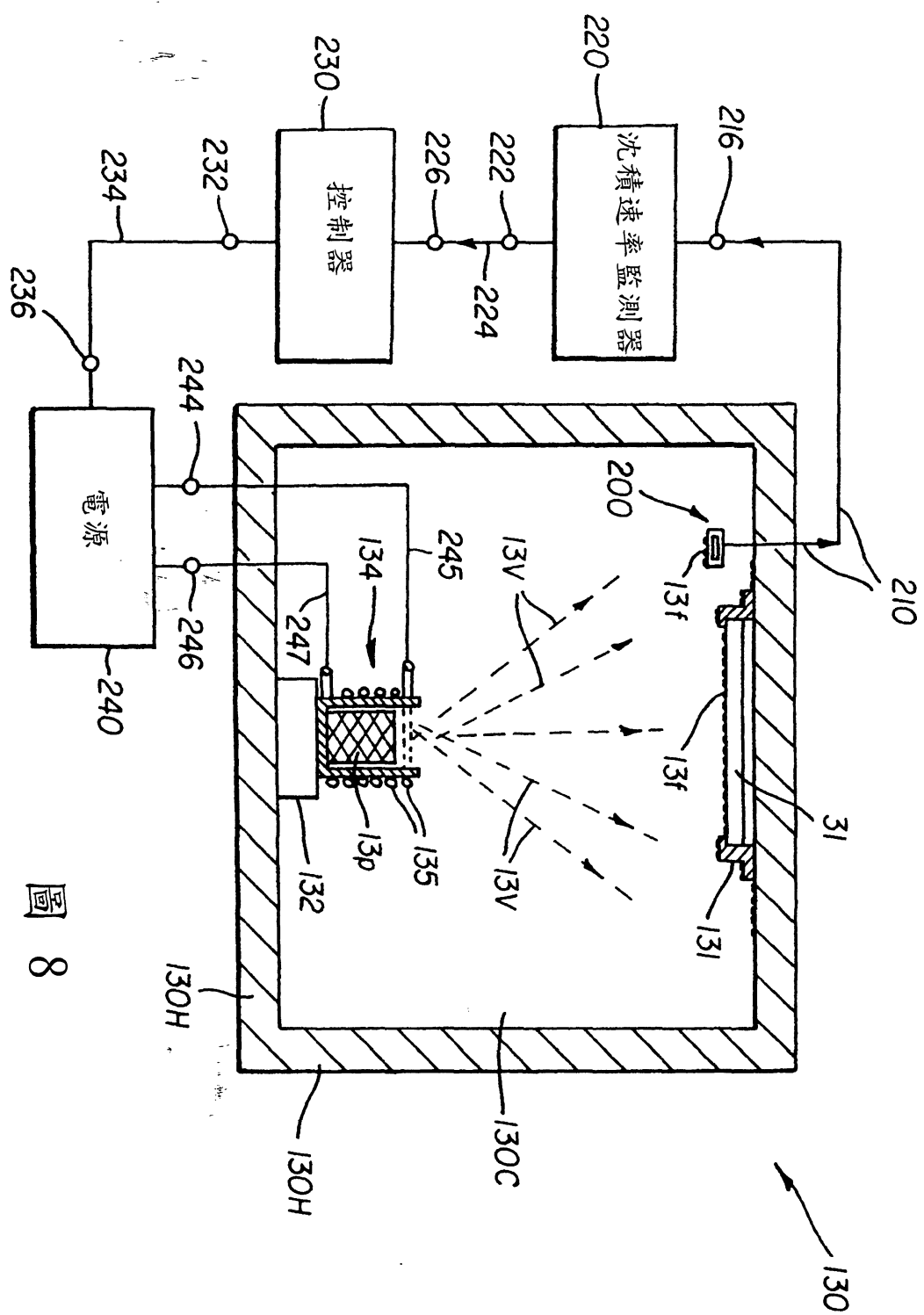


圖 6F





回
8

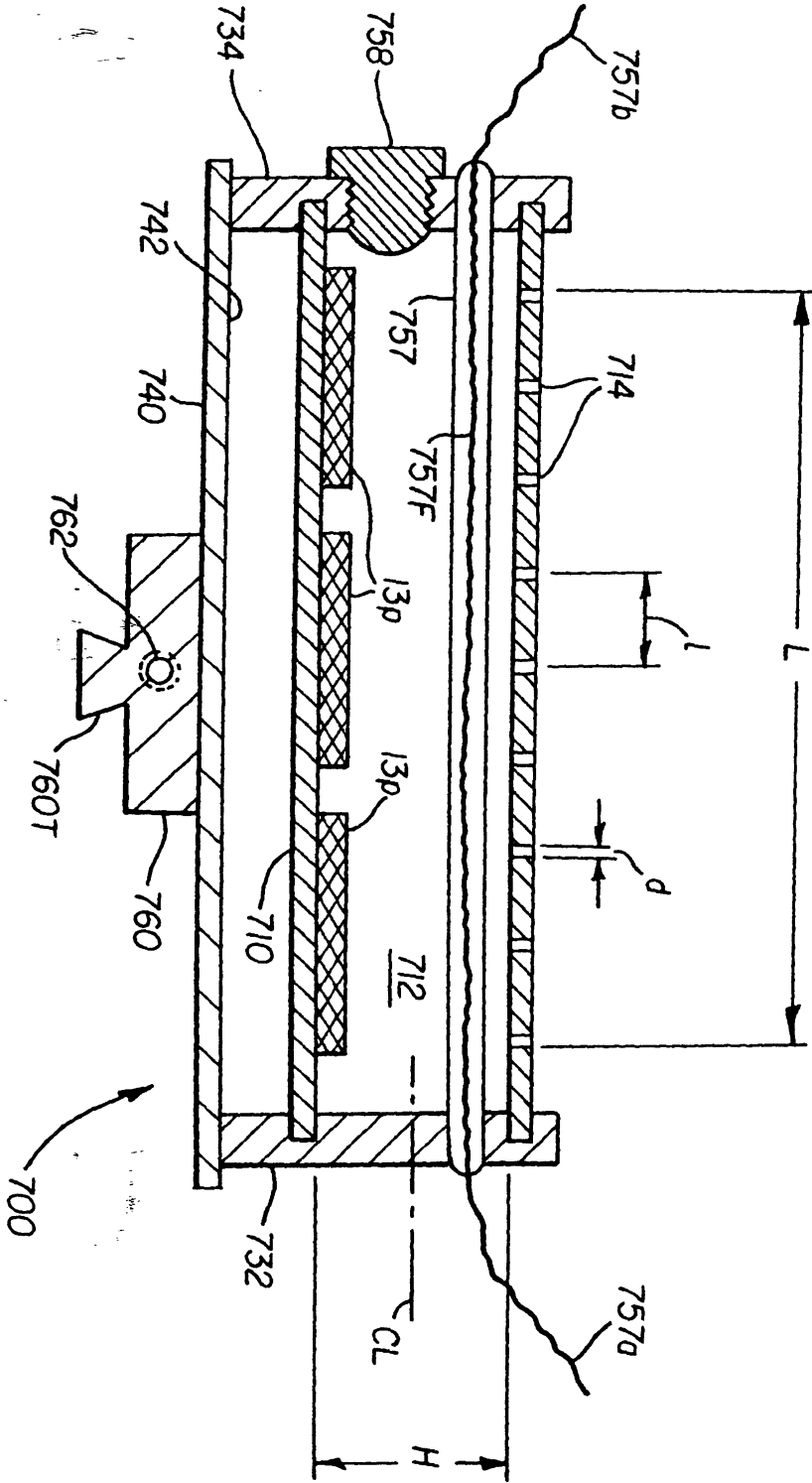


圖 9

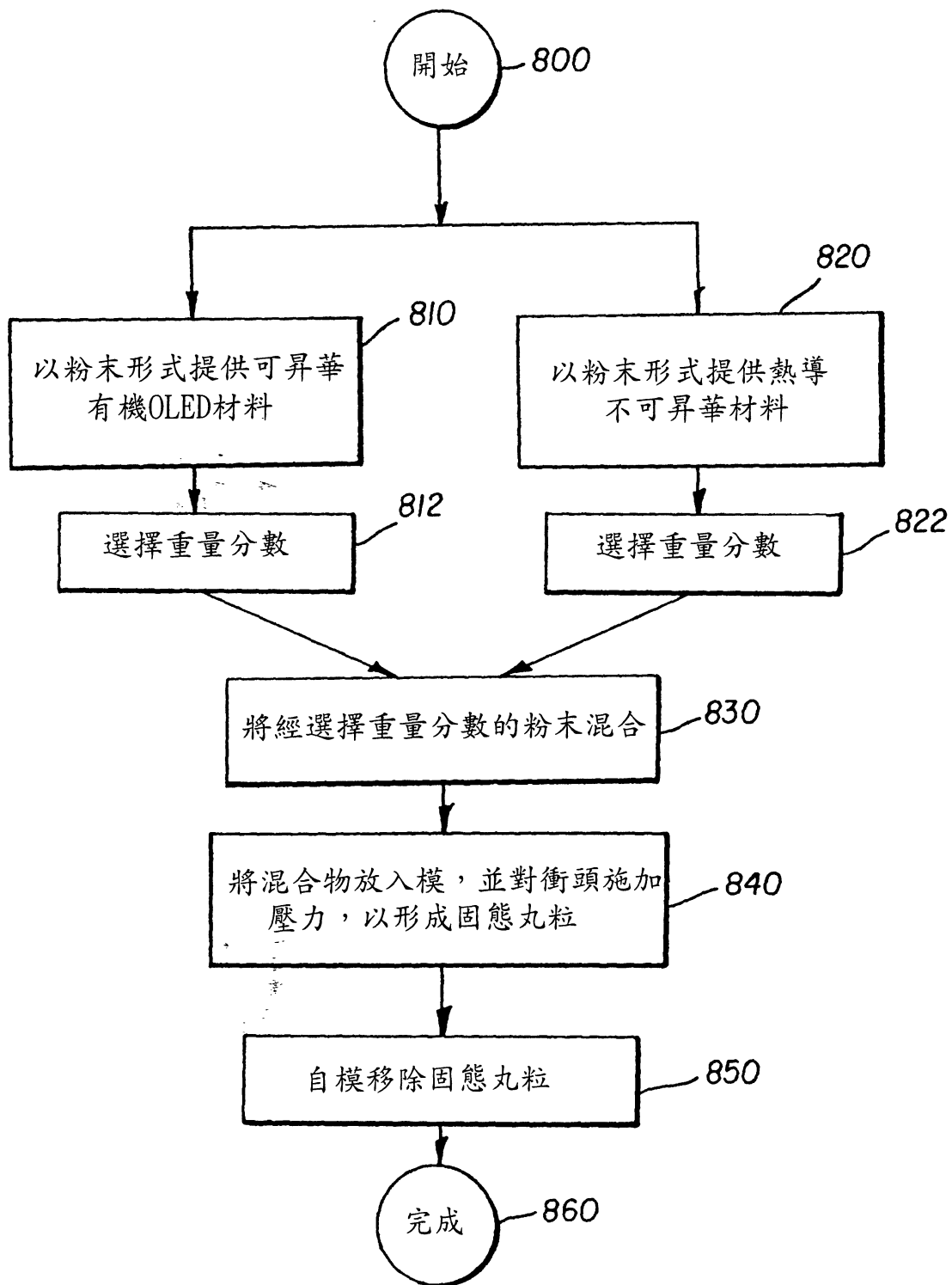


圖 10

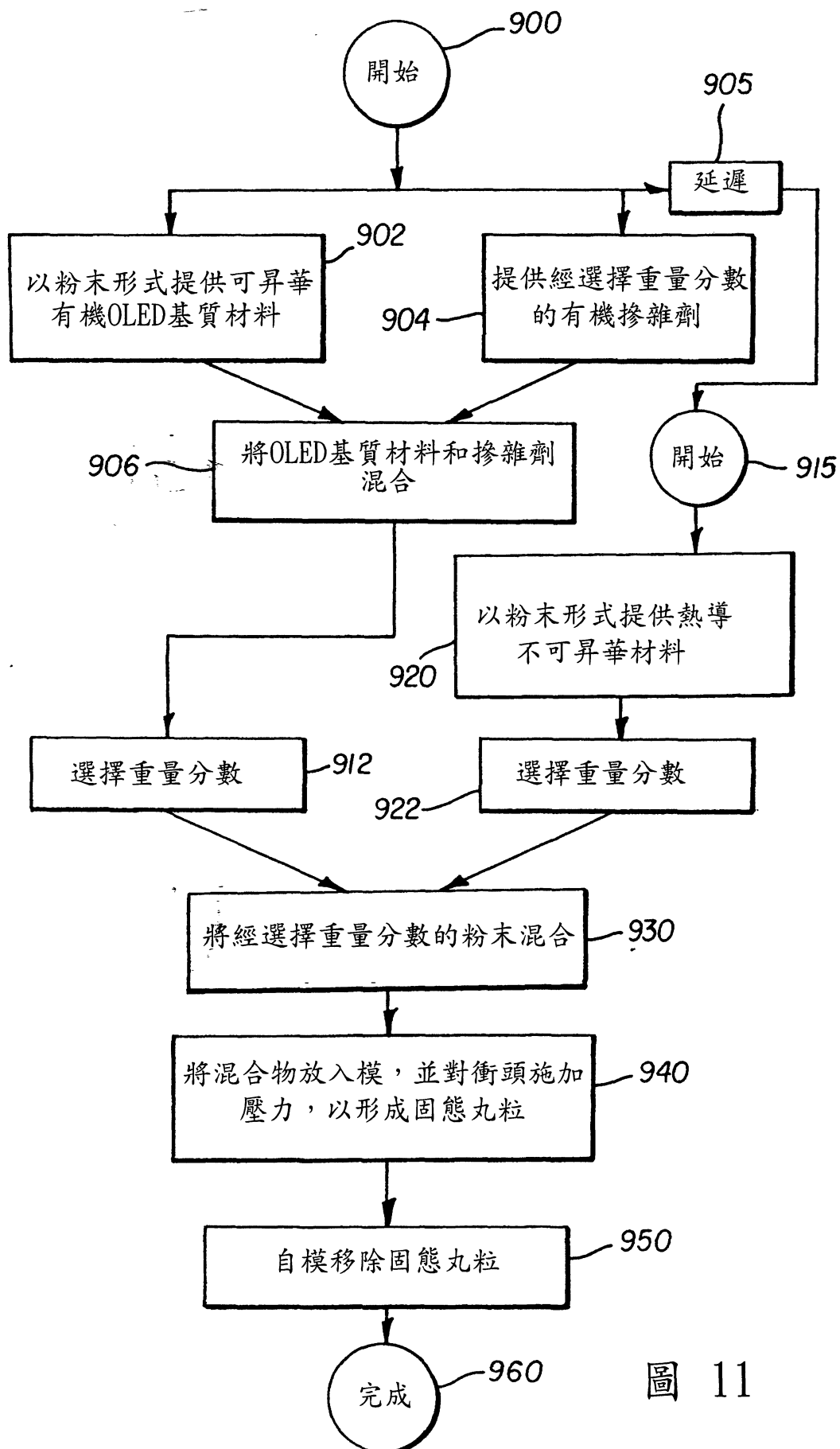


圖 11

柒、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第（ 10 ）圖。

(二)本代表圖之元件代表符號簡單說明：

800	開始
810	以粉末形式提供可昇華有機 OLED 材料
812,822	選擇重量分數
820	以粉末形式提供熱導不可昇華材料
830	將經選擇重量分數的粉末混合
840	將混合物放入模，並對衝頭施加壓力以形成固態丸粒
850	自模移除固態丸粒
860	完成

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：