

(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
2014 年 7 月 3 日(03.07.2014)



(10) 国際公開番号

WO 2014/103802 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/10 (2006.01) H05B 33/02 (2006.01)
B65H 18/28 (2006.01) H05B 33/04 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/083768
- (22) 国際出願日: 2013 年 12 月 17 日(17.12.2013)
- (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 2012-282416 2012 年 12 月 26 日(26.12.2012) JP
- (71) 出願人: コニカミノルタ株式会社(KONICA MINOLTA, INC.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 大谷 浩(OTANI Hiroshi); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 村山 真昭(MURAYAMA Masaaki); 〒1007015 東京都千代田

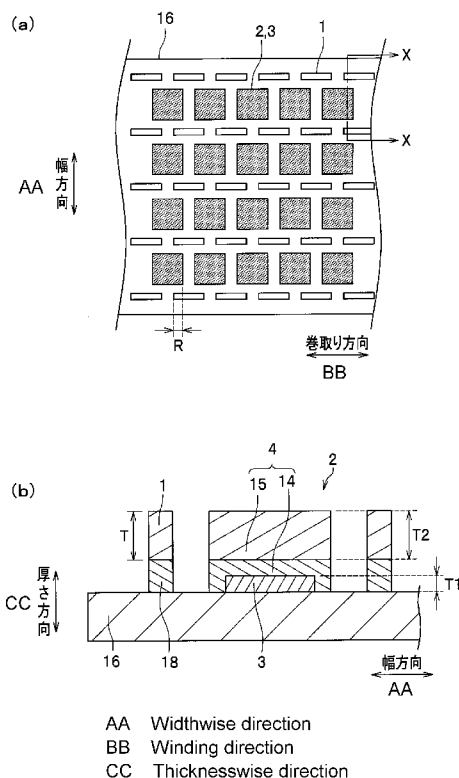
区丸の内二丁目 7 番 2 号コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 石毛 秀和(ISHIGE Hidekazu); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目 7 番 2 号コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP).

- (74) 代理人: 磯野 道造(ISONO Michizo); 〒1020093 東京都千代田区平河町 2 丁目 7 番 4 号 砂防会館別館 磯野国際特許商標事務所内 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, IR, IS, JP, KE, KG, 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, 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,

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT PANEL

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法



(57) Abstract: Provided is a method for manufacturing an organic electroluminescent (EL) panel, said method being capable of minimizing the performance deterioration of an organic EL panel in a case where a flexible substrate (16) provided with organic EL elements (3) thereon is wound up after the application of a sealing member (15) to each of the organic EL elements (3). This method for manufacturing an organic EL panel comprises: applying sealing members (15) respectively to multiple organic EL elements (3) in an organic EL element substrate obtained by forming multiple organic EL elements (3) on a long flexible substrate (16) by a roll-to-roll process, each of the organic EL elements (3) comprising at least a first electrode (11), an organic functional layer (12) that contains a light-emitting layer, and a second electrode (13); and thereafter winding up the resulting organic EL element substrate. The method is characterized in that prior to the winding-up, space-occupying members (1) are disposed on the flexible substrate (16) so as to occupy at least a part of the space that is not occupied by the organic EL elements (3).

(57) 要約: フレキシブル基板 (16) 上に形成した有機 EL 素子 (3) の各々に封止部材 (15) を貼合した後に巻取りを行う際に、有機 EL パネルの性能低下を抑制できる有機 EL パネルの製造方法を提供する。ロールツーロール方式により、長尺のフレキシブル基板 (16) 上に少なくとも第 1 電極 (11)、発光層を含む有機機能層 (12)、及び、第 2 電極 (13) を有する有機エレクトロルミネッセンス素子 (3) を複数形成した有機エレクトロルミネッセンス素子基板における複数の前記有機エレクトロルミネッセンス素子 (3) の各々に封止部材 (15) を貼合した後、前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板を巻き取る有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法であって、フレキシブル基板 (16) 上に、有機 EL 素子 (3) が形成される空間以外の空間の少なくとも一部を占める空間占有部材 (1) を配置した後、有機 EL 素子基板を巻き取ることを特徴とする。



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, 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：有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法 技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、自発光素子としての有機エレクトロルミネッセンス（以下、有機ＥＬともいう）素子を備える有機ＥＬパネルが注目されている。有機ＥＬパネルは、ガラス等の基板上に有機化合物の発光層（以下、有機発光層あるいは単に発光層ともいう）を第１電極（陽極）と第２電極（陰極）の２つの電極で挟持した構成の有機ＥＬ素子を配置し、陰極および陽極間に電流を供給することにより、有機発光層の発光を行うものである。

[0003] 最近では、有機ＥＬパネルの用途の拡大等に伴い、樹脂フィルム等の可撓性を有する基板を用いた有機ＥＬパネルも登場しており、有機ＥＬパネルの基板としてこのようなフレキシブル基板を用いることにより、ロールツーロール方式により有機ＥＬパネルの製造が可能となってきた（例えば、特許文献１参照）。ここでいうロールツーロール方式の製造方法とは、ロール状に巻かれた基板を繰り出して、当該基板上に有機ＥＬ素子を形成し、有機ＥＬ素子を形成した基板を再度ロールに巻き取る形態の製造方法を指す。ロールツーロール方式による製造方式は連続生産が可能のため、生産効率を向上させることができるというメリットを有する。

[0004] 一方、有機ＥＬパネルを構成する有機ＥＬ素子の発光層は、水分や酸素による影響を受けやすく、空気中に放置すると水分や酸素により品質の劣化を招くため、有機ＥＬパネルの製造過程では、封止と呼ばれる外界の影響を低減するための保護層を有機ＥＬ素子上に形成する工程を付加している。有機ＥＬ素子の封止技術としては、例えば、特許文献２に記載されているように、シート状の封止基板を有機ＥＬ素子に貼り合わせて封止を行う技術が知られている。

[0005] ロールツーロール方式は生産効率に優れているものの、全生産工程を完全に連続して行くと、何らかの障害事由が発生した場合や整備の際に支障をきたすため、ある程度の工程単位に分割することが行われている。この際、次工程もロールで処理が可能であり生産性が高いため、製造工程を分割してロール状に巻き取ることが行われている。例えば、特許文献3には、第1電極形成工程から封止工程後の巻取り工程までの何れかの段階で製造工程を適宜分割して巻き取るロールツーロール方式による有機ELパネルの製造方法が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第01／005194号パンフレット

特許文献2：特開2005-4063号公報

特許文献3：特開2006-294536号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 有機EL素子がフレキシブル基板上で外部に露呈していると、巻取りの際に有機EL素子が傷つきやすく欠陥が生じやすい。このため、特許文献3に記載されている発明は、巻取補助部材を介装して巻取りを行うことにより有機EL素子の損傷を防止している。しかし、有機EL素子の封止後に巻取るのであれば有機EL素子が外部に露呈していないため、巻取補助部材を使用せずに巻取りが可能と思われる。

[0008] ところが、フレキシブル基板上の複数の有機EL素子の各々に封止部材を貼合すると、封止部材による封止部分によりフレキシブル基板上に凸部が生じる。したがって、何ら措置を講じずにそのまま巻き取ると、巻取りにより重なった有機EL素子が封止部材の端部の押圧によって損傷するおそれが生じる。又、部分的に剛性が異なることから屈曲により封止部材が剥離して封止性能が低下するおそれが生じる。このため、有機ELパネルの性能低下を

招くおそれがある。

[0009] そこで、本発明は、フレキシブル基板上の複数の有機ＥＬ素子の各々に封止部材を貼合した後に巻取りを行う際に、有機ＥＬパネルの性能低下を抑制できる有機ＥＬパネルの製造方法を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明の上記課題は、下記構成により達成される。

[0011] １．ロールツーロール方式により、長尺のフレキシブル基板上に少なくとも第１電極、発光層を含む有機機能層、及び、第２電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を複数形成した有機エレクトロルミネッセンス素子基板における前記複数の有機エレクトロルミネッセンス素子の各々に封止部材を貼合した後、前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板を巻き取る有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法であって、前記フレキシブル基板上に、前記有機エレクトロルミネッセンス素子が形成される空間以外の空間の少なくとも一部を占める空間占有部材を配置した後、前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板を巻き取ることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0012] ２．前記空間占有部材は、巻取り方向に隣設した２つ以上の前記有機エレクトロルミネッセンス素子と巻取り方向の位置が少なくとも部分的に重複する様に配置される部材を含むことを特徴とする前記１に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0013] ３．前記空間占有部材は、巻取り方向に連続して配置される部材を含むことを特徴とする前記１に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0014] ４．前記空間占有部材の平面形状が四角形であって、その角が丸いことを特徴とする前記１～３のいずれか１項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0015] ５．前記空間占有部材は、材料及び断面形状が前記封止部材と同じであることを特徴とする前記１～４のいずれか１項に記載の有機エレクトロルミネ

ッセンスパネルの製造方法。

[0016] 6. 前記空間占有部材は前記有機エレクトロルミネッセンス素子の厚さ、及び、前記封止部材の厚さの合計以上の厚さであることを特徴とする前記 1～4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0017] 7. 前記フレキシブル基板上の前記有機エレクトロルミネッセンス素子への前記封止部材の貼合、及び、前記フレキシブル基板上への前記空間占有部材の配置を同時に行った後、巻き取ることを特徴とする前記 1～6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[0018] 8. 前記空間占有部材、及び、前記封止部材を、その支持体となるマザー基板上に配置し、前記マザー基板上の前記空間占有部材、及び、前記封止部材を、前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板に転写することにより、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の前記封止部材による封止と、前記フレキシブル基板上への前記空間占有部材の配置と、を同時に行った後、巻き取ることを特徴とする前記 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

発明の効果

[0019] 本発明によれば、フレキシブル基板上の複数の有機 EL 素子の各々に封止部材を貼合した後に巻取りを行う際に、有機 EL パネルの性能低下を抑制できる有機 EL パネルの製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]封止済み有機 EL 素子の構成の一例を示す概略断面図である。

[図2] (a) 本発明に係る有機 EL パネルの製造方法における空間占有部材及び封止済み有機 EL 素子の配置状態図 (その 1)、(b) 有機 EL パネルの X-X 線における断面図である。

[図3] (a) 本発明に係る有機 EL パネルの製造方法により製造される有機 EL パネルを巻き取った状態の模式図、(b) その拡大模式図、(c) 比較例に係る有機 EL パネルの製造方法により製造される空間占有部材を有さない

有機ＥＬパネルを巻き取った状態の模式図、（ｄ）その拡大模式図である。

[図4]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における空間占有部材及び有機ＥＬ素子の配置状態図（その２）である。

[図5]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における空間占有部材及び有機ＥＬ素子の配置状態図（その３）である。

[図6]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における空間占有部材及び有機ＥＬ素子の配置状態図（その４）である。

[図7]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における空間占有部材及び有機ＥＬ素子の配置状態図（その５）である。

[図8]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法の変形例における有機ＥＬ素子の配置状態図（その１）である。

[図9]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法の変形例における有機ＥＬ素子の配置状態図（その２）である。

[図10]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における有機ＥＬ素子基板、封止部材、及び、空間占有部材との貼合工程の一例を示す工程ライン図である。

[図11]本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法のフローチャートである。

発明を実施するための形態

[0021] 次に、本発明に係る有機ＥＬパネルの製造方法における空間占有部材及び有機ＥＬ素子について、図面を適宜参照して詳細に説明する。

[0022] ＜有機ＥＬパネルの構成＞

図１に有機ＥＬパネル３１（封止済み有機ＥＬ素子２）の一例を示す。なお、図１を含めこれ以降の各図面において、各図は模式的に表す。図１に示す様に、本発明により製造される有機ＥＬパネル３１は、少なくとも、フレキシブル基板１６（以下適宜基板と称する）、第１電極１１、第２電極１３、発光層を含む有機機能層１２を構成要素として有している。基板１６上に設けられた第１電極１１と、第２電極１３の間に、発光層を含む有機機能層１２が挟まれる構成をとり、これらを合わせたものが有機ＥＬ素子３である。

。第1電極11と、第2電極13は、陽極と陰極の対である。

[0023] このような多層構造を有する有機ELパネルの構成の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

1. 基板／第1電極（陽極）／発光層／第2電極（陰極）／封止層
2. 基板／第1電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／第2電極（陰極）／封止層
3. 基板／第1電極（陽極）／発光層／電子輸送層／第2電極（陰極）／封止層
4. 基板／第1電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／第2電極（陰極）／封止層
5. 基板／第1電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／第2電極（陰極）／封止層
6. 基板／第1電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／第2電極（陰極）／封止層
7. 基板／第1電極（陽極）／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／第2電極（陰極）／封止層
8. 基板／第1電極（陽極）／正孔注入層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／第2電極（陰極）／封止層

[0024] [基板]

基板16は、基材、透明基板などとも呼ばれ、有機EL素子3の支持体となる部材である。基板16は、長尺帯状であって可撓性を有する合成樹脂フィルム、好ましくは透明樹脂フィルムが用いられる。

[0025] 基板16は、例えば、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、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類又はそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン

、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート（PC）、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリル或いはポリアリレート類、アートン（商品名JSR社製）或いはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等で形成することができる。

[0026] [第1電極（陽極）]

有機EL素子3においては、通常、第1電極11（陽極）側が観察側となる。第1電極11（陽極）には、仕事関数が大きく（4 eV以上）透過率が40%以上の金属、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る。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、ITO（酸化スズと酸化インジウム混合物）、IZO（酸化亜鉛と酸化インジウム混合物）、ZnO、SnO₂、In₂O₃等が知られている。又、IDIXO（In₂O₃・ZnO）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。

中でも、ITO電極は、90%以上の高い光透過率と、10Ω/□以下の低いシート抵抗値が可能で、液晶ディスプレイや太陽電池などの透明電極としても用いられている。また、IZO電極は、形成時に基板16を加熱せずに所定の低い抵抗値が得られ、ITO電極よりも膜表面が平滑であるという利点がある。

[0027] [第2電極（陰極）]

第2電極13は、電源が接続されて、例えば、陰極として機能する。このような第2電極13としては、仕事関数の小さい（4 eV以下）金属（電子注入性金属と称する）、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用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム

／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、インジウム、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第2金属との混合物、例えば、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム (Al_2O_3) 混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

[0028] なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子3の陽極（第1電極11）又は陰極（第2電極13）の何れか一方が、透明又は半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

[0029] 又、第2電極13としてこれら金属を1～20nmの膜厚で作製した後に、第1電極11の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明又は半透明の第2電極13（陰極）を作製することができ、これを応用することで第1電極11（陽極）と第2電極13（陰極）の両方が光透過性を有する素子を作製することができる。

[0030] [有機機能層]

有機機能層12は、第1電極11（陽極）から注入される正孔と、第2電極13（陰極）から注入される電子とが再結合することによって発光する発光層（図示省略）を含んでいる。有機機能層12は、この発光層のほかに電子輸送層、正孔輸送層、正孔注入層（陽極バッファ層）、電子注入層（陰極バッファ層）、正孔阻止層、電子阻止層など（いずれも図示省略）を適宜選択して積層させることができる。

[0031] [発光層]

発光層は、第1電極11（陽極）から注入される正孔と、第2電極13（陰極）から注入される電子とが再結合することによって発光する層である。発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であっても

よい。発光層は、単層でもよいが複数の発光層を用いて多層とすることもできる。多層とする場合、当該発光層間に非発光性の中間層を有してもよい。また、前記層構成のうち、発光層を含む有機機能層 1 2 を 1 つの発光ユニットとし、複数の発光ユニットを積層することが可能である。当該複数の積層された発光ユニットにおいては、発光ユニット間に非発光性の中間層を有していてもよく、更に中間層は電荷発生層を含んでいてもよい。なお、発光層が多層の場合は、積層する数に合わせて塗布・乾燥部のユニットを配置する必要がある。

[0032] 発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性、発光に必要な電圧等を考慮し、通常 2 nm～5 μ m、好ましくは 2～200 nm の範囲で選ばれる。更に 10～20 nm の範囲にあるのが好ましい。膜厚を 20 nm 以下にすると電圧面のみならず、駆動電流に対する発光色の安定性が向上する効果があり好ましい。

[0033] 発光層に使用できる材料（発光材料）は特に限定はなく、例えば、「フラットパネルディスプレイの最新動向 - EL ディスプレイの現状と最新技術動向 -」（株式会社 東レリサーチセンター、2004 年 3 月発行）の 228～332 頁に記載されているが如き各種材料が挙げられる。

[0034] 前述の様に、発光層は、電極又は電子注入層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層である。発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

[0035] 発光層は、例えば、発光層形成用塗布液を塗布し、乾燥することで形成可能である。発光層形成用塗布液を塗布する湿式塗布機としては、例えば、ダイコート方式、スクリーン印刷方式、フレキソ印刷方式、インクジェット方式、メイヤーバー方式、キャップコート法、スプレー塗布法、キャスト法、ロールコート法、バーコート法、グラビアコート法等に用いる塗布機が使用可能である。又、これらの湿式塗布機の使用は有機機能層 1 2 の材料に応じて適宜選択可能である。

なお、発光層の形成は塗布方式に限られることはなく、真空蒸着法等任意

の方法を適宜選択可能である。

[0036] [正孔輸送層（正孔注入層、電子阻止層）]

（正孔輸送層）

正孔輸送層は、正孔を有効な再結合領域まで移動させる役割と、エネルギー障壁として電子をブロックして局所的に留め発光を強める役割を果たす。正孔輸送層は、正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層又は複数層設けることが出来る。これらについては、「有機EL素子とその工業化最前線」（エヌ・ティー・エス社、1998年11月30日発行）の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されている。

[0037] 正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性の何れかを有するものであり、有機物、無機物の何れであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、又、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

[0038] 正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。又、不純物をドーピングしたp性の高い正孔輸送層を用いることも出来る。その例としては、特開平4-297076号、特開2000-196140号、特開2001-102175号、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)などに記載されたものが挙げられる。この様なp性の高い正孔輸送層を用いることが、より低消費電力の有機EL素子を作製することが出来るため好ましい。

[0039] 正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、スロットダイ法、スプレ

ーコート法、LB法、ディップコート法、ブレード法、及びスリットコート法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

[0040] (正孔注入層)

正孔注入層(陽極バッファ層)は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

また、特開平6-025658号公報に記載されているフェロセン化合物、特開平10-233287号公報等に記載されているスターバースト型の化合物、特開2000-068058号公報、特開2004-6321号公報に記載されているトリアリールアミン型の化合物、特開2002-117979号公報に記載されている含硫黄環含有化合物、米国特許出願公開第2002/0158242号明細書、米国特許出願公開第2006/0251922号明細書、特開2006-49393号公報等に記載されているヘキサザトリフェニレン化合物等も正孔注入層として挙げられる。

[0041] 正孔注入層の膜厚は、特に制限されるものではないが、0.1nm~5 μ m程度、好ましくは0.1~100nm、さらに好ましくは1~100nm、最も好ましくは10~60nmである。

[0042] [電子輸送層(電子注入層、正孔阻止層)]

(電子輸送層)

電子輸送層は、電子を有効な再結合領域まで移動させる役割と、エネルギー障壁として正孔をブロックして局所的に留め発光を強める役割を果たす。電子輸送層は、電子を輸送する機能を有する材料(電子輸送材料)からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。これらについては、「有機EL素子とその工業化最前線」(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)に詳細に

記載されている。

[0043] 従来、単層の電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）、又は電子輸送層を複数層とする場合において、発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン、アントロン誘導体及びオキサジアゾール誘導体等が挙げられる。更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送層の材料として用いることができる。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0044] 電子輸送層は、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。電子輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0045] （電子注入層）

電子注入層（陰極バッファ層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。電子注入層（陰極バッファ層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよ

るがその膜厚は $0.1\text{ nm} \sim 5\text{ }\mu\text{m}$ の範囲が好ましい。

[0046] (正孔阻止層)

正孔阻止層は、広い意味では、電子輸送層の機能を有する。正孔阻止層は、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。正孔阻止層は、電子輸送層に記載したものをを用いて具現することができる。正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。正孔阻止層の膜厚は、好ましくは $3 \sim 100\text{ nm}$ であり、さらに好ましくは $5 \sim 30\text{ nm}$ である。

[0047] [封止層]

有機EL素子3の封止層4は、封止部材15と接着剤層14とを有しており、封止部材15は、ここでは、封止基板と、バリア層とを有している。更に、バリア層の上に保護層を設けてもよい。封止基板は単体でもよいし、積層体であってもよく必要に応じて適宜選択することが可能である。バリア層は単体でもよいし、積層体であってもよく必要に応じて適宜選択することが可能である。封止層4は封止部材15を、接着剤層14を介して有機EL素子3上へ貼合することで形成されている。

[0048] (封止基板)

封止基板の厚さは、製造時の取扱い性、引っ張り強さやバリア層の耐ストレスクラッキング性等を考慮し、 $10\text{ }\mu\text{m} \sim 500\text{ }\mu\text{m}$ が好ましい。バリア層の厚さは、バリア性能、バリア層の耐ストレスクラッキング性等を考慮し、 $5\text{ nm} \sim 200\text{ }\mu\text{m}$ が好ましい。

[0049] 封止基板の水蒸気透過度は、有機EL素子として製品化する際に必要とするガスバリア性等を考慮し、 $0.01\text{ g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ 以下であることが好ましい。水蒸気透過度は、JIS K 7129B法(1992年)に準拠した方法で主としてMOCON法により測定した値を示す。

[0050] 封止基板の酸素透過度は、 $0.01\text{ ml}/\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{atm}$ 以下であることが好ましい。酸素透過度は、JIS K 7126B法(1987年)

に準拠した方法で主としてMOC CON法により測定した値である。

[0051] 封止基板の剛性（ヤング率）は、製造時の取扱い性、引っ張り強さやバリア層の耐ストレスクラッキング性等を考慮し、 $1 \times 10^{-3} \text{ GPa} \sim 80 \text{ GPa}$ であることが好ましい。

本発明に使用する封止部材15を構成している封止基板としては特に限定はなく、例えば、エチレンテトラフルオロエチル共重合体（ETFE）、高密度ポリエチレン（HDPE）、延伸ポリプロピレン（OPP）、ポリスチレン（PS）、ポリメチルメタクリレート（PMMA）、延伸ナイロン（ONy）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリカーボネート（PC）、ポリイミド、ポリエーテルスチレン（PES）など一般の包装用フィルムに使用されている熱可塑性樹脂フィルム材料を使用することが出来る。又、これら熱可塑性樹脂フィルムは、必要に応じて異種フィルムと共押出しで作った多層フィルム、延伸角度を変えて貼り合せて作った多層フィルム等も当然使用出来る。更に必要とする物性を得るために使用するフィルムの密度、分子量分布を組合せて作ることも当然可能である。

[0052] （バリア層）

バリア層としては、無機蒸着膜、金属箔が挙げられる。無機蒸着膜としては「薄膜ハンドブック」（日本学術振興会編オーム社発行、p 879～p 901）、「真空技術ハンドブック」（日刊工業新聞社発行、p 502～p 509、p 612、p 810）、「真空ハンドブック増訂版」（ULVAC 日本真空技術株式会社編オーム社発行、p 132～p 134）に記載されているが如き無機膜が挙げられる。例えば、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂、Cr₂O₃、Si_xO_y（x=1、y=1.5～2.0）、Ta₂O₃、ZrN、SiC、TiC、PSG、Si₃N₄、単結晶Si、アモルファスSi、W、等が用いられる。

又、金属箔の材料としては、例えば、アルミニウム、銅、ニッケルなどの

金属材料や、ステンレス、アルミニウム合金などの合金材料を用いることが出来るが、加工性やコストの面でアルミニウムが好ましい。膜厚は、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $10 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ 程度が望ましい。

[0053] 更に、バリア層の上に保護層を設ける場合の保護層の膜厚は、バリア層の耐ストレスクラッキング性、耐電氣的絶縁性、シール剤層として使用する場合は接着性（接着力、段差追従性）等を考慮し、 $100 \text{nm} \sim 200 \mu\text{m}$ が好ましい。保護層としてはJIS K 7210規定のメルトフローレートが $5 \sim 20 \text{g} / 10 \text{min}$ である熱可塑性樹脂フィルムが好ましく、更に好ましくは、 $6 \sim 15 \text{g} / 10 \text{min}$ 以下の熱可塑性樹脂フィルムを用いることが好ましい。これは、メルトフローレートが $5 (\text{g} / 10 \text{min})$ 以下の樹脂を用いると、各電極の引き出し電極の段差により生じる隙間部を完全に埋めることが出来ず、 $20 (\text{g} / 10 \text{min})$ 以上の樹脂を用いると引っ張り強さや耐ストレスクラッキング性、加工性などが低下するためである。

[0054] 熱可塑性樹脂フィルムは、上記数値を満たすものであれば特に限定されるものではないが、例えば「機能性包装材料開発の新動向 機能性添加剤料の新展開」（株式会社東レリサーチセンター編）に記載の高分子フィルムである低密度ポリエチレン（LDPE）、HDPE、線状低密度ポリエチレン（LLDPE）、中密度ポリエチレン、未延伸ポリプロピレン（CPP）、OPP、ONy、PET、ポリビニルアルコール（PVA）、セロハン、延伸ビニロン（OV）、エチレン-ビニルアルコール共重合体（EVOH）、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、塩化ビニリデン（PVC）等の使用が可能である。これらの熱可塑性樹脂フィルムの中で特にLDPE、LLDPE及びメタロセン触媒を使用して製造したLDPE、LLDPE、又、これらフィルムとHDPEフィルムの混合使用したフィルムを使用することが好ましい。

[0055] （接着剤層）

本発明の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法において、有機EL素子3が形成された基板16と封止部材15とを接着剤で貼り合わせる

際に用いる接着剤としては光硬化型あるいは熱硬化型の液状接着剤や、光硬化型あるいは熱硬化型のシート状接着剤、熱可塑性樹脂、光硬化性樹脂等が挙げられる。液状接着剤としては、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型シール剤、2 - シアノアクリル酸エステルなどの湿気硬化型等の接着剤、エポキシ系などの熱及び化学硬化型（二液混合）等の接着剤、ポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンなどのホットメルト型等の接着剤、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤等を挙げることが出来る。液状接着剤には必要に応じてフィラーを添加することが好ましい。フィラーの添加量としては、接着力を考慮し、5～70体積%が好ましい。又、添加するフィラーの大きさは、接着力、貼合圧着後の接着剤厚み等を考慮し、1 μm ～100 μm が好ましい。添加するフィラーの種類としては特に限定はなく、例えばソーダガラス、無アルカリガラス或いはシリカ、二酸化チタン、酸化アンチモン、チタニア、アルミナ、ジルコニアや酸化タングステン等の金属酸化物等が挙げられる。

[0056] 液状接着剤を使用して封止部材15と有機EL素子3とを接着する場合、貼合部は、貼合安定性、貼合部内への気泡混入防止、可撓性封止基板の平面性保持等を考慮し、1000Pa以下の減圧条件で行うことが好ましい。

[0057] なお、有機EL素子3が熱処理により劣化する場合があるので、接着剤は70～120℃の範囲で接着硬化できるものが好ましい。また、接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

[0058] [空間占有部材]

図2（a）は本発明に係る有機ELパネルの製造方法における空間占有部材及び封止済み有機EL素子2の配置状態、図2（b）は有機ELパネルのX-X線における断面を示す。図3（a）は、本発明に係る有機ELパネルの製造方法により製造される有機ELパネルを巻き取った状態、図3（b）はその拡大を、図3（c）は比較例に係る有機ELパネルの製造方法により

製造される空間占有部材を有さない有機ＥＬパネルを巻き取った状態、図３（ｄ）はその拡大を示す。

空間占有部材１は、ロールツーロール方式にて、フレキシブル基板１６の上に有機ＥＬ素子３を形成して封止部材１５にて封止した後、封止済み有機ＥＬ素子２を有するフレキシブル基板１６（有機ＥＬパネル３１）をロール状に巻き取る際に、巻き取った有機ＥＬパネル３１の径方向の間隔を保持すると共に、巻き取った有機ＥＬパネル３１のフレキシブル基板１６の屈曲を抑える部材である。

[0059] 空間占有部材１は、例えば、図２に示すように、有機エレクトロルミネッセンス素子が形成される空間以外の空間の少なくとも一部に形成されるものとする。ここで、空間占有部材１は封止部材１５とは分離して別に配置されるものとする。

空間占有部材１がフレキシブル基板１６上の有機ＥＬ素子３が形成される空間以外の空間の少なくとも一部に形成されることにより、図３（ｂ）に示すように、ロール状に巻き取られた有機ＥＬパネル３１の径方向の間隔が保持されると共に、図３（ｄ）に示す比較例の有機ＥＬパネル３２の様に、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことを抑える。

[0060] （配置１）

空間占有部材１は、図２に示すように、フレキシブル基板１６上における巻取り方向に隣設した２つ以上の有機エレクトロルミネッセンス素子３と巻取り方向の位置が少なくとも部分的に重複する様に配置することが好ましい。

[0061] 空間占有部材１が、基板１６の巻取り方向において隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に存在するだけでなく、巻取り方向に隣り合う２つ以上の有機ＥＬ素子３と巻取り方向の位置が少なくとも部分的に重複する図２のＲで示す部分（重複部分）を有することで、フレキシブル基板１６が隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間、及び、有機ＥＬ素子３の辺並びに角で急激に屈曲するこ

とをより確実に防止する（図３（ｂ）参照）。

[0062] この様な空間占有部材１の配置とすることによって、隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間で、特に有機ＥＬ素子３の端部での基板１６の急激な屈曲をより確実に防止することにより、封止層４とその下の有機ＥＬ素子３との剛性の違いによる封止部材１５の剥離がより確実に防止される。これにより、封止部材１５が剥離して水分が有機ＥＬ素子３に浸入してダークスポットやシュリンク（収縮）が発生して有機ＥＬパネル３１の性能が低下することを防止でき、有機ＥＬパネル３１の性能を維持することが可能となる。

[0063] 又、この様な空間占有部材１の配置とすることによって、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことが抑えられることにより、有機ＥＬ素子３に歪みが生じ難くなり、ロール内面側の封止済み有機ＥＬ素子２の辺や角による押圧も発生し難くなる。これにより、有機ＥＬ素子３に圧力が加わることによる損傷も生じ難くなり有機ＥＬパネル３１の性能が維持される。又、有機ＥＬ素子３と封止部材１５とを接着する接着剤層１４の厚さや分布の不均一化も生じ難くなり、封止性能が維持されて水分も浸入し難くなる。水分が有機ＥＬ素子３に浸入する結果発生するダークスポットやシュリンク（収縮）も減少して、有機ＥＬパネル３１の性能が維持される。

[0064] 更に、封止部材１５側から光を取り出すトップエミッション型の有機ＥＬパネル３１の場合であっても、封止済みの有機ＥＬ素子２の厚さに差が生じ難くなるため、発光ムラが生じ難く有機ＥＬパネル３１の性能が維持される。

[0065] （配置２）

空間占有部材１は、図４に示すように、フレキシブル基板１６の巻取り方向に連続して形成してもよい。

空間占有部材１が基板１６の巻取り方向において隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に存在するだけでなく、有機ＥＬ素子３の側方にも連続して存在することで、フレキシブル基板１６が有機ＥＬ素子３、３の間で急激に屈曲す

ることを確実に防止すると共に、巻取られる際にロールの円周方向に沿って均一に曲げられるため、有機ＥＬ素子３の中央部においても急激に屈曲することを防止する。また、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことを確実に抑える。

[0066] この様な空間占有部材１の配置とすることによっても、前記配置１と同様の効果が得られる。加えて、有機ＥＬ素子３の中央部においても急激に屈曲することが防止されることから、有機ＥＬ素子３に大きな曲げ応力が加わることが防止されると共に、封止部材１５の剥離がより確実に防止される。よって、ダークスポットやシュリンク（収縮）の発生もより防止されて、有機ＥＬパネル３１の性能をより維持することが可能となる。

[0067] （配置３）

空間占有部材１は、図５に示すように、フレキシブル基板１６の巻取り方向及び巻取り方向に略直交する幅方向の両方に沿って形成してもよい。

[0068] 空間占有部材１をフレキシブル基板１６の巻取り方向に沿って形成した場合における空間占有部材１の長さに制限はないが、この場合の空間占有部材１の長さＬ１は有機ＥＬ素子３の巻取り方向に沿う一辺の長さ以上であることが好ましい。

空間占有部材１が有機ＥＬ素子３の一辺の長さ以上の長さを有して少なくとも有機ＥＬ素子３の側方で隣接することにより、ロール状に巻き取られた有機ＥＬパネル３１の径方向の間隔を十分保持すると共に、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことを抑える。

[0069] 空間占有部材１をフレキシブル基板１６の巻取り方向に略直交する幅方向に沿って形成した場合における空間占有部材１の長さに制限はないが、この場合の空間占有部材１の長さＬ２は有機ＥＬ素子３の巻取り方向に略直交する幅方向に沿う一辺の長さ以上の長さであることが好ましい。

空間占有部材１が有機ＥＬ素子３の一辺の長さ以上の長さを有して少なくとも巻取り方向に略直交する幅方向で有機ＥＬ素子３に隣接することにより、ロール状に巻き取られた有機ＥＬパネル３１の径方向の間隔を十分保持す

ると共に、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことをより抑える。

[0070] 更に、空間占有部材１をフレキシブル基板１６上の有機ＥＬ素子３の周囲に配置することにより、フレキシブル基板１６全体の剛性が均一化され、基板１６の急激な屈曲が防止される。これにより、封止層４とその下の有機ＥＬ素子３との剛性の違いによる封止部材１５の剥離が防止される。

そして、空間占有部材１は、有機ＥＬ素子３の一辺の長さ以上の長さを有して隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間まで両方向に延びている事がより好ましい。これにより、有機ＥＬ素子３の端部における基板１６の急激な屈曲が防止されるため、封止部材１５の剥離がより防止される。

[0071] (変形例)

空間占有部材１は、形成個数や形成方向に制限はなく、例えば、図６に示すように、前記した配置１の空間占有部材１の配置に加えて、フレキシブル基板１６の巻取り方向に隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に空間占有部材１を配置してもよい。又、図７に示すように前記配置２の空間占有部材１の配置に加えて、フレキシブル基板１６の巻取り方向に隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に空間占有部材１を配置してもよい。

[0072] 空間占有部材１をフレキシブル基板１６の巻取り方向に追加することにより、有機ＥＬ素子３がロールの内面側の隣り合う有機ＥＬ素子３、３の間に落ち込むことがより確実に抑えられることにより、有機ＥＬ素子３に歪みが生じ難くなり、ロール内面側の封止済み有機ＥＬ素子２の辺や角による押圧も発生し難くなる。又、有機ＥＬ素子３と封止部材１５とを接着する接着剤層１４の厚さや分布の不均一化も生じ難くなる。

よって、有機ＥＬ素子３に圧力が加わることによる損傷もより生じ難くなり、又、封止性能が維持されて水分もより浸入し難くなる。水分が有機ＥＬ素子３に浸入する結果発生するダークスポットやシュリンク（収縮）も減少して、有機ＥＬパネル３１の性能がより維持される。

[0073] なお、空間占有部材１は、フレキシブル基板１６の巻取り方向に略直交す

る幅方向に連続して形成してもよい。

[0074] (材料)

空間占有部材 1 を形成する材料に制限はないが、フレキシブル基板 16 の上、又は、封止部材 15 の支持体となるマザー基板 21 (図 10 参照) 上に形成可能であり、巻き取った有機 EL パネル 31 の径方向の間隔を保持して、フレキシブル基板 16 の屈曲を抑えるだけの強度を有する材料からなることが好ましい。

空間占有部材 1 を形成する材料の例としては、有機 EL 素子 3 を封止する封止部材 15 と同じ材料が挙げられる。空間占有部材 1 の材料を封止部材 15 と同じ材料とすることにより、別途材料を用意する必要がなくなる。又、封止済み有機 EL 素子 2 (封止部材 15) と空間占有部材 1 との剛性に大きな差が生じ難くなることにより、均一に有機 EL パネル 31 (基板 16) を巻き取ることが可能となる。これにより、ロール状に巻き取った有機 EL パネル 31 の巻きが崩れ難くなる。

[0075] 又、空間占有部材 1 に接着剤層 18 を形成することにより、空間占有部材 1 の厚さ (高さ) や大きさ、その他形状を適切に調節することが可能となる。空間占有部材 1 の形成も、接着剤層 18 により基板 16 上に貼合するだけで済むなどコスト削減にもなる。

接着剤層 18 は、前記した接着剤層 14 と同じ材料及び厚さ (高さ) とすることにより、接着剤層 18 が形成された空間占有部材 1 と、接着剤層 14 付きの封止部材 15 と、を同一材料とすることが可能となる。よって、接着剤層 18 は、前記した接着剤層 14 と同じ材料及び厚さ (高さ) とすることが、作業性向上、コスト低減の観点から好ましい。

[0076] (断面形状)

空間占有部材 1 の断面形状は、特に制限はない。空間占有部材 1 を形成する材料が封止部材 15 と同じ材料である場合は、製造コスト低減を考慮して、封止部材 15 と同じであることが好ましい。

有機 EL パネル 31 (基板 16) を巻き取った際に、空間占有部材 1 が剥

離し難くなるように、空間占有部材 1 の角を丸くしてもよい。又、空間占有部材 1 の角による有機 E L 素子 3 に対する押圧を軽減するために、空間占有部材 1 の上面の角を丸くしてもよい。

[0077] (厚さ)

空間占有部材 1 の厚さ T (高さ) に制限はない。空間占有部材 1 の厚さ T が有機 E L 素子 3 の厚さ T 1 及び有機 E L 素子 3 上の封止部材 1 5 の厚さ T 2 の合計未満であっても、空間占有部材 1 の存在により剛性が均一化して、有機 E L パネル 3 1 (基板 1 6) をロール状に巻き取る際に基板 1 6 が隣り合う有機 E L 素子 3、3 の間で屈曲することを緩和できる。又、有機 E L 素子 3 がロール内面側の隣り合う有機 E L 素子 3、3 の間に若干落ち込んでも、空間占有部材 1 が厚さ T (高さ) を有して支えることにより、有機 E L 素子 3 への押圧を緩和することが可能である。

更に、空間占有部材 1 の厚さ T (高さ) は、図 2 (b) に示すように、有機 E L 素子 3 の厚さ T 1 及び有機 E L 素子 3 上の封止部材 1 5 の厚さ T 2 の合計以上 1 5 0 % 以下であることが好ましい。空間占有部材 1 の厚さ T が有機 E L 素子 3 の厚さ T 1 及び有機 E L 素子 3 上の封止部材 1 5 の厚さ T 2 の合計以上であることにより、空間占有部材 1 の上面の高さを封止済み有機 E L 素子 2 の上面の高さ以上にすることができる。これにより、ロール内面側の隣り合う有機 E L 素子 3、3 の間への落ち込みを防止し、有機 E L 素子 3 への押圧を緩和することが可能となる。空間占有部材 1 の厚さ T が 1 5 0 % 以下であることにより、空間占有部材 1 が凸部となって有機 E L 素子 3 を押圧することを防止できる。

[0078] (幅)

空間占有部材 1 をフレキシブル基板 1 6 の巻取り方向に略直交する幅方向に形成した場合における空間占有部材 1 の幅 W 2 (巻取り方向における長さ) (図 5 参照) は、製品収率を考慮すると有機 E L 素子 3 の巻取り方向長の 1 0 % 以上 5 0 % 以下が好ましい。また、空間占有部材 1 の幅 W 2 が 1 0 % 以上であれば、巻き取った有機 E L パネル 3 1 に存在する封止済み有機 E L

素子 2 の辺や角等による押圧を減少させる効果がより発揮される。

[0079] 空間占有部材 1 をフレキシブル基板 16 の巻取り方向に形成した場合における空間占有部材 1 の幅 W_1 (巻取り方向に略直交する方向における長さ) (図 5 参照) に制限はないが、ロール状に巻き取られた有機 EL パネル 31 (封止済み有機 EL 素子 2) の径方向の間隔を保持出来る程度の幅を有することが好ましい。又は、空間占有部材 1 の幅 W_1 は、剛性を均一化する程度の幅を有することが好ましい。

[0080] (間隔)

フレキシブル基板 16 上の空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 とのフレキシブル基板 16 の巻取り方向における間隔はできる限り小さいほうが好ましく、例えば、5 mm 以上とすることが可能である。

空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間隔が 5 mm 以上であれば、後工程での有機 EL パネル 31 の切り出しが容易となる。

[0081] 空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間隔が 10 mm 以下であれば、有機 EL パネル 31 (基板 16) をロール状に巻き取った際に有機 EL 素子 3 がロール状基板 16 の内面側の空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間に落ち込み難くなるため有機 EL 素子 3 に歪みが生じ難くなると共に、ロール内面側の封止済み有機 EL 素子 2 や空間占有部材 1 の角による押圧が発生し難くなるため好ましい。

[0082] フレキシブル基板 16 上の空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 とのフレキシブル基板 16 の巻取り方向に略直交する幅方向における間隔はできる限り小さいほうが好ましく、例えば、5 mm 以上とすることが可能である。

空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間隔が 5 mm 以上であれば、後工程での有機 EL パネル 31 の切り出しが容易となる。

[0083] 空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間隔が 10 mm 以下であれば、有機 EL パネル 31 をロール状に巻き取った際に有機 EL 素子 3 がロールの内面側の空間占有部材 1 と有機 EL 素子 3 との間に落ち込み難くなるため有機 EL 素子 3 に歪みが生じ難くなると共に、ロール内面側の封止済み有機 EL 素

子 2 や空間占有部材 1 の角による押圧が発生し難くなるため好ましい。

[0084] [有機 E L 素子の配置]

有機 E L 素子 3 の配置に制限はないが、有機 E L パネル 3 1 の切り出し等を考慮して規則的に配置されていることが好ましい。

なお、空間占有部材 1 を使用せずに、後記する有機 E L 素子 3 の配置により、有機 E L パネル 3 1（有機 E L 素子 3）の損傷を引き起こすことも可能である。

[0085] 図 8 は、本発明に係る有機 E L パネル 3 1 の製造方法の変形例における有機 E L 素子の配置状態を示す。図 9 は、本発明に係る有機 E L パネル 3 1 の製造方法の別の変形例における有機 E L 素子の配置状態を示す。

[0086] この場合、有機エレクトロルミネッセンス素子 3 は、フレキシブル基板 1 6 の巻取り方向に略直交する幅方向の任意の軸上に少なくとも 1 つ存在するように形成する。有機 E L 素子 3 がフレキシブル基板 1 6 の幅方向の任意の軸上に少なくとも 1 つ存在することにより、有機 E L パネル 3 1（基板 1 6）をロール状に巻き取る際に、封止済み有機 E L 素子 2 自身により周方向における剛性がより均一化されることによって巻き取ったフレキシブル基板 1 6 の急激な屈曲が抑えられる。

この結果、封止層 4 とその下の有機 E L 素子 3 との剛性の違いによる封止部材 1 5 の剥離が防止される。これにより、封止部材 1 5 が剥離して水分が有機 E L 素子 3 に浸入してダークスポットやシュリンク（収縮）が発生して有機 E L パネル 3 1 の性能が低下することなく、有機 E L パネル 3 1 の性能を維持することが可能となる。

[0087] より具体的には、有機エレクトロルミネッセンス素子 3 は、図 8 に示すように、フレキシブル基板 1 6 上に千鳥状に配置するのが好ましい。有機 E L 素子 3 が基板 1 6 上に千鳥状に配置されることにより、基板 1 6 の幅方向の任意の軸上に複数存在することになり、有機 E L パネル 3 1（基板 1 6）をロール状に巻き取る際に、複数の場所での基板 1 6 の急激な屈曲が抑えられる。

これにより、ロール状に巻き取られた有機ＥＬパネル３１の巻き崩れがより防止されると共に、封止層４とその下の有機ＥＬ素子３との剛性の違いによる封止部材１５の剥離がより防止される。この結果、封止部材１５が剥離して水分が有機ＥＬ素子３に浸入してダークスポットやシュリンク（収縮）が発生して有機ＥＬパネル３１の性能が低下することなく、有機ＥＬパネル３１の性能を維持することが可能となる。

[0088] 又、有機エレクトロルミネッセンス素子３は、図９に示すように、フレキシブル基板１６の巻取り方向に対して０度を超えて９０度未満、又は、９０度を超えて１８０度未満の角度を有して配置するのが好ましい。有機ＥＬ素子３を基板１６上にこの様に配置することにより、基板１６の幅方向の任意の軸上に有機ＥＬ素子３が複数存在することになり、有機ＥＬパネル３１（基板１６）をロール状に巻き取る際に、複数の場所での基板１６の急激な屈曲が抑えられる。

これにより、ロール状に巻き取られた有機ＥＬパネル３１の巻き崩れがより防止されると共に、封止層４とその下の有機ＥＬ素子３との剛性の違いによる封止部材１５の剥離がより防止される。この結果、封止部材１５が剥離して水分が有機ＥＬ素子３に浸入してダークスポットやシュリンク（収縮）が発生して有機ＥＬパネル３１の性能が低下することなく、有機ＥＬパネル３１の性能を維持することが可能となる。

[0089] 更に、これら有機ＥＬ素子３の配置と空間占有部材１を組み合わせ、有機ＥＬパネル３１（有機ＥＬ素子３）の損傷を起き難くすることも可能である。

[0090] <有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法>

（貼合工程）

貼合工程Ｓ１０６（図１１参照）は、フレキシブル基板１６上の有機ＥＬ素子３に封止部材１５を接着剤層１４により貼合して有機ＥＬ素子３を封止すると共に、基板１６上の有機ＥＬ素子３が形成される空間以外の空間の所定の位置に空間占有部材１を接着剤層１８により貼合して空間占有部材１の

形成を行う工程である。

[0091] 例えば、図 10 に示すように、同一速度で搬送されている有機 EL 素子 3 が形成されたフレキシブル基板 16、及び、封止部材 15 並びに空間占有部材 1 が配置されたマザー基板 21 を、支持ロール 52 を介して、上下に貼合ロール 55 を有する貼合部 54 により圧着してフレキシブル基板 16 上の有機 EL 素子 3 に接着剤層 14 を介して封止部材 15 を貼合し、フレキシブル基板 16 に接着剤層 18 を介して空間占有部材 1 を貼合したのち、マザー基板 21 を剥離して巻取りロール 56 に巻き取って回収することで、有機 EL 素子 3 の封止と空間占有部材 1 の形成を同時に行うことができる。この際、マザー基板 21 には剥離性接着剤層が形成されており、この剥離性接着剤層上における基板 16 上の有機 EL 素子 3 に対応する位置に封止部材 15 が配置されると共に、基板 16 上の有機 EL 素子 3 が形成される空間以外の空間に対応する位置に空間占有部材 1 が配置されている。なお、マザー基板 21 は繰出しロール 51 から送り出される。

[0092] 図 10 においては、有機 EL 素子 3 が形成されたフレキシブル基板 16（以下、有機 EL 素子基板 17 と称する）、及び、封止部材 15 並びに空間占有部材 1 が配置されたマザー基板 21 であって、それぞれロール状に巻き取られたものを便宜上図示している。しかし、有機 EL 素子 3 等を予め形成してロール状に巻き取った有機 EL 素子基板 17 を使用することなく、有機 EL 素子 3 の形成等他の工程と連続して貼合することは、当然可能であり、本発明の効果をj得る上で、フレキシブル基板 16 の準備、有機 EL 素子 3 の形成から有機 EL 素子 3 の封止まで連続して行うことがより好ましい。

[0093] なお、空間占有部材 1 の貼合は、封止部材 15 の貼合と同時に限定されるものではなく、封止部材 15 の貼合の前、又は、後に行われてもよい。空間占有部材 1 の貼合は、一括貼合に限定されるものではなく、個別に行われてもよい。空間占有部材 1、及び、封止部材 15 の貼合方法は、マザー基板 21 を使用する方法に限定されるものではない。

[0094] 以下、本発明に係る有機 EL パネル 31 の製造方法の他の工程を説明する

。

図 1 1 は、本発明に係る有機 E L パネル 3 1 の製造方法のフローチャートである。

[0095] 本発明に係る有機 E L パネル 3 1 の製造方法は、図 1 1 に示すように、発光層形成工程 S 1 1 4、空間占有部材作製工程 S 1 0 4、貼合工程 S 1 0 6等を有している。ロールツーロールの製造工程において、繰出しロール 5 3 からフレキシブル基板 1 6 を送り出して、発光層形成工程 S 1 1 4 等において有機 E L 素子 3 を形成した後に貼合工程 S 1 0 6 にて封止層 4 を形成すると共に、空間占有部材 1 を貼合して、封止済み有機 E L 素子 2 及び空間占有部材 1 を有するフレキシブル基板 1 6 をロール状に巻き取るものである。

以下、図 1 1 に示す、基板準備工程 S 1 1 1 から第 2 電極形成工程 S 1 1 6 について、具体的に説明する。

[0096] (基板準備工程)

例えば、基板準備工程 S 1 1 1 では、ロール状に巻かれたフレキシブル基板 1 6 は、洗浄部に繰り出されて、超音波洗浄槽に浸して超音波洗浄を行った後、リンス槽で純水により洗浄液のリンス、シャワーヘッドですすぎを行い、乾燥部で乾燥される。

[0097] その後、バッファ部により後工程との搬送速度が調整され、予備室 a、予備室 b を通って、プラズマ槽に搬送される（いずれも不図示）。各予備室入り口、予備室間、予備室とプラズマ槽間にはフレキシブル基板 1 6（フィルム）を通過させるゲートバルブが備えられている。ゲートバルブはフレキシブル基板 1 6 表面、特に有機 E L 素子 3 形成側となる表面が無接触で丁度通り抜けるだけのオリフィス（バルブを形成しており、間隙を調製できるようになっていることが好ましい）を備えており、これにより、フレキシブル基板 1 6 は、減圧予備室、さらにもう 1 つの減圧予備室と、差動排気によってそれぞれ減圧度が調整されプラズマ槽に搬入される。

[0098] 各減圧予備室およびプラズマ槽は、それぞれ備えられた真空ポンプ（不図示）によって差動排気されており、プラズマ槽までに大気圧環境下から、プ

ラズマ槽で必要とされる真空環境下になるよう調整される。

[0099] プラズマ槽において基板 1 6 は、例えば、 1×10^{-4} Pa の真空環境下で酸素プラズマによる洗浄が行われる。

[0100] 洗浄が行われた後、次にフレキシブル基板 1 6 は第 1 電極形成工程 S 1 1 2 に搬送される。

[0101] (第 1 電極形成工程)

第 1 電極形成工程 S 1 1 2 では、例えば、マスクパターン成膜法で、取り出し電極部を有する第 1 電極 1 1 (陽極) が形成される。マスクパターン成膜法とは、例えば、第 1 電極 1 1 (陽極) の材料として ITO をスパッタリング法でフレキシブル基板 1 6 の上に成膜する際、予め必要とする形状のマスクを使用し成膜する方法を言う。

[0102] (正孔輸送層形成工程)

次に、正孔輸送層形成工程 S 1 1 3 では、取り出し電極となる部分を除き、第 1 電極 1 1 (陽極) の全面に有機化合物である正孔輸送層が積層される。

[0103] フレキシブル基板 1 6 の準備から正孔輸送層の形成まで、真空環境下で連続して行うことが好ましい。連続して行うとは、次の段階に移る時も真空環境下に置かれていることを指す。正孔輸送層の形成後の発光層を形成する工程は、真空環境下でなくても構わない。正孔輸送層の形成まで真空環境下で連続して行うことで、第 1 電極 1 1 (陽極) の上に異物の付着を防止することが可能となっている。

[0104] そして、上記形成した正孔輸送層上に、後記するように、発光層、電子輸送層、電子注入層、及び、第 2 電極 1 3 (陰極) を形成して有機 EL 素子 3 が作製される。

[0105] (発光層形成工程)

発光層形成工程 S 1 1 4 では、正孔輸送層までが形成されたフレキシブル基板 1 6 の取り出し電極部を除いた正孔輸送層上に発光層形成塗布液が塗布され、乾燥部を経て発光層が形成される。

[0106] 使用可能な湿式塗布機としては、例えば、ダイコート方式、スクリーン印刷方式、フレキシ印刷方式、インクジェット方式、ワイヤーバー方式、キャップコート法、スプレー塗布法、キャスト法、ロールコート法、バーコート法、グラビアコート法等の塗布機の使用が可能である。これらの湿式塗布機の使用は発光層の材料に応じて適宜選択することが可能となっている。有機ELパネル31がフルカラー方式の場合は、パターン化されて形成されている第1電極11（陽極）のパターンに合わせて第1電極11（陽極）上に発光層をパターン塗布するため、例えば、インクジェット方式、フレキシ印刷方式、オフセット印刷方式、グラビア印刷方式、スクリーン印刷方式、マスクを用いたスプレー塗布方式等に使用する各種塗布装置を使用することが可能である。

[0107] （電子注入層形成工程）

電子注入層形成工程S115では、繰出し部から連続的に供給されてくるフレキシブル基板16に既に形成されている発光層上に電子注入層をマスクパターン成膜する。電子注入層の厚さは、0.1nm～5μmの範囲が好ましい。

[0108] （第2電極形成工程）

第2電極形成工程S116では、電子注入層形成工程S115から連続的に供給されてくるフレキシブル基板16に取り出し電極を有する第2電極13（陰極）を、既に形成されている電子注入層上にマスクパターン成膜する。第2電極13（陰極）としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10nm～5μm、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。この段階で、基板／第1電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／電子注入層／第2電極（陰極）の構成を有する有機EL素子3が作製される。

[0109] 第2電極（陰極）形成工程S116、電子注入層（陰極バッファ層）形成工程S115の上記説明では蒸着装置の場合を示したが、第2電極13（陰極）及び陰極バッファ層（電子注入層）の形成方法については、特に限定はなく、例えば、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エ

ピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法などを用いることが出来る。

[0110] 次に、図11に示す、封止部材の素材作製工程S101から配置工程S105について説明する。

[0111] (封止部材の素材作製工程)

封止部材の素材作製工程S101は、有機EL素子3を封止する封止部材15の素材を作製する工程であると共に、ここでは、空間占有部材1の素材を作製する工程でもある。

[0112] 封止部材15は、ここでは、外部環境から水分や酸素等を遮断し保護する封止基板とバリア層とを接合したものである。例えば、長尺の基板上にシート状接着剤を載置した後、バリア層として金属薄膜を重ねてドライラミネート法により貼合する事により得られる。その他にも、液状接着剤を用いたウェットラミネート法により得られる。

[0113] (接着剤層形成工程)

接着剤層形成工程S102は、封止部材15の素材上に、有機EL素子3と接着する接着剤層14を形成する工程である。例えば、ドライラミネート法により熱硬化型のシート状接着剤を貼合する方法が挙げられる。その他にも、液状接着剤を用いたウェットラミネート法により得られる。

[0114] (封止部材作製工程)

封止部材作製工程S103は、接着剤層14まで形成した封止部材15の素材を所定の大きさに裁断して有機EL素子3を封止する接着剤層14付きの封止部材15を作製する工程である。

封止部材15の大きさは、フレキシブル基板16上に形成された有機EL素子3の発光領域並びに外部出力端子の形成部分を除いた第1電極11及び第2電極13の一部を含む大きさであることが好ましい。

[0115] 封止部材15の素材を所定の大きさに裁断する方法に特に制限はなく、例えば、中空刃方式とパンチダイ方式などを用いることができる。中空刃方式

とは上方からの刃で打ち抜く刃のことであり、打ち抜く際の刃先角度が30°前後であるものである。パンチダイ方式とは、上下刃が対になった金型を用い、その上下刃の角度が90°前後であるものである。刃物の耐久性からパンチダイ方式が好ましい。

[0116] (空間占有部材作製工程)

空間占有部材1の材料に制限はなく、空間占有部材1を封止部材15と同じ材料とする場合、空間占有部材作製工程S104は、封止部材の素材作製工程S101で作成された封止部材15の素材を所定の大きさに裁断して接着剤層18付きの空間占有部材1を作製する工程である。封止部材15の素材を裁断する方法に特に制限はなく、封止部材作製工程S103と同様の手段を採用することができる。

[0117] (配置工程)

配置工程S105は、マザー基板21の剥離性接着剤層上における基板16上の有機EL素子3が形成される空間以外の空間に対応する所定の位置に空間占有部材1を配置し、フレキシブル基板16上の有機EL素子3に対応する位置に封止部材15を配置する工程である。

封止部材15及び空間占有部材1の配置は、例えば、吸着パッドを備えたロボット等により行う。

[0118] 貼合工程S106は、前記したとおりである。

そして、図11に示す、巻取り工程S107、接着剤層硬化工程S108について説明する。

[0119] (巻取り工程)

こうして、封止された有機EL素子3、及び、空間占有部材1が順次形成されたフレキシブル基板16は減圧度の調整のためのゲートバルブを備えた予備室を順次通過して、差動排気により減圧が徐々に解除され、真空環境下から大気圧環境下へと取り出され、巻取り工程S107において、巻取りロール57によりロール状に巻き取られる。この後、巻き取られたロールは、次工程に搬送される。

[0120] 巻取り工程 S 1 0 7 は、貼合工程 S 1 0 6 で有機 E L 素子 3 の封止が行われ、空間占有部材 1 の貼合が行われた基板 1 6（有機 E L パネル 3 1）をロール状に巻き取る工程である。ロール状に巻き取られた有機 E L パネル 3 1 は、接着剤層硬化工程 S 1 0 8 に送られるまで巻き取られた状態で一時的に保管されてもよい。

有機 E L 素子 3 が貼合工程 S 1 0 6 で封止されているため、有機 E L 素子 3 の非接触化を目的とする複雑な張力制御、及び、速度制御は、有機 E L パネル 3 1 の巻き取りの際に不要である。

空間占有部材 1 がフレキシブル基板 1 6 上に配置されることで、有機 E L パネル 3 1 の封止済み有機 E L 素子 2 が形成された部分の剛性とそれ以外の部分（空間占有部材 1 が形成された部分等）の剛性との差が減少する。そして、有機 E L パネル 3 1 の剛性も部分的な変化が減少して、全体として均一化する。よって、有機 E L パネル 3 1（フレキシブル基板 1 6）を均一なロール状に巻き取ることが、巻き取り張力が弱くても可能となる。巻き取られた有機 E L パネル 3 1 は巻きが均一であるため、有機 E L パネル 3 1 同士が擦れ合い損傷することも生じ難い。

[0121]（接着剤層硬化工程）

接着剤層硬化工程 S 1 0 8 では、巻取り工程 S 1 0 7 で巻き取られたロールから、封止部材 1 5 と空間占有部材 1 とが貼合された有機 E L 素子基板 1 7 が送りだされ、接着剤層 1 4 及び接着剤層 1 8 が硬化される。

[0122] 接着剤層 1 4 及び接着剤層 1 8 を構成している材料が光硬化性樹脂である場合には、硬化手段としては、紫外線や電子線である活性エネルギー線を挙げることができる。活性エネルギー線としては、例えば、紫外線や電子線を挙げることができる。活性エネルギー線の線源としては、例えば、紫外線 L E D、紫外線レーザー、水銀アークランプ、キセノンアークランプ、低圧水銀灯、蛍光ランプ、炭素アークランプ、タングステン - ハロゲン複写ランプ及び太陽光等が挙げられる。

[0123] また、接着剤層 1 4 及び接着剤層 1 8 を構成している材料が熱硬化性樹脂

である場合には、硬化手段としては、熱付与手段を用いて所望の温度に加熱することにより硬化させることができ、加熱手段としては、例えば、加熱ファン、面ヒーター、加熱ローラ、加熱ベルト、ハロゲンヒーターや遠赤外線ヒーターなどの輻射熱加熱などが挙げられる。

[0124] (製造工程の分割)

製造工程の分割位置は、有機ＥＬ素子３が封止層４で保護される貼合工程Ｓ１０６より後が好ましい。加えて、封止前の有機ＥＬ素子３は酸素や水分に非常に弱いため、できるだけ早く封止することが好ましい。

一方、有機ＥＬパネル３１の製造において封止層４の接着剤層１４を硬化させる接着剤層硬化工程Ｓ１０８も貼合工程Ｓ１０６の後に連続して行くと、前工程の障害等何らかの理由で製造ラインが停滞した場合に加熱時間が不安定となる。この結果、例えば、接着剤層１４を構成している材料が熱硬化性樹脂である場合には、封止部材１５の加熱時間が不足して封止部材１５の硬化が不十分になる、又は、加熱時間が過剰になることで、有機ＥＬパネル３１の性能低下をまねくことになる。このため、巻取り工程Ｓ１０７と接着剤層硬化工程Ｓ１０８との間で工程を分割することが有機ＥＬパネル３１の性能を確保する上でも好ましい。

[0125] <変形例>

[空間占有部材]

空間占有部材１を形成する材料に制限がないことは説明したとおりであるが、変形例として、空間占有部材１を封止部材１５と異なる樹脂等で作製する場合について説明する。

例えば、空間占有部材１を封止部材１５と異なる樹脂等で作製する場合は、有機ＥＬ素子基板１７上の有機ＥＬ素子３（封止済み有機ＥＬ素子２）と干渉しない位置に樹脂等を添着して空間占有部材１を作製してもよい。

[0126] 具体的には、封止部材１５を支持するマザー基板２１上に液状の樹脂を供給する吐出口を製造ライン上に設けて、有機ＥＬ素子基板１７上の有機ＥＬ素子３と干渉しないマザー基板２１上の位置に液状の樹脂を配置した後、貼

合工程 S 1 0 6 において液状の樹脂をマザー基板 2 1 から有機 E L 素子基板 1 7 上の有機 E L 素子 3 と干渉しないフレキシブル基板 1 6 上の位置に添着する。又は、有機 E L 素子基板 1 7 上に液状の樹脂を供給する吐出口を製造ライン上に設けて、有機 E L 素子基板 1 7 上の有機 E L 素子 3 と干渉しない位置に液状の樹脂を添着する。そして、接着剤層硬化工程 S 1 0 8 において空間占有部材 1 を作製する。

[0127] ここで使用する液状の樹脂は、接着剤層 1 4 を形成する光硬化型あるいは熱硬化型接着剤と同様の硬化条件で硬化する樹脂が好ましい。この様にする事で、接着剤層硬化工程 S 1 0 8 において接着剤層 1 4 の硬化と同時に空間占有部材 1 を作製することができるため、製造工程数を減らして製造コストの削減、及び、製造速度の向上が可能となる。

なお、この変形例では空間占有部材作製工程 S 1 0 4 は、配置工程 S 1 0 5 に含まれることになる。

[0128] [製造方法]

有機 E L パネル 3 1 の製造は、第 2 電極形成工程 S 1 1 6 において第 2 電極を形成した後に大気圧に戻してもよい。減圧下での作業が減少することで製造が容易となり、製造コストの削減、及び、製造速度の向上が可能となる。

[0129] 前記したように、本発明に係る有機 E L パネルの製造方法によれば、フレキシブル基板上の複数の有機 E L 素子の各々に封止部材を貼合した後に巻取りを行う際に有機 E L パネルの性能低下を抑制することができる。

[0130] 以下に、これら本発明の効果を確認した実施例について説明する。なお、本発明はこの実施例に限定されるものではない。

実施例

[0131] <実施例 1>

以下に示す方法で、第 1 電極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、第 2 電極をフレキシブル基板上にこの順で作成した有機 E L 素子基板を、封止部材で封止すると共に、空間占有部材を形成した有機 E L パネルを作製して巻き

取った。

[0132] [有機EL素子の作製]

(フレキシブル基板の作製)

フレキシブル基板として、厚さ $100\mu\text{m}$ のポリエチレンテレフタレートフィルム（帝人デュポンフィルム株式会社製、以下適宜PETと略する）の第1電極を形成する側の全面に、特開2004-68143号に記載の構成からなる大気圧プラズマ放電処理装置を用いて連続して、 SiO_x からなり厚さが 500nm となるように無機ガスバリア膜を形成した。これにより、酸素透過度が $0.001\text{ml}/\text{m}^2/\text{day}$ 以下であり、水蒸気透過度が $0.001\text{ml}/\text{m}^2/\text{day}$ 以下であるガスバリア性帯状フレキシブル基板を作製した。

[0133] (第1電極の形成)

スパッタリング法により $5\times 10^{-1}\text{Pa}$ の真空条件下でガスバリア性帯状フレキシブル基板上に素子領域が幅約 $30\text{mm}\times$ 長さ 60mm であり、厚さが 120nm であるITO（インジウムチンオキシド）からなる第1電極を4列の一定間隔で連続的に形成した。

[0134] (正孔輸送層の形成)

蒸着法（気相堆積法）により $5\times 10^{-4}\text{Pa}$ の真空条件下で正孔輸送層形成材料として、N, N'-ジフェニル-N, N'-m-トリル-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニルを第1電極11上に堆積して厚さ 30nm の正孔輸送層を形成した。

[0135] 次いで、上記形成した正孔輸送層上に、以下に示す条件に従って、発光層、電子注入層、第2電極13を積層して有機EL素子基板17を作製し、ロール状に巻き取った。

[0136] (発光層の形成)

発光層形成用塗布液を、エクストルージョン塗布機を使用した湿式塗布方式により乾燥後の厚さが 100nm となる様に塗布した。発光層を形成した後、室温と同じ温度になるまで冷却した。搬送速度は、 $2\text{m}/\text{min}$ とした

。

発光層形成用塗布液の表面張力は、 $32 \times 10^{-3} \text{ N/m}$ であった。発光層形成用塗布液の表面張力は、協和界面化学社製表面張力計CBVP-A3で測定した。

[0137] ホスト材としてカルバゾール誘導体(CBP)、ドーパント材Ir(pppy)₃を共蒸着法で、厚さ40nmを積層した。

[0138] 発光層のガラス転移温度は225℃であった。ガラス転移温度(T_g)は、JIS K 7121に従いセイコーインスツルメンツ(株)製DSC-6220を使用して示差走査熱量測定法(DSC)により測定した。

なお、本実施例においては緑色の発光を有する材料を使用した。更に青色、赤色及びドーパント材を使用して堆積させることで、白色の有機EL素子を作成することが可能である。

[0139] (電子注入層の形成)

蒸着法(気相堆積法)により $5 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の真空条件下で電子注入層形成材料としてLiFを発光層上に堆積して厚さ0.5nmの電子注入層(LiF層)を形成した。層の厚さは、製膜段差部分をBRUKER社製触針式表面形状測定器dektak XTで測定した。

[0140] (第2電極層の形成)

蒸着法(気相堆積法)により $5 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の真空条件下で第2電極形成材料としてアルミニウムを使用して、取り出し電極を有するようにマスクパターン成膜にて電子注入層上に堆積して厚さ100nmの第2電極層を形成した。

以上により、有機EL素子を作製した。

[0141] (封止部材の素材の作製)

封止部材の素材(封止基板)として、厚さ100μmのポリエチレンテレフタレートフィルム(帝人デュポンフィルム株式会社製)と、バリア層として、厚さ7.0μmの導電性材料のアルミ箔と、をポリエステル系接着剤を使用したドライラミネート法により接合することで、2層構成であるシート

状の封止部材の素材を作製して、長尺のロール状とした。接合後の封止部材の素材（封止基板）の厚さは $110\mu\text{m}$ とした。

[0142] 作製した封止部材の素材の水蒸気透過度は $0.01\text{g}/\text{m}^2/\text{day}$ であり、酸素透過度は $0.1\text{ml}/\text{m}^2/\text{day}\cdot\text{MPa}$ であった。水蒸気透過度はJIS K 7129B法（1992年）に準拠したMOC ON法により、酸素透過度はJIS K 7126B法（1987年）に準拠したMOC ON法により、それぞれ測定した。

[0143] （接着剤層の形成）

作製した封止部材の素材に、熱硬化型のシート状接着剤（株式会社スリーボンド製1600シリーズ）をドライラミネート法で貼合し、厚さ $20\mu\text{m}$ の接着剤層を形成した。

[0144] （有機EL素子と封止部材との貼合）

作製した封止接着剤層付きの封止部材の素材を、封止部材用として幅約 $30\text{mm}\times$ （巻取り方向の）長さ約 60mm の大きさに切断加工した。さらに、空間占有部材用として幅約 $5\text{mm}\times$ （巻取り方向の）長さ約 60mm の大きさに切断加工した。切断加工には上記の大きさに加工したトムソン型を使用した。

[0145] 有機EL素子基板と封止部材の貼合部は、一对の貼合ロール間に、有機EL素子基板と封止部材を重ねて貼合する構造である。

有機EL素子基板上の有機EL素子領域に封止部材の接着剤層面が接するように封止部材を置き、同様に図2に示すような配置で空間占有部材を置き、これを貼合部にて押圧 0.2MPa でロール圧着して貼り合わせたあと巻き取ることで、有機ELパネルを作製した。巻取り用のコア径は 75mm 、張力は 19.6N 、作製長は 100m とした。

[0146] ＜実施例2＞

空間占有部材の大きさを幅約 5mm とし、空間占有部材を図4に示すように、基板の巻取り方向に連続するように配置した以外は実施例1と同様とした、有機ELパネルを作製した。

[0147] <実施例 3>

空間占有部材の大きさを幅 $W1 = W2 = \text{約 } 5 \text{ mm}$ 、長さ $L1 = \text{約 } 60 \text{ mm}$ 、 $L2 = \text{約 } 30 \text{ mm}$ とし、空間占有部材を図 5 に示すように、有機 EL 素子の周囲に配置した以外は実施例 1 と同様とした、有機 EL パネルを作製した。

[0148] <比較例>

空間占有部材を配置しない比較用有機 EL パネルも作製した。

[0149] (有機 EL パネルの評価)

封止部材を貼り合わせた後、巻き取った有機 EL パネルのロール（実施例 1 ～ 3、比較例）を有機 EL パネルの製造ラインの加熱部（ 120°C ）に 10 分間搬送通過させて加熱することで接着剤層を硬化させた。この有機 EL パネルの封止部材の接着状態、封止部材の損傷状況を斉藤光学（株）製光学顕微鏡 MK - S30A を使用して倍率 30 倍にて観察した。

[0150] 実施例 1 ～ 3 は、いずれも封止部材の端部はがれ、封止部材部の圧痕が見られず、良好であった。

一方、比較例は、いずれも封止部材の端部の剥がれ、巻き取った時の圧痕が認められる素子があった。

符号の説明

- [0151] 1 空間占有部材
2 封止済み有機 EL 素子
3 有機 EL 素子
4 封止層
11 第 1 電極
12 有機機能層
13 第 2 電極
14 接着剤層
15 封止部材
16 フレキシブル基板

1 7 有機ＥＬ素子基板

1 8 接着剤層

2 1 マザー基板

3 1 有機ＥＬパネル

3 2 有機ＥＬパネル

5 1 繰出しロール

5 2 支持ロール

5 3 繰出しロール

5 4 貼合部

5 5 貼合ロール

5 6 巻取りロール

5 7 巻取りロール

R 重複部分

T 厚さ

T 1 厚さ

T 2 厚さ

請求の範囲

[請求項1]

ロールツーロール方式により、

長尺のフレキシブル基板上に少なくとも第1電極、発光層を含む有機機能層、及び、第2電極を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を複数形成した有機エレクトロルミネッセンス素子基板における複数の前記有機エレクトロルミネッセンス素子の各々に封止部材を貼合した後、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板を巻き取る有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法であって、

前記フレキシブル基板上に、前記有機エレクトロルミネッセンス素子が形成される空間以外の空間の少なくとも一部を占める空間占有部材を配置した後、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板を巻き取る

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法

。

[請求項2]

前記空間占有部材は、巻取り方向に隣設した2つ以上の前記有機エレクトロルミネッセンス素子と巻取り方向の位置が少なくとも部分的に重複する様に配置される部材を含む

ことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項3]

前記空間占有部材は、巻取り方向に連続して配置される部材を含む

ことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項4]

前記空間占有部材の平面形状が四角形であって、その角が丸いことを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項5]

前記空間占有部材は、材料及び断面形状が前記封止部材と同じである

ことを特徴とする請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項6] 前記空間占有部材は前記有機エレクトロルミネッセンス素子の厚さ、及び、前記封止部材の厚さの合計以上の厚さである

ことを特徴とする請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項7] 前記フレキシブル基板上の前記有機エレクトロルミネッセンス素子への前記封止部材の貼合、及び、前記フレキシブル基板上への前記空間占有部材の配置を同時に行った後、巻き取る

ことを特徴とする請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[請求項8] 前記空間占有部材、及び、前記封止部材を、その支持体となるマザー基板上に配置し、

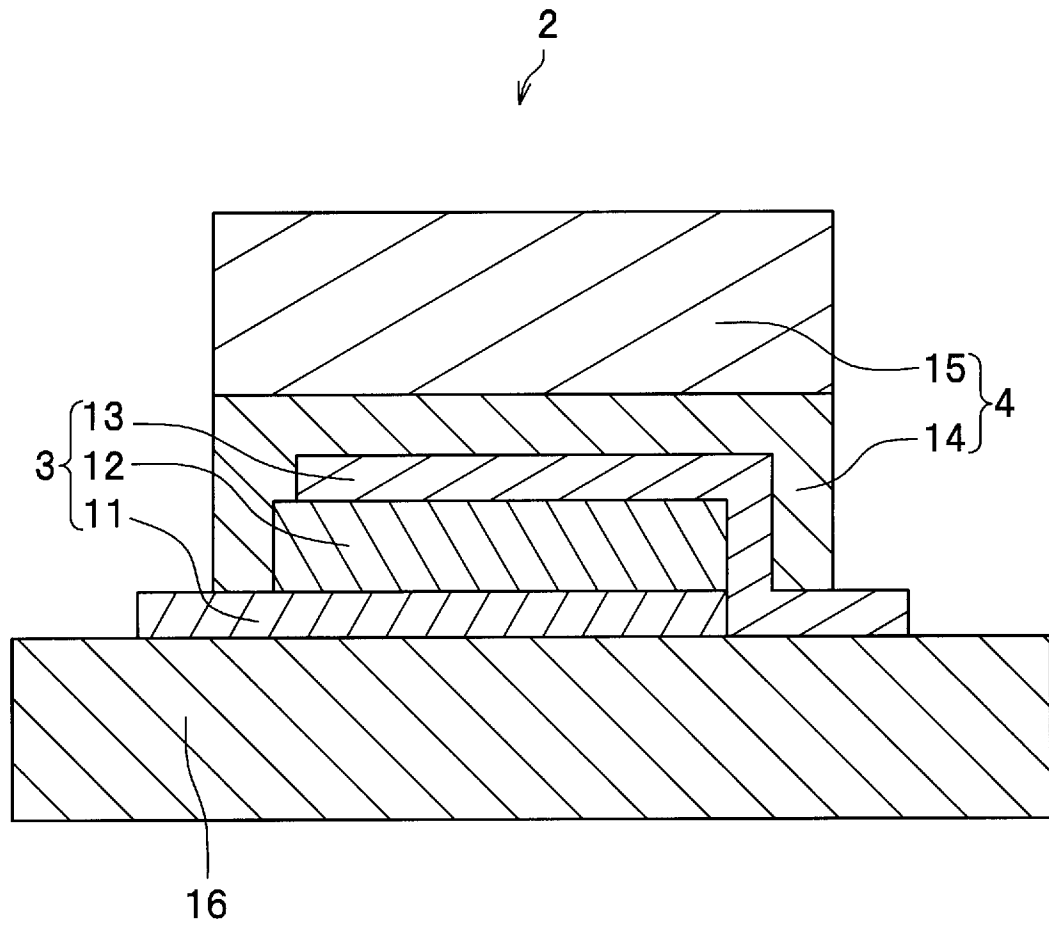
前記マザー基板上の前記空間占有部材、及び、前記封止部材を、前記有機エレクトロルミネッセンス素子基板に転写することにより、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子の前記封止部材による封止と、

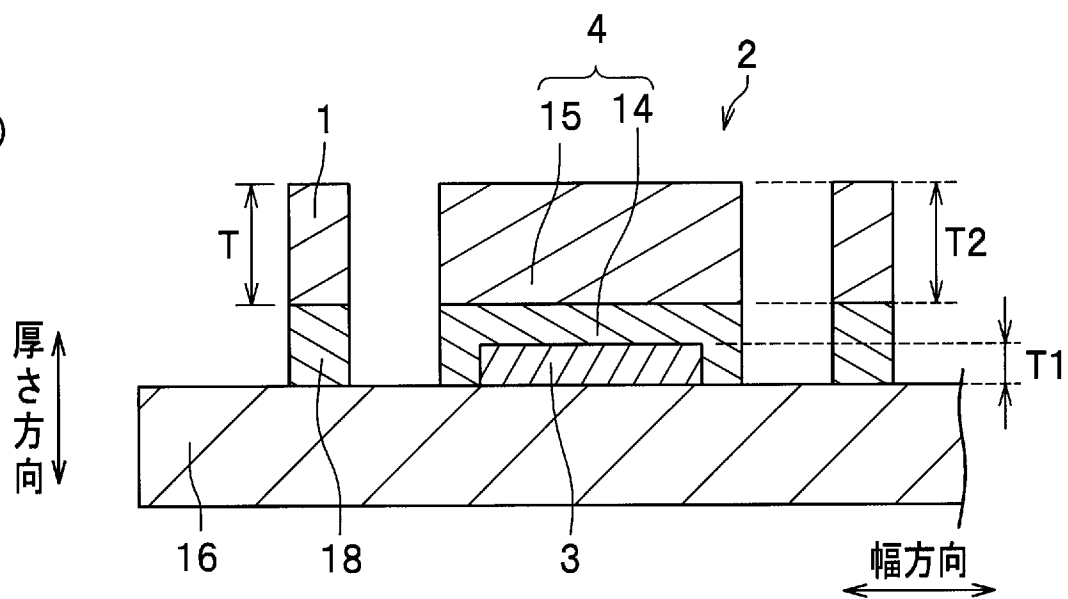
前記フレキシブル基板上への前記空間占有部材の配置と、を同時に行った後、巻き取る

ことを特徴とする請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンスパネルの製造方法。

[図1]

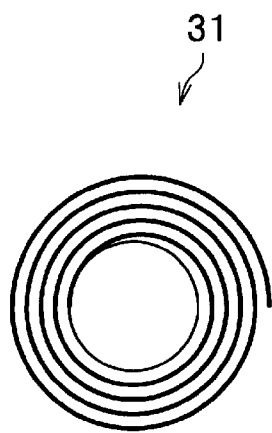


(a)

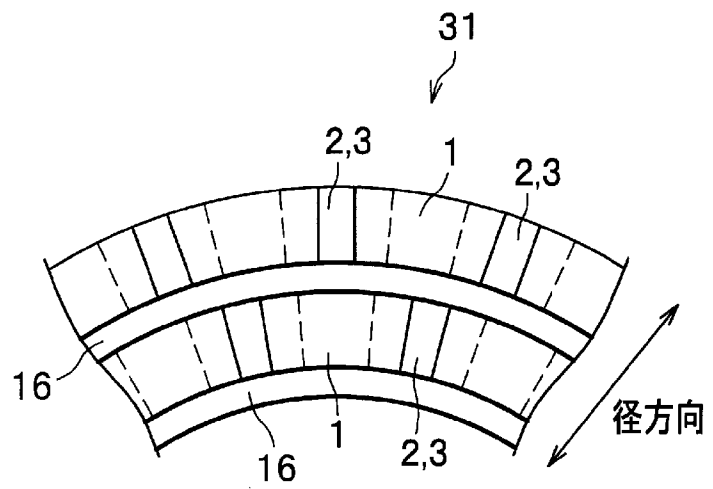


[図3]

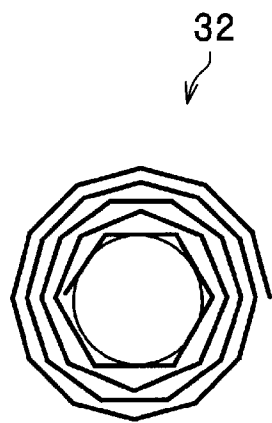
(a)



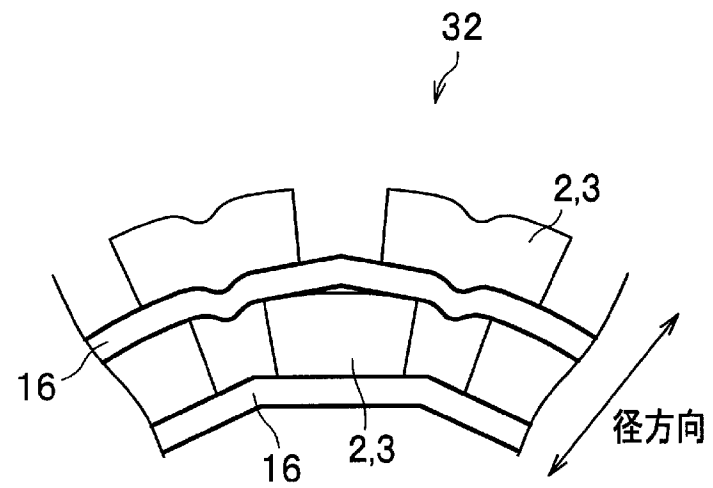
(b)



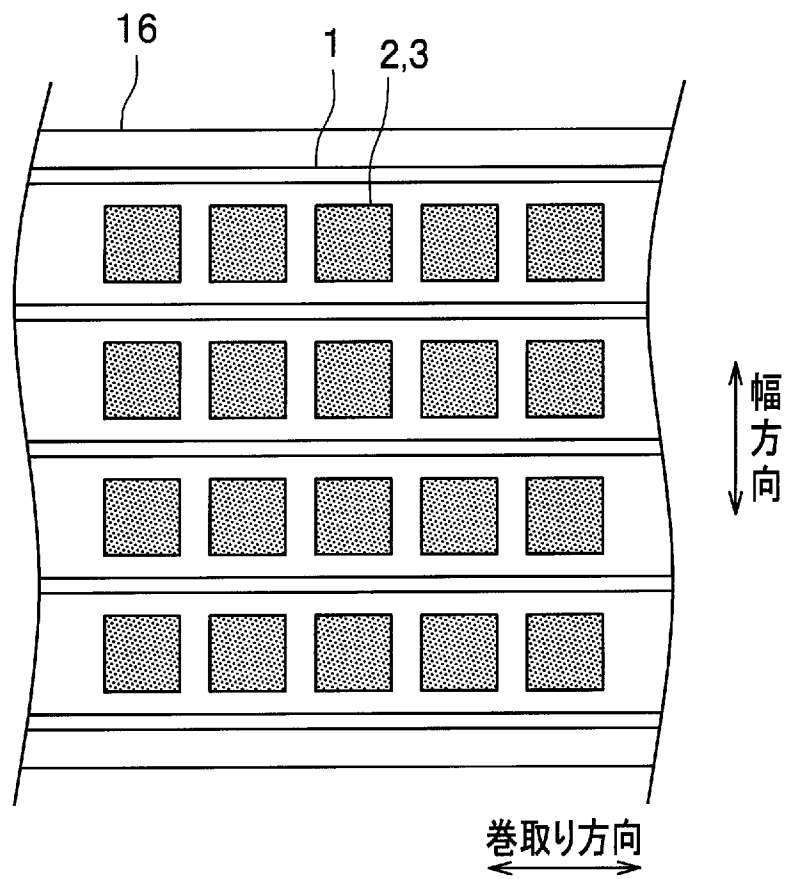
(c)



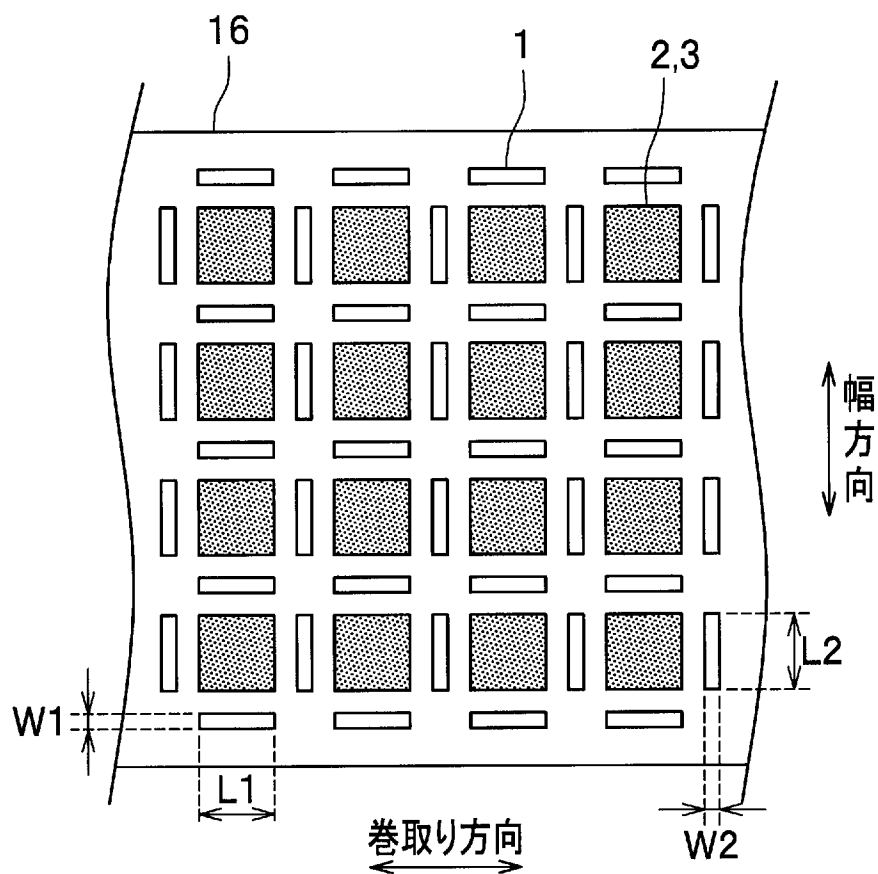
(d)



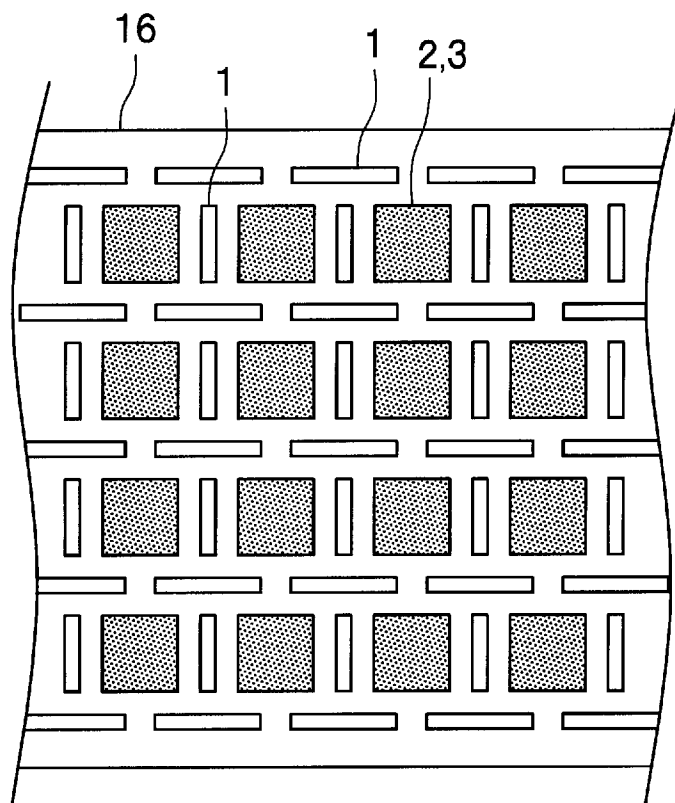
[図4]



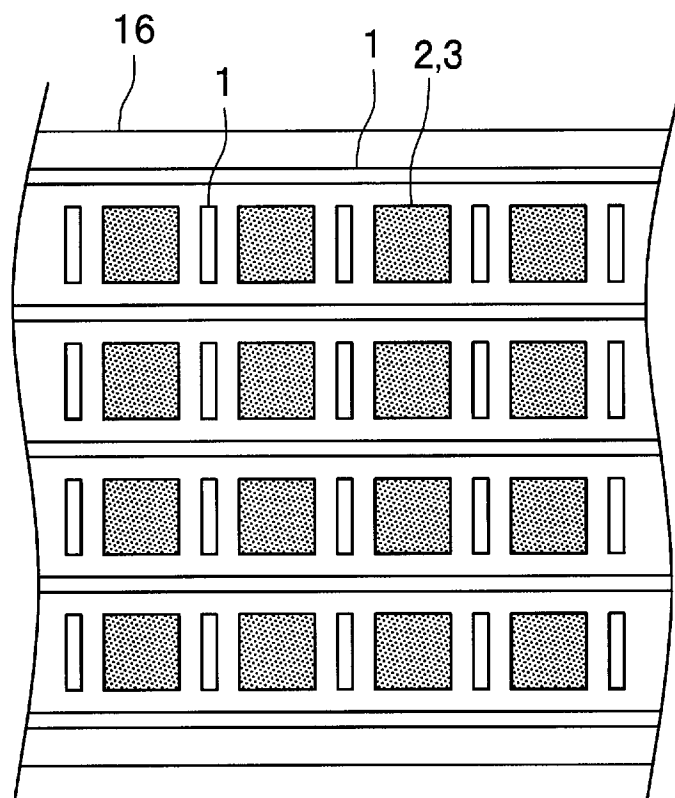
[図5]



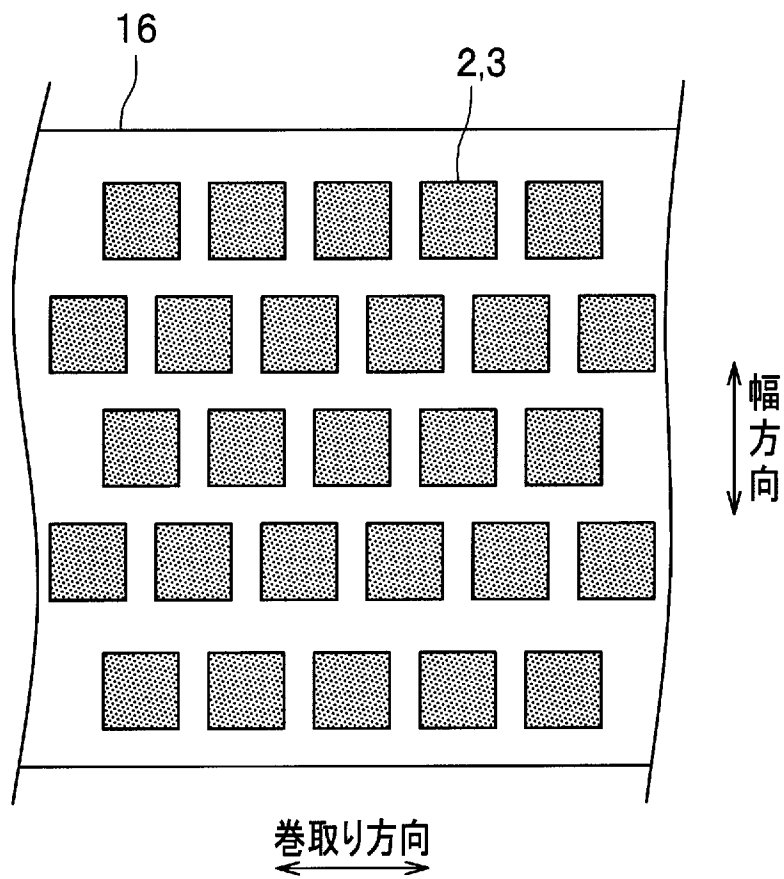
[図6]



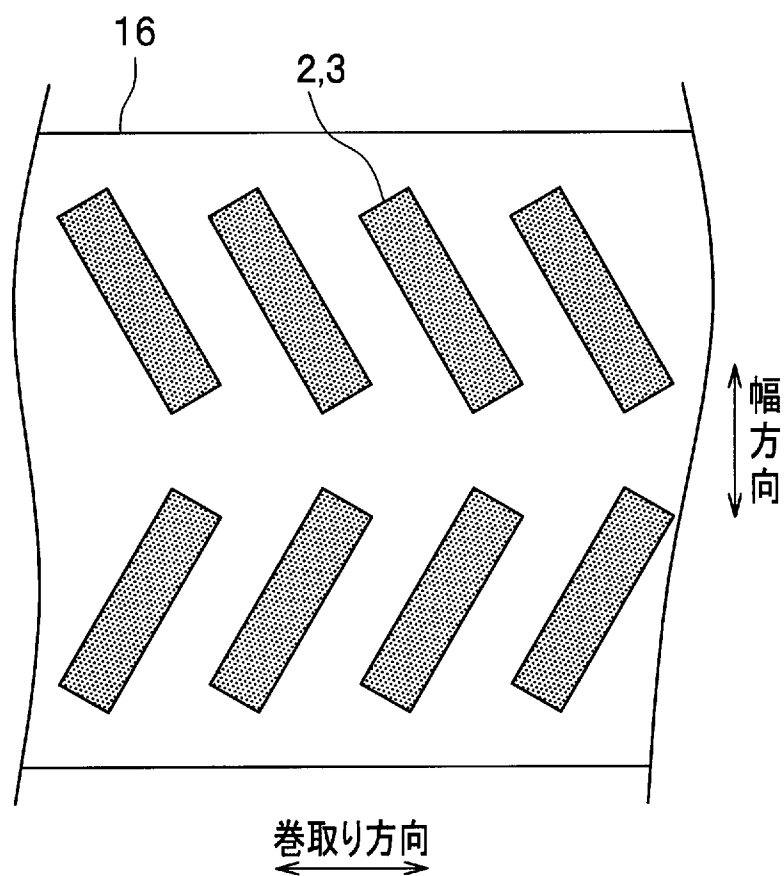
[図7]



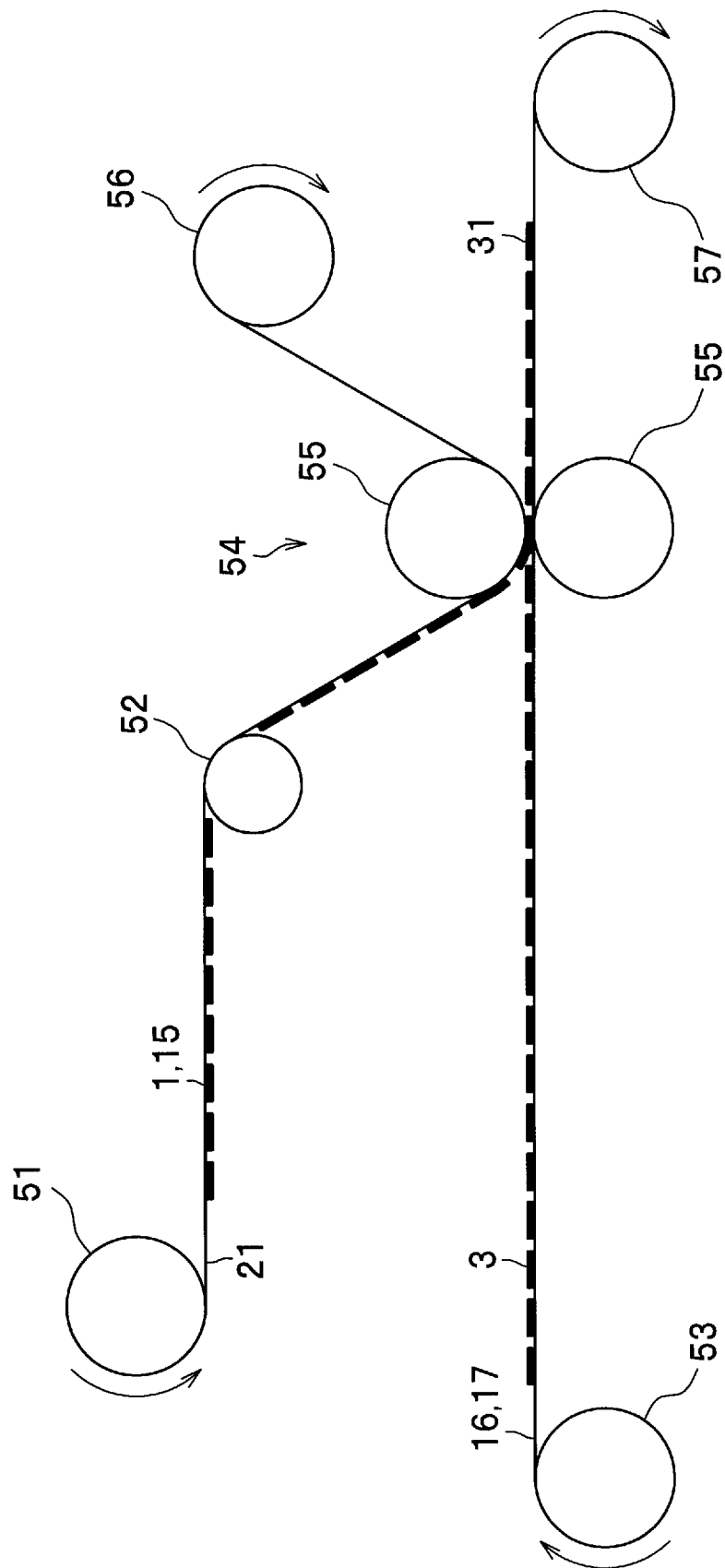
[図8]



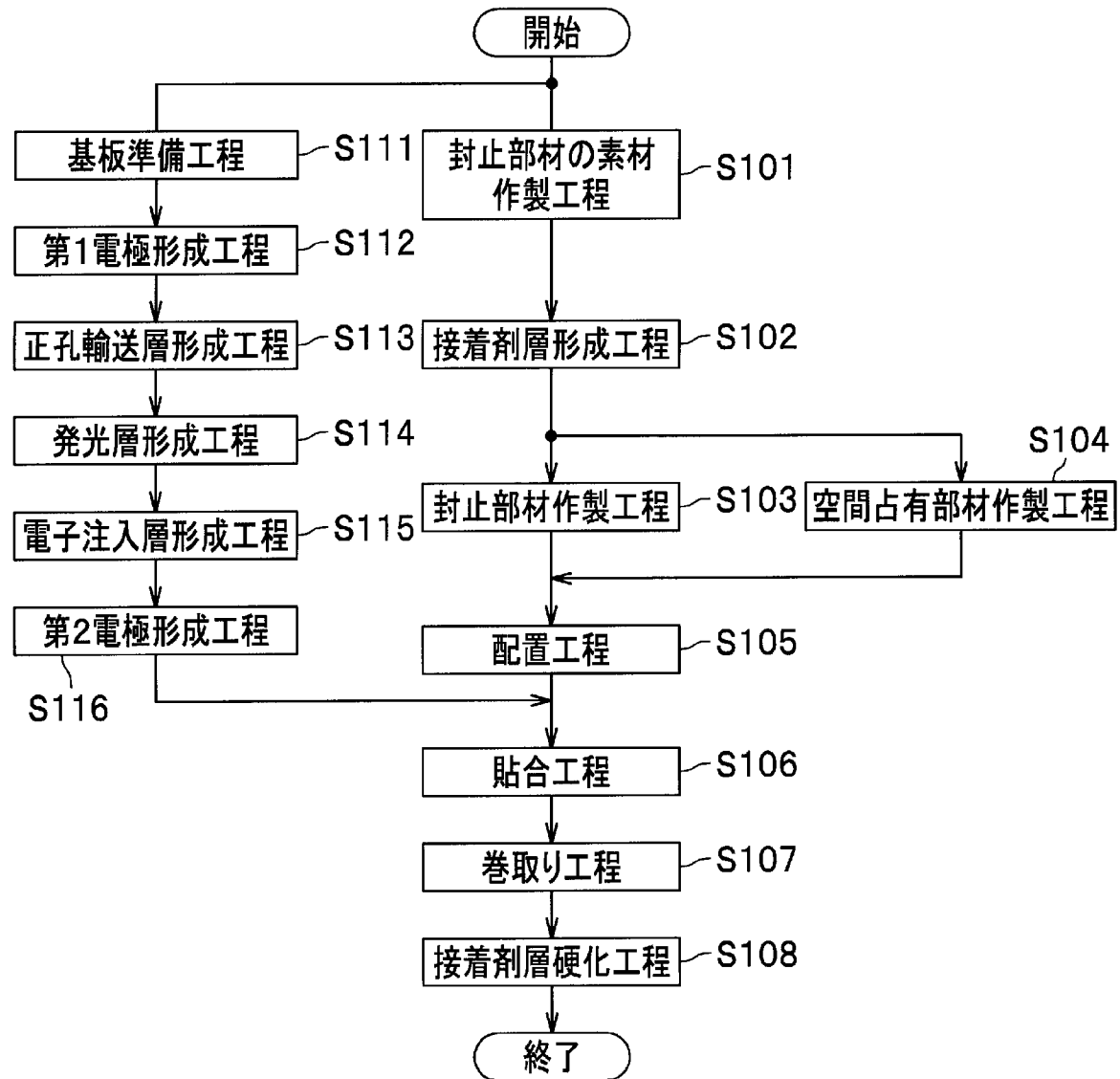
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/083768

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/10(2006.01)i, B65H18/28(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(2006.01)i, H05B33/04(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, B65H18/28, H01L51/50, H05B33/02, H05B33/04

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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	JP 2006-294536 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 26 October 2006 (26.10.2006), paragraphs [0007], [0029] to [0063], [0070] to [0073]; fig. 4, 6, 7(b) (Family: none)	1-4, 6
Y	JP 2007-179783 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 12 July 2007 (12.07.2007), paragraphs [0072] to [0076]; fig. 7 (Family: none)	1-4, 6
Y	JP 2002-68540 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 08 March 2002 (08.03.2002), paragraphs [0015] to [0018]; fig. 2 to 4 (Family: none)	4

☒ 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
12 March, 2014 (12.03.14)

Date of mailing of the international search report
25 March, 2014 (25.03.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/083768

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-158617 A (Toshiba Matsushita Display Technology Co., Ltd.), 16 June 2005 (16.06.2005), paragraph [0048]; fig. 2 to 3 (Family: none)	4
A	WO 2007/072758 A1 (Sharp Corp.), 28 June 2007 (28.06.2007), paragraphs [0001], [0030] to [0071]; fig. 1 to 9 & US 2009/0277983 A1 & CN 101277886 A	1-8
A	WO 2012/026363 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 01 March 2012 (01.03.2012), paragraphs [0143] to [0145]; fig. 5 (Family: none)	1-8
A	WO 2012/169368 A1 (Konica Minolta Holdings, Inc.), 13 December 2012 (13.12.2012), paragraphs [0015] to [0056]; fig. 1 to 5 (Family: none)	1-8
P,A	JP 2013-211129 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 10 October 2013 (10.10.2013), paragraphs [0012] to [0013], [0043], [0052] to [0061], [0063] to [0064]; fig. 1 to 5 (Family: none)	1-8
P,A	JP 2013-211396 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 10 October 2013 (10.10.2013), paragraphs [0075] to [0103]; fig. 13 to 15 (Family: none)	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. H05B33/10(2006.01)i, B65H18/28(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(2006.01)i, H05B33/04(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, B65H18/28, H01L51/50, H05B33/02, H05B33/04

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 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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
Y	JP 2006-294536 A（コニカミノルタホールディングス株式会社） 2006.10.26, 段落【0007】，【0029】－【0063】，【0070】－【0073】， 【図4】，【図6】，【図7】（b） （ファミリーなし）	1-4, 6
Y	JP 2007-179783 A（コニカミノルタホールディングス株式会社） 2007.07.12, 段落【0072】－【0076】，【図7】 （ファミリーなし）	1-4, 6

☒ 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

1 2 . 0 3 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

2 5 . 0 3 . 2 0 1 4

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）

本田 博幸

2 0

2 9 0 5

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
Y	JP 2002-68540 A (凸版印刷株式会社) 2002. 03. 08, 段落【0015】 - 【0018】 , 【図 2】 - 【図 4】 (ファミリーなし)	4
Y	JP 2005-158617 A (東芝松下ディスプレイテクノロジー株式会社) 2005. 06. 16, 段落【0048】 , 【図 2】 - 【図 3】 (ファミリーなし)	4
A	WO 2007/072758 A1 (シャープ株式会社) 2007. 06. 28, 段落[0001], [0030]-[0071], [図 1]-[図 9] & US 2009/0277983 A1 & CN 101277886 A	1-8
A	WO 2012/026363 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2012. 03. 01, 段落[0143]-[0145], [図 5] (ファミリーなし)	1-8
A	WO 2012/169368 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2012. 12. 13, 段落[0015]-[0056], [図 1]-[図 5] (ファミリーなし)	1-8
P, A	JP 2013-211129 A (大日本印刷株式会社) 2013. 10. 10, 段落【0012】 - 【0013】 , 【0043】 , 【0052】 - 【0061】 , 【0063】 - 【0064】 , 【図 1】 - 【図 5】 (ファミリーなし)	1-8
P, A	JP 2013-211396 A (大日本印刷株式会社) 2013. 10. 10, 段落【0075】 - 【0103】 , 【図 13】 - 【図 15】 (ファミリーなし)	1-8