

(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
2011年9月1日(01.09.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/105455 A1

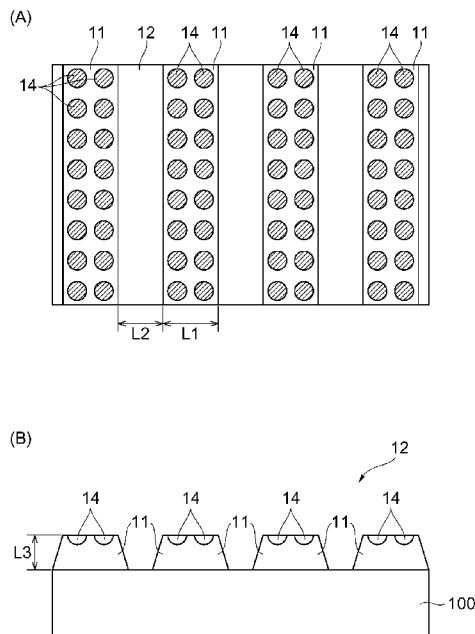
- (51) 国際特許分類:
H05B 33/10 (2006.01) *B41N 1/12* (2006.01)
B41M 1/02 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/054040
- (22) 国際出願日: 2011年2月23日(23.02.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-039994 2010年2月25日(25.02.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 六原 行一 (ROKUHARA Kouichi) [JP/JP]; 〒3040823 茨城県下妻市五箇267-2 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiaki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 MY PLAZA (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, 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, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, 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 (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,

[続葉有]

(54) Title: RELIEF PRINTING PLATE, PRINTING DEVICE USING SAME, THIN FILM MANUFACTURING METHOD, AND ORGANIC EL ELEMENT MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: 凸版印刷版、これを用いた印刷装置、薄膜の製造方法、及び有機EL素子の製造方法

[図1]



(57) Abstract: A relief printing plate is used in a relief printing method using a transfer roller having a smooth surface and has a protruding portion on the surface of which a predetermined recess is formed. The protruding portion has the plurality of recesses arranged so as to be symmetrical with respect to a point. The relief printing plate has a plurality of protruding portions extending in a predetermined direction at predetermined intervals. The protruding portions have the recesses extending in a predetermined direction or the recesses extending in a direction vertical to the predetermined direction.

(57) 要約: この凸版印刷版は、表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法に用いられる凸版印刷版であって、表面に所定の窪みが形成された凸部を有する。凸部は、点対称となるように配置された複数の前記窪みを有する。凸版印刷版は、互いに所定の間隔をあけて、所定方向に延在する複数の凸部を有する。凸部は、所定方向に延在する窪み、または所定方向に垂直な方向に延在する窪みを有する。

WO 2011/105455 A1



NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
NE, SN, TD, TG).

明 細 書

発明の名称：

凸版印刷版、これを用いた印刷装置、薄膜の製造方法、及び有機ＥＬ素子の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は凸版印刷版、この凸版印刷版を使用した薄膜の製造方法、印刷装置、および凸版印刷版を使用した有機ＥＬ (Electro-Luminescence) 素子の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 凸版印刷法では通常つぎのように印刷を行っている。まず円柱状の転写ロールの全面にインキを供給し、次にこの転写ロールに凸版印刷版を押し当て、凸版印刷版の凸部にインキを転写する。さらに凸版印刷版を被印刷体に押圧することによって印刷を行い、被印刷体に所定のパターンで薄膜を形成している。

[0003] 上述の転写ロールにはいわゆるアニロックスロール (anilox roll) が多用されている。アニロックスロールは、表面に微細な凹凸が形成された転写ロールであり、その表面に形成される凹凸の形状を調整することで、凸版印刷版に転写されるインキの分量を調整することができる。図４を参照しつつ、アニロックスロールを使用した凸版印刷法について説明する。

[0004] 図４はアニロックスロールを使用した凸版印刷法を模式的に示す図である。印刷用のインキ（インキ供給源）２２はインキタンクＴＫに收容されている。アニロックスロール２３'は、その一部がインキ２２に浸漬する状態で回転可能に軸支されており、図４では矢印で示すように反時計回りに回転する。インキ２２中を通過したアニロックスロール２３'の表面にはインキが付着する。なおインキは凸版印刷版１２'に転写すべき量よりも多量に付着するが、余分なインキは凸版印刷版１２'に転写される前にドクターブレード (doctor blade) ＤＢによって除去される。図４に示すように、ドクター

ブレードDBは、版胴24に巻きつけられた凸版印刷版12'がアニロックスロール23'に押し当てられる前にアニロックスロール23'に押し当てられる。これによって、余分なインキが除去されるとともに、意図した分量のインキがアニロックスロール23'表面の凹部に充填される。このように意図した分量のインキがアニロックスロール23'に保持された状態で凸版印刷版12'が押し当てられると、意図した分量のインキが凸版印刷版に転写され、これがさらに被印刷体に印刷される。

- [0005] このようにアニロックスロールを使用することにより、意図した分量のインキを被印刷体に印刷することが可能となり、結果として意図した膜厚の薄膜を被印刷体に形成することができる（たとえば特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

- [0006] 特許文献1：特開2006-252787号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] 上述のようにアニロックスロールに供給されたインキは凸版印刷版に転写されるが、その全てが転写されるわけではなく、一部は転写されずにアニロックスロール上に残留する。そしてアニロックスロール上に残留したインキは、アニロックスロールの回転にともなってインキタンクに向けて移動し、再びインキタンクに収容される。アニロックスロールに供給されたインキは、アニロックスロールが回転する間に溶媒の一部が蒸発するため、その固形分濃度が上昇する。そのため固形分濃度の高いインキがインキタンクに収容され続け、結果としてインキタンク中のインキ組成が経時的に変化する。このようにインキタンク中のインキ組成が変化するために、アニロックスロールを使用した凸版印刷法では連続して一定の性状の薄膜を形成することが難しいという問題がある。なおインキがインキタンクに戻ることを防ぐために、アニロックスロールを洗浄することも考えられるが、アニロックスロール

の表面の凹部に充填されたインキを、洗浄によって完全に除去することは難しいため、残留したインキがインキタンクに戻ることを完全に防ぐことは困難である。

[0008] そこで、本発明者等は、表面に凹凸が形成されたアニロックスロールに替えて、表面が平坦な転写ロールを使用して薄膜を形成することを検討した。表面が平坦な転写ロールでは、転写ロールをインキに浸漬しただけでは意図した分量のインキがその表面に付着しないため、通常インキはスリットコート法などによって転写ロールの表面に供給される。転写ロールから凸版印刷版に転写されるインキの分量は、転写ロールに供給するインキの量を制御することによってある程度調整することは可能であるが、実際には、インキの供給量を調整しただけでは意図した分量のインキが凸版印刷版に転写されず、結果として、意図した膜厚の薄膜を形成することができないという新たな問題が確認された。

[0009] 従って本発明の目的は、表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法によって所期の膜厚の薄膜を形成することが可能な凸版印刷版、これを用いた印刷装置、薄膜の製造方法、及び有機EL素子の製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明の凸版印刷版は、表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法に用いられる凸版印刷版であって、表面に所定の窪みが形成された凸部を有する。

[0011] また本発明の凸版印刷版において、前記凸部は、点対称となるように配置された複数の前記窪みを有することが好ましい。

[0012] また本発明の凸版印刷版は、互いに所定の間隔をあけて、所定の方向に延在する複数の前記凸部を有することが好ましい。

[0013] また本発明の凸版印刷版において、前記凸部は、前記所定の方向に延在する前記窪み、または前記所定の方向に垂直な方向に延在する窪みを有することが好ましい。

- [0014] また本発明の印刷装置は、インキ供給源と、前記インキ供給源からインキが供給される、表面が平坦な転写ロールと、前記転写ロールの表面に供給されたインキが転写される、前記凸版印刷版とを備える。
- [0015] また本発明の薄膜の製造方法は、表面が平坦な転写ロールにインキを供給する工程と、前記凸版印刷版を前記転写ロールに押し当て、前記インキを前記凸版印刷版に転写する工程と、前記凸版印刷版を被印刷体に押し当て、前記インキを印刷する工程と、前記インキを固化し、被印刷体上に薄膜を形成する工程とを備える。
- [0016] また本発明の有機EL素子の製造方法は、一対の電極と、該電極間に設けられる有機EL層とを備える有機EL素子の製造方法であって、一対の電極のうちの一方の電極を形成する工程と、表面が平坦な転写ロールに、前記有機EL層となる材料を含む有機ELインキを供給する工程と、前記凸版印刷版を前記転写ロールに押し当て、前記有機ELインキを前記凸版印刷版に転写する工程と、前記凸版印刷版を一対の前記一方の電極に押し当て、前記有機ELインキを印刷する工程と、前記有機ELインキを固化し、一方の電極上に有機EL層を形成する工程と、前記有機EL層上に一対の電極のうちの他方の電極を形成する工程とを備える。

発明の効果

- [0017] 本発明によれば、表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法によって所期の膜厚の薄膜を形成することが可能となる。

図面の簡単な説明

- [0018] [図1] 図1は、本実施形態の凸版印刷版を模式的に示す図である。
- [図2] 図2は、連続した窪みが形成された凸部を模式的に示す図である。
- [図3] 図3は、上述した凸版印刷版を備える印刷装置を模式的に示す図である。
- [図4] 図4は、アニロックスロールを使用した凸版印刷法を模式的に示す図である。
- [図5] 図5は、印刷版作製時の露光の様子を示す図である。

[図6] 図6は、印刷版作製時の露光の様子を示す図である。

[図7] 図7は、有機EL素子の縦断面図である。

[図8] 図8は、有機EL素子の縦断面図である。

[図9] 図9は、有機EL素子の縦断面図である。

[図10] 図10は、有機EL素子の縦断面図である。

[図11] 図11は、有機EL素子の縦断面図である。

[図12] 図12は、有機EL素子の縦断面図である。

[図13] 図13は、有機EL素子の縦断面図である。

[図14] 図14は、有機EL素子の縦断面図である。

[図15] 図15は、有機EL素子を備えた表示装置の縦断面図である。

発明を実施するための形態

[0019] 本発明の凸版印刷版は、表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法に用いられる凸版印刷版であって、表面に所定の窪みが形成された凸部を有する。作製が容易であるため、凸版印刷版は樹脂からなることが好ましい。

[0020] このように凸部の表面に所定の窪みを形成することにより、転写ロールから転写されるインキの分量を調整することができる。これによって、印刷された薄膜の膜厚を調整することができる。

[0021] 凸版印刷版には、被印刷体に形成すべき薄膜のパターンに対応するパターンの凸部が形成される。たとえば複数本の帯状の薄膜を被印刷体に形成する場合には、この帯状の薄膜のパターンに対応するように、互いに所定の間隔をあけて、所定の方向に延在する複数本の凸部が凸版印刷版に設けられる。またたとえばマトリクス状に配置される複数枚の薄膜を形成する場合、すなわち所定の行方向に所定の間隔をあけるとともに、所定の列方向に所定の間隔をあけて配置される複数枚の薄膜を形成する場合には、この複数枚の薄膜のパターンに対応するようにマトリクス状に配置される複数個の凸部が凸版印刷版に設けられる。

[0022] 図1は本実施形態の凸版印刷版を模式的に示す図である。図1（A）は凸版印刷版の平面図であり、図1（B）はその断面図である。図1では、互い

に所定の間隔をあけて、所定の方向に延在する複数本の凸部 1 1、すなわちストライプ状に配置される複数本の凸部 1 1 が、可撓性支持膜 1 0 0 上に形成された凸版印刷版 1 2 を、実施の一形態として示している。なお図 1 (A) および後述する図 2 では窪み 1 4 にハッチングを施している。

[0023] 図 1 に示すように凸版印刷版 1 2 の凸部 1 1 には所定の窪み 1 4 が設けられている。窪み 1 4 の形状およびその配置はインキの転写量に応じて適宜設定される。たとえば平面視において、凸部 1 1 の面積に占める窪み 1 4 の面積の割合や、窪み 1 4 の深さを適宜調整することによってインキの転写量を調整することができる。

[0024] 前記凸部 1 1 は、点対称となるように配置された複数の前記窪み 1 4 を有することが好ましい。すなわち凸版印刷版 1 2 の厚み方向に垂直な平面上において、複数の前記窪み 1 4 は、点対称となるように配置されていることが好ましい。換言すると各凸部 1 1 において、凸版印刷版 1 2 の厚み方向にその軸線方向が一致する所定の対称軸に対して、線対称となるように窪み 1 4 が形成されていることが好ましい。なお後述するように凸版印刷版 1 2 は所定の版胴に巻き回されて使用されるが、上記窪み 1 4 の配置は、凸版印刷版 1 2 を平面上に載置した状態での配置を意味する。このように対称に複数の窪みを配置することによって、転写ロールから凸部に転写されるインキの膜厚を均一にすることができ、結果として均一な膜厚の薄膜を被印刷体に形成することができる。

[0025] 図 1 では、各凸部の延在する方向に垂直な幅方向に 2 つの窪み 1 4 がそれぞれ設けられた凸版印刷版を示しているが、幅方向の窪みの数は 2 つに限らず、1 つ、または 3 つ以上であってもよい。また図 1 では平面視で円形の窪み 1 4 を示しているが、窪み 1 4 の平面視の形状は円形に限らず多角形状でも、略楕円状であってもよい。なお幅方向は、基板の厚み方向に対しても垂直な方向である。

[0026] また図 1 では窪みが離散的に設けられた凸部を示したが、窪みは連続して形成されていてもよい。図 2 は連続した窪みが形成された凸部を模式的に示

す図である。図 2 では複数本形成される凸部のうちの 1 つの凸部を拡大して模式的に示している。なお窪みが連続して形成されている形態であっても、窪みは、点対称となるように配置されていることが好ましい。

[0027] たとえば互いに所定の間隔をあけて、所定の方に延在する複数本の前記凸部を有する凸版印刷版の場合、すなわちストライプ状の凸部を有する凸版印刷版の場合、前記凸部 11 は、前記所定の方に延在する複数本の前記窪み、または前記所定の方に垂直な方に延在する複数本の前記窪みを有することが好ましい。すなわち凸部は、図 2 (A) に示すように凸部の延在する方向と同じ方に延在する窪み 14、または図 2 (B) に示すように凸部の延在する方向とは垂直な方に延在する窪み 14 を有することが好ましい。なお図 2 (A) では凸部の延在する方向と同じ方に延在する 3 本の窪みが形成された凸部を示しているが、窪みの本数は 3 本に限らず、1 本以上であればよい。

[0028] また図 2 (C) に示すように、凸部 11 には格子状の窪み 14 が形成されていてもよく、また図 2 (D) に示すように、凸部 11 には平面視において V 字状の窪み 14 が形成されていてもよい。

[0029] 次に窪みが形成された凸部 11 を備える凸版印刷版 12 の作製方法について説明する。本実施形態の凸版印刷版 12 は例えば感光性樹脂を用いて作製することができる。たとえば、図 5 (A) に示すように、まず所定の基材 100 上にネガ型の感光性樹脂（フォトレジスト）11' を成膜する。ネガ型の感光性樹脂 11' は露光されると現像液に対して溶解性が低下し、現像後に露光部分が残るという性質を有している。次にフォトマスク M を介して、UV 光で感光性樹脂 11' を露光し、凸部 11 を構成する部位を硬化させる。なお露光の際には、凸部 11 が形成される領域 (a) から窪み 14 が形成される領域 (b) (図 5 (B) 参照) を除いた領域 <領域 (a) - 領域 (b)> と、領域 (b) とで、露光量を異ならせる。なお、窪み 14 に対応する領域 (b) のみを露光する場合を図 5 (B) に示す。露光量を異ならせる場合、具体的には領域 (b) よりも領域 <領域 (a) - 領域 (b)> の露光量

を多くする。露光量を異ならせるために、露光は2回に分けて行ってもよい。たとえば1回目は、図6に示すように、凸部形成予定領域において、領域 $(a - b) = \{\text{領域}(a) - \text{領域}(b)\}$ を露光し、2回目は、領域 (a) を露光すればよい。領域 (b) は、領域 (a) に含まれるものであるから、領域 (b) の露光量が領域 (a) の露光量よりも低くなる。もちろん、1回目の領域 $(a - b)$ の露光量が大きい場合には、2回目において、領域 (b) のみを領域 $(a - b)$ の露光量（単位面積当たりの露光量）よりも小さな露光量（単位面積当たりの露光量）で露光してもよい。そして未硬化の感光性樹脂を洗い流し、現像する。上述したように露光量を異ならせることによって、領域 (b) よりも領域 $<\text{領域}(a) - \text{領域}(b)>$ がより硬化しているため、現像の際には、領域 (b) よりも領域 $<\text{領域}(a) - \text{領域}(b)>$ がより残存することになり、換言すれば、凸部形成予定領域において、領域 (b) がその周辺よりも顕著に溶解することにより、窪み14が頂面に形成された凸部11が得られる。このようにして凸版印刷版12を得ることができる。なお露光は、感光性樹脂側のみから行ってもよいが、基材が露光光に対して透明である場合には、基材側からも予め露光していてもよい。

[0030] 感光性樹脂11'としてはたとえばポリアミド、ポリイミド、又はアクリレートなどを用いることができる。基材100にはポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、又はポリカーボネイトなどを用いることができる。

[0031] 次に上述した凸版印刷版12を用いて薄膜を製造する方法について説明する。図3は、上述した凸版印刷版12を備える印刷装置21を模式的に示す図である。印刷装置21は主に、インキ供給源22と、前記インキ供給源22からインキが供給される、表面が平坦な転写ロール23と、前記転写ロール23の表面に供給されたインキが転写される上述の凸版印刷版12とを備える。

[0032] 上述したように凸版印刷版12は通常版胴24に巻き回されて使用される。たとえばストライプ状の凸部が設けられた凸版印刷版を使用する場合、凸版印刷版は、凸部の延在する方向が版胴の周方向に一致するように、または

凸部の延在する方向が版胴の軸線方向に一致するように版胴に巻き回される。本実施形態では版胴 24 は、軸心 C R 1 を中心に回転可能に軸支され、回転駆動機構 D R V 1 からの駆動力によって回転する。図 3 では版胴 24 は矢印で示すように時計回りに回転し、この版胴 24 の回転にともなって凸版印刷版 12 も回転する。

[0033] 転写ロール 23 は、その軸心 C R 2 が版胴 24 の軸心と平行になるように、回転可能に軸支され、回転駆動機構 D R V 2 からの駆動力によって回転する。図 3 では矢印で示すように、転写ロール 23 は、反時計回りに回転する。転写ロール 23 はたとえばクロム、酸化クロム、アルミニウム、酸化アルミニウムなどによって構成される。

[0034] インキ供給源 22 は、インキを収容し、さらにこれを転写ロール 23 に供給する。本実施形態ではスリットノズル 25 を用いて、転写ロール 23 にインキを供給する。

[0035] さらに本実施形態では印刷装置は洗浄機構 26 をさらに備える。洗浄機構 26 は、転写ロール 23 から凸版印刷版 12 にインキが転写された後に、転写ロール 23 上に残存するインキを洗浄する。たとえば洗浄機構 26 は、ドクターブレードを備え、このドクターブレードを転写ロール 23 に押し当てることによって、転写ロール 23 上に残存するインキを掻き落とす。なお所定のリンス液を用いて転写ロール 23 を洗浄してもよい。

[0036] 印刷装置 21 は被印刷体 27 を搬送する搬送テーブル 28 をさらに備える。この搬送テーブル 28 は被印刷体 27 を保持し、凸版印刷版 12 の接線速度と同じ速度で、凸版印刷版 12 の接線方向に平行移動する。搬送テーブル 28 は通常、水平移動する。この搬送テーブル 28 の移動にともなって被印刷体も平行移動する。

[0037] インキ供給源 22 から供給されるインキは、スリットノズル 25 を通って転写ロール 23 上に供給される。このようにスリットノズル 25 からインキが供給されつつ、転写ロール 23 が回転することにより、転写ロール 23 の表面上にインキの薄膜が形成される。なお、転写ロール 23 の表面は平坦（

平滑)である。別の言い方をすれば、転写ロール23の表面の二乗平均粗さ(RMS)は、凹凸を有する凸版印刷版12の表面のRMSよりも著しく小さい。

[0038] 凸版印刷版12は転写ロール23に当接した状態で回転するため、転写ロール23に供給されたインキが、凸版印刷版12の凸部の表面に順次転写される。

[0039] このようにインキが転写され、凸部にインキを保持する凸版印刷版12は、被印刷体27にも押圧された状態で回転する。被印刷体27は凸版印刷版12の回転とともに平行移動するため、被印刷体27には、凸版印刷版12の凸部に保持されたインキが順次印刷される。

[0040] なお凸版印刷版12に転写されずに転写ロール23に残存したインキは、洗浄機構26によって転写ロール23から除去される。

[0041] 以上の工程によって、表面が平坦な転写ロールにインキを供給する工程と、上述の凸版印刷版を前記転写ロールに押し当て、インキを前記凸版印刷版に転写する工程と、凸版印刷版を被印刷体に押し当て、前記インキを印刷する工程とが行われ、さらに前記インキを固化し、被印刷体上にインキの薄膜を形成する工程とを行うことにより被印刷体上に薄膜が形成される。

[0042] インキの固化は、溶媒を除去することによって行うことができる。溶媒の除去はたとえば自然乾燥、加熱乾燥、真空乾燥などによって行われる。またインキが、光や熱を加えることによって硬化する材料を含む場合は、被印刷体にインキが印刷された後に、光を照射したり、熱を加えたりすることによってインキを固化してもよい。

[0043] 上述したように、所定の窪み14を凸部11に形成することによって、意図した分量のインキを凸版印刷版12に転写することができる。これによって意図した分量のインキを被印刷体27に印刷することができ、結果として意図した膜厚の薄膜を、被印刷体上に形成することができる。

[0044] 上述した印刷装置を用いることにより、被印刷体上に様々な種類の薄膜を形成することができる。たとえば用いるインキを適宜調整することによって

、電極や配線として機能する導電性薄膜、有機光電変換素子の活性層、有機薄膜トランジスタの半導体層、および後述する有機ＥＬ素子の有機ＥＬ層などを形成することができる。

[0045] 上述した凸版印刷法を用いて、有機ＥＬ素子を形成することができる。すなわち本実施の形態の有機ＥＬ素子１の製造方法は、図７に示すように、一对の電極２，５と、該電極間に設けられる有機ＥＬ層１０とを備える有機ＥＬ素子の製造方法であって、一对の電極のうち一方の電極２を形成する工程と、表面が平坦な転写ロールに、有機ＥＬ層（特に発光層４）１０となる材料を含む有機Ｅラインキを供給する工程と、上述の凸版印刷版１２を転写ロール２３に押し当て、有機Ｅラインキを凸版印刷版１２に転写する工程と、凸版印刷版１２を一对の前記一方の電極２に押し当て、有機Ｅラインキを印刷する工程と、有機Ｅラインキを固化し、一方の電極２上に有機ＥＬ層（特に発光層４）１０を形成する工程と、前記有機ＥＬ層１０上に一对の電極のうち他方の電極５を形成する工程とを含む、有機ＥＬ素子の製造方法に関する。

[0046] 有機ＥＬ素子１はたとえば表示装置の画素として用いられる。このような表示装置では、図１５に示すように、支持基板６上に複数の有機ＥＬ素子１が所定の配列で整列して設けられる。たとえば複数の有機ＥＬ素子１は、支持基板６上においてマトリクス状に配置される。すなわち複数の有機ＥＬ素子１は、所定の行方向に所定の間隔をあけるとともに、所定の列方向に所定の間隔をあけて、整列して配置される。

[0047] 支持基板６上には通常複数の有機ＥＬ素子を区分けするための隔壁ＩＷが設けられる。そして複数の有機ＥＬ素子は隔壁ＩＷによって区分けされた領域にそれぞれ形成される。

[0048] 隔壁ＩＷは、たとえばストライプ状、または格子状に設けられる。ストライプ状の隔壁が設けられる場合、所定の方向に延在する複数本の隔壁が、互いに所定の間隔をあけて基板上に設けられる。そして各有機ＥＬ素子１は、各隔壁ＩＷ間に設けられ、この隔壁ＩＷ間において、隔壁ＩＷの延在する方

向に沿って所定の間隔をあけて配置される。また格子状の隔壁 I W が設けられる場合、各有機 E L 素子 1 は、それぞれ格子状の隔壁によって区分けされた領域にそれぞれ設けられる。

[0049] 本実施形態ではストライプ状の隔壁 I W が設けられる基板に複数の有機 E L 素子を作製する方法について説明する。

[0050] 有機 E L 素子 1 は一对の電極 2, 5 を備える。一对の電極は、陽極と陰極とから構成される。すなわち一对の電極のうち的一方の電極は、陽極および陰極のうちのいずれか一方の電極として機能し、一对の電極のうち他方の電極は、陽極および陰極のうちのいずれか他方の電極として機能する。まず支持基板 6 上に各有機 E L 素子 1 の一方の電極 2 をそれぞれ形成する。すなわち有機 E L 素子 1 の数に対応する数の一方の電極 2 を支持基板 6 上に形成する。複数の一方の電極 2 は、平面視において、マトリクス状に配置される。

[0051] 次にストライプ状の隔壁 I W を形成する。ストライプ状の隔壁は、隣り合う一方の電極 2、2 間に形成される。この隔壁 I W はたとえば感光性樹脂を用いて、フォトリソグラフィ法によって形成することができる。

[0052] つぎに有機 E L 層 10 を形成する。本実施形態では、ストライプ状の隔壁 I W 間に、有機 E L 層 10 となる材料を含む有機 E L インキを供給し、さらにこれを固化することによって、ストライプ状の隔壁 I W 間に、帯状の有機 E L 層を形成する。なおストライプ状の隔壁 I W 間への有機 E L インキの供給は、上述した凸版印刷法によって行われる。すなわち上述の凸版印刷法において、インキとして、有機 E L 層となる材料を含む有機 E L インキを使用し、さらに、凸版印刷版 12 として、隔壁 I W, I W 間のパターンに対応するストライプ状の凸部 11 が形成された凸版印刷版 12 を使用する。上述した凸版印刷法によって隔壁 I W, I W 間に有機 E L インキを供給し、さらにこれを固化することによって、帯状の有機 E L 層 10 を各隔壁 I W, I W 間に形成することができる。

[0053] 有機 E L 層 10 を形成する際に用いられる有機 E L インキは、その固形分濃度が通常 0.5 重量%～3 重量%程度であり、その粘度が通常 5 cP～1

00 cP 程度である。1 cP（センチポアズ）＝0.001 Pa・s（パスカル秒）であるから、5 cP～100 cPは、0.005 Pa・s～0.1 Pa・s である。有機ELインキの溶媒または分散媒は、有機EL層となる材料を均一に溶解または分散するものであればよい。たとえばクロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタンなどの塩素系溶媒、テトラヒドロフランなどのエーテル系溶媒、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテートなどのエステル系溶媒、および水などを溶媒または分散媒として適宜使用することができる。

[0054] 有機EL層10の膜厚は通常30 nm～120 nm程度である。有機EL素子1の特性は有機EL層10の膜厚に大きく依存するため、意図した膜厚の有機EL層を形成することが望まれている。本実施形態では、凸版印刷版12の凸部11に所定の窪みを形成することによって、意図した分量の有機ELインキを隔壁IW、IW間に供給することができ、結果として、意図した膜厚の有機EL層10を形成することができる。これによって所期の特性を有する有機EL素子1を形成することができる。

[0055] 一对の電極2、5間には、1層の有機EL層に限らず、複数の有機EL層が必要に応じて設けられる。なお有機EL層とは一对の電極間に設けられる全ての層を意味する。一对の電極間には少なくとも1層の発光層4が有機EL層として設けられる（図14参照）。複数の有機EL層が設けられる場合には、少なくとも1層の有機EL層が上述の本発明の凸版印刷法によって形成される。なお複数の有機EL層のうち、塗布法によって形成することが可能な有機EL層は、上述した本発明の凸版印刷法によって形成することが好ましい。なおカラー表示装置の場合には、赤色、緑色、青色をそれぞれ発光する有機ELインキを所定の隔壁IW、IW間に塗り分ける必要がある。この場合、各色の有機ELインキが供給されるパターンに対応するように、印刷版の凸部11のパターンを形成することによって、各色の有機ELインキを塗り分けることができる。

[0056] 有機EL層10を形成した後に、有機EL層上に他方の電極5を形成する。これによって、図15に示すように、複数の有機EL層10が基板6上に形成される。上述の電極の形成方法としては、真空蒸着法、スパッタ法、イオンプレーティング法、ラミネート法、或いはメッキ法を用いることができる。

[0057] なお本実施形態ではストライプ状の隔壁1Wが形成される基板6上に複数の有機EL素子1を形成する方法について説明したが、格子状の隔壁が形成された基板上に複数の有機EL素子を形成する方法であっても、上述した凸版印刷法によって、各有機EL素子の有機EL層を形成することができる。この場合、格子状の隔壁によって区分けされるマトリクス状のパターンに対応するように、マトリクス状に配置される複数の凸部が形成された凸版印刷版を使用すればよい。

[0058] <有機EL素子の構成>

有機EL素子は種々の層構成をとりうるが、以下では有機EL素子の層構成、各層の構成、および各層の形成方法についてさらに詳しく説明する。

[0059] 有機EL素子は、一对の電極2、5と、該電極2、5間に設けられる1または複数の有機EL層10とを含んで構成され、1または複数の有機EL層として少なくとも1層の発光層を有する。なお有機EL素子は、無機物と有機物とを含む層、および無機層などを含んでいてもよい。有機層を構成する有機物としては、低分子化合物でも高分子化合物でもよく、また低分子化合物と高分子化合物との混合物でもよい。有機層は、高分子化合物を含むことが好ましく、ポリスチレン換算の数平均分子量が $10^3 \sim 10^8$ である高分子化合物を含むことが好ましい。

[0060] 陰極と発光層との間に設けられる有機EL層としては、電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層などを挙げることができる。陰極と発光層との間に電子注入層と電子輸送層との両方の層が設けられる場合、陰極に近い層を電子注入層といい、発光層に近い層を電子輸送層という。陽極と発光層との間に設けられる有機EL層としては、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック

層などを挙げることができる。正孔注入層と正孔輸送層との両方の層が設けられる場合、陽極に近い層を正孔注入層といい、発光層に近い層を正孔輸送層という。

[0061] 有機EL素子は前述したように一对の電極間に発光層以外にも所定の層を備えうる。支持基板6上に形成された電極（陽極）2と電極（陰極）5との間に形成される有機層10としては、以下の構造が挙げられる。

[0062] 有機EL素子の構造としては、図7に示すように、電極（陽極）2と発光層4との間に有機層Yが介在すると共に、電極（陰極）5と発光層4との間に有機層Xが介在する構造とすることができる。

[0063] 有機EL素子の構造としては、図8に示すように、電極（陽極）2と発光層4との間に有機層Yが介在し、発光層4上には直接的に電極5が形成されている構造とすることができる。

[0064] 有機EL素子の構造としては、図9に示すように、電極（陰極）5と発光層4との間に有機層Xが介在し、発光層4が直接的に電極2に接触している構造とすることができる。

[0065] 有機層Xは、図10に示すように、2種類以上の有機層X1、X2からなることとしてもよく、有機層Yは、図11に示すように、2種類以上の有機層Y1、Y2からなることとしてもよい。

[0066] 有機EL素子の構造としては、図14に示すように、陽極2と陰極5との間に発光層4のみが形成されていてもよい。

[0067] 陰極5と発光層4との間に設けられる層Xとしては、電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層などをあげることができる。図10に示したように、陰極5と発光層4との間に電子注入層X1と電子輸送層X2との両方の層が設けられる場合、陰極5に接する層を電子注入層X1といい、この電子注入層X1を除く層を電子輸送層X2という。

[0068] 電子注入層は、陰極からの電子注入効率を改善する機能を有する。電子輸送層は陰極側の表面に接する層からの電子注入を改善する機能を有する。正孔ブロック層は、正孔の輸送を堰き止める機能を有する。なお電子注入層、

及び／又は電子輸送層が正孔の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が正孔ブロック層を兼ねることがある。

[0069] 正孔ブロック層が正孔の輸送を堰き止める機能を有することは、例えばホール電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少で堰き止める効果を確認することが可能である。

[0070] 陽極 2 と発光層 4 との間に設けられる層 Y としては、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層などをあげることができる。図 11 に示したように、陽極 2 と発光層 4 との間に、正孔注入層 Y1 と正孔輸送層 Y2 との両方の層が設けられる場合、陽極 2 に接する層を正孔注入層 Y1 といい、この正孔注入層 Y1 を除く層を正孔輸送層 Y2 という。

[0071] 正孔注入層は、陽極からの正孔注入効率を改善する機能を有する。正孔輸送層は陽極側の表面に接する層からの正孔注入を改善する機能を有する。電子ブロック層は、電子の輸送を堰き止める機能を有する。なお正孔注入層、及び／又は正孔輸送層が電子の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が電子ブロック層を兼ねることがある。

[0072] 電子ブロック層が電子の輸送を堰き止める機能を有することは、例えば、電子電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少で堰き止める効果を確認することが可能である。

[0073] なお、電子注入層および正孔注入層を総称して電荷注入層ということがあり、電子輸送層および正孔輸送層を総称して電荷輸送層ということがある。

本実施の形態の有機 EL 素子のとりうる層構成の一例を以下に示す。

- a) 陽極 2 / 発光層 4 / 陰極 5 (図 14 参照)
- b) 陽極 2 / 正孔注入層 Y / 発光層 4 / 陰極 5 (図 8 参照)
- c) 陽極 2 / 正孔注入層 Y / 発光層 4 / 電子注入層 X / 陰極 5 (図 7 参照)
- d) 陽極 2 / 正孔注入層 Y / 発光層 4 / 電子輸送層 X / 陰極 5 (図 7 参照)
- e) 陽極 2 / 正孔注入層 Y / 発光層 4 / 電子輸送層 X2 / 電子注入層 X1 / 陰極 5 (図 7 及び図 10 参照)
- f) 陽極 2 / 正孔輸送層 Y / 発光層 4 / 陰極 5 (図 8 参照)

- g) 陽極 2 / 正孔輸送層 Y / 発光層 4 / 電子注入層 X / 陰極 5 (図 7 参照)
- h) 陽極 2 / 正孔輸送層 Y / 発光層 4 / 電子輸送層 X / 陰極 5 (図 7 参照)
- i) 陽極 2 / 正孔輸送層 Y / 発光層 4 / 電子輸送層 X 2 / 電子注入層 X 1 / 陰極 5 (図 7 及び図 10 参照)
- j) 陽極 2 / 正孔注入層 Y 1 / 正孔輸送層 Y 2 / 発光層 4 / 陰極 5 (図 8 及び図 11 参照)
- k) 陽極 2 / 正孔注入層 Y 1 / 正孔輸送層 Y 2 / 発光層 4 / 電子注入層 X / 陰極 5 (図 7 及び図 11 参照)
- l) 陽極 2 / 正孔注入層 Y 1 / 正孔輸送層 Y 2 / 発光層 4 / 電子輸送層 X / 陰極 5 (図 7 及び図 11 参照)
- m) 陽極 2 / 正孔注入層 Y 1 / 正孔輸送層 Y 2 / 発光層 4 / 電子輸送層 X 2 / 電子注入層 X 1 / 陰極 5 (図 7、図 10 及び図 11 参照)
- n) 陽極 2 / 発光層 4 / 電子注入層 X / 陰極 5 (図 9 参照)
- o) 陽極 2 / 発光層 4 / 電子輸送層 X / 陰極 5 (図 9 参照)
- p) 陽極 2 / 発光層 4 / 電子輸送層 X 2 / 電子注入層 X 1 / 陰極 5 (図 9 及び図 10 参照)

(ここで、記号「/」は、記号「/」を挟む各層が隣接して積層されていることを示す。以下同じ。)

本実施の形態の有機 EL 素子は 2 層以上の発光層を有していてもよい。上記 a) ~ p) の層構成のうちのいずれか 1 つにおいて、陽極と陰極とに挟持された積層体を「構造単位 A」とすると、2 層の発光層を有する有機 EL 素子の構成として、下記 q) に示す層構成を挙げることができる。なお 2 つある (構造単位 A) の層構成は互いに同じでも、異なってもよい。

- q) 陽極 2 / (構造単位 A) / 電荷発生層 Z / (構造単位 A) / 陰極 5 (図 12 参照)

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

r) 陽極 2 / (構造単位 B) x / (構造単位 A) / 陰極 5 (図 13 参照)

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

[0074] ここで、電荷発生層 Z とは電界を印加することにより正孔と電子を発生する層である。電荷発生層 Z としては、たとえば酸化バナジウム、インジウムスズ酸化物 (Indium Tin Oxide : 略称 ITO)、酸化モリブデンなどから成る薄膜を挙げることができる。

[0075] 有機 EL 素子は通常支持基板上に設けられる。有機 EL 素子は、陽極および陰極から構成される一対の電極のうちの陽極を陰極よりも支持基板寄りに配して支持基板に設けてもよく、また陰極を陽極よりも支持基板寄りに配して支持基板に設けてもよい。たとえば上記 a) ~ r) の構成において、右側から順に支持基板上に各層を積層した構成の有機 EL 素子でも、左側から順に支持基板上に各層を積層した構成の有機 EL 素子であってもよい。

[0076] 積層する層の順序、層数、および各層の厚さについては、発光効率や素子寿命を勘案して適宜設定することができる。

[0077] 次に有機 EL 素子を構成する各層の材料および形成方法についてより具体的に説明する。

[0078] <陽極>

発光層から放たれる光が陽極を通して素子外に出射する構成の有機 EL 素子の場合、陽極には光透過性を示す電極が用いられる。光透過性を示す電極としては、金属酸化物、金属硫化物および金属などの薄膜を用いることができ、電気伝導度および光透過率の高いものが好適に用いられる。具体的には酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、ITO、インジウム亜鉛酸化物 (Indium Zinc Oxide : 略称 IZO)、金、白金、銀、および銅などから成る薄膜が用いられ、これらの中でも ITO、IZO、または酸化スズから成る薄膜が好適に用いられる。陽極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法などを挙げるこ

とができる。また、該陽極として、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体などの有機の透明導電膜を用いてもよい。

[0079] 陽極の膜厚は、求められる特性や成膜工程の簡易さなどを考慮して適宜設定され、例えば10nm～10μmであり、好ましくは20nm～1μmであり、さらに好ましくは50nm～500nmである。

[0080] <正孔注入層>

正孔注入層を構成する正孔注入材料としては、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、および酸化アルミニウムなどの酸化物や、フェニルアミン系、スターバースト型アミン系、フタロシアニン系、アモルファスカーボン、ポリアニリン、およびポリチオフェン誘導体などを挙げることができる。

[0081] 正孔注入層の成膜方法としては、正孔注入材料を含む溶液からの成膜を挙げることができる。例えば正孔注入材料を含む溶液を所定の塗布法によって塗布成膜し、さらにこれを固化することによって正孔注入層を形成することができる。

[0082] 塗布法としてはスピコート法、キャストイング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、凸版印刷法（フレキソ印刷法）、オフセット印刷法、インクジェットプリント法などを挙げることができ、実施の一形態として前述した本発明の凸版印刷法が好ましい。

[0083] 正孔注入層の膜厚は、求められる特性および成膜工程の簡易さなどを考慮して適宜設定され、例えば1nm～1μmであり、好ましくは2nm～500nmであり、さらに好ましくは5nm～200nmである。

[0084] <正孔輸送層>

正孔輸送層を構成する正孔輸送材料としては、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールア

ミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリアリールアミン若しくはその誘導体、ポリピロール若しくはその誘導体、ポリ（*p*-フェニレンビニレン）若しくはその誘導体、又はポリ（2, 5-チエニレンビニレン）若しくはその誘導体などを挙げることができる。

[0085] これらの中で正孔輸送材料としては、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミン化合物基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリアリールアミン若しくはその誘導体、ポリ（*p*-フェニレンビニレン）若しくはその誘導体、又はポリ（2, 5-チエニレンビニレン）若しくはその誘導体などの高分子正孔輸送材料が好ましく、さらに好ましくはポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体である。低分子の正孔輸送材料の場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

[0086] 正孔輸送層の成膜方法としては、特に制限はないが、低分子の正孔輸送材料では、高分子バインダーと正孔輸送材料とを含む混合液からの成膜を挙げることができる、高分子の正孔輸送材料では、正孔輸送材料を含む溶液からの成膜を挙げることができる。

[0087] 溶液からの成膜方法としては、前述した正孔注入層の成膜法と同様の塗布法を挙げることができる。

[0088] 混合する高分子バインダーとしては、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、また可視光に対する吸収の弱いものが好適に用いられ、例えばポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサンなどを挙げることができる。

[0089] 正孔輸送層の膜厚は、求められる特性および成膜工程の簡易さなどを考慮して設定され、例えば1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nm

mであり、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

[0090] <発光層>

発光層は、通常、主として蛍光及び／又はりん光を発光する有機物、または該有機物とこれを補助するドーパントとから形成される。ドーパントは、例えば発光効率の向上や、発光波長を変化させるために加えられる。なお発光層を構成する有機物は、低分子化合物でも高分子化合物でもよく、塗布法によって発光層を形成する場合には、発光層は高分子化合物を含むことが好ましい。発光層を構成する高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量はたとえば $10^3 \sim 10^8$ 程度である。発光層を構成する発光材料としては、例えば以下の色素系材料、金属錯体系材料、高分子系材料、ドーパント材料を挙げることができる。

[0091] (色素系材料)

色素系材料としては、例えば、シクロペンダミン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体化合物、トリフェニルアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアアリーレン誘導体、ピロール誘導体、チオフェン環化合物、ピリジン環化合物、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマー、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体などを挙げることができる。

[0092] (金属錯体系材料)

金属錯体系材料としては、例えばTb、Eu、Dyなどの希土類金属、またはAl、Zn、Be、Ir、Ptなどを中心金属に有し、オキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダゾール、キノリン構造などを配位子に有する金属錯体を挙げることができ、例えばイリジウム錯体、白金錯体などの三重項励起状態からの発光を有する金属錯体、アルミニウムキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾリル亜鉛錯体、ベンゾチアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、フェナントロリンユーロピウム錯体などを挙げる

ことができる。

[0093] (高分子系材料)

高分子系材料としては、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素系材料や金属錯体系発光材料を高分子化したものなどを挙げることができる。

[0094] 上記発光性材料のうち、青色に発光する材料としては、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、およびそれらの重合体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などを挙げることができる。なかでも高分子材料のポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体やポリフルオレン誘導体などが好ましい。

[0095] また、緑色に発光する材料としては、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、およびそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などを挙げることができる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが好ましい。

[0096] また、赤色に発光する材料としては、クマリン誘導体、チオフェン環化合物、およびそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体などを挙げることができる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体などが好ましい。

(ドーパント材料)

ドーパント材料としては、例えばペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、スクアリリウム誘導体、ポルフィリン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾロン誘導体、デカシクレン、フェノキサゾンなどを挙げることができる。なお、このような発光層の厚さは、通常約2 nm～200 nmである。

[0097] 発光層の成膜方法としては、溶液から成膜する方法、真空蒸着法、転写法

などを挙げることができる。

[0098] 溶液からの成膜において溶液を塗布する方法としては、スピンコート法、キャストリング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スリットコート法、キャピラリーコート法、スプレーコート法およびノズルプリンティング法などのコート法、並びにグラビア印刷法、スクリーン印刷法、凸版印刷法（フレキソ印刷法）、オフセット印刷法、反転印刷法、インクジェットプリント法などの塗布法を挙げることができ、実施の一形態として前述した本発明の凸版印刷法が好ましい。

[0099] <電子輸送層>

電子輸送層を構成する電子輸送材料としては、公知のものを使用でき、オキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン若しくはその誘導体、ベンゾキノン若しくはその誘導体、ナフトキノン若しくはその誘導体、アントラキノン若しくはその誘導体、テトラシアノアンスラキノジメタン若しくはその誘導体、フルオレノン誘導体、ジフェニルジシアノエチレン若しくはその誘導体、ジフェノキノン誘導体、又は8-ヒドロキシキノリン若しくはその誘導体の金属錯体、ポリキノリン若しくはその誘導体、ポリキノキサリン若しくはその誘導体、ポリフルオレン若しくはその誘導体などを挙げることができる。

[0100] これらのうち、電子輸送材料としては、オキサジアゾール誘導体、ベンゾキノン若しくはその誘導体、アントラキノン若しくはその誘導体、又は8-ヒドロキシキノリン若しくはその誘導体の金属錯体、ポリキノリン若しくはその誘導体、ポリキノキサリン若しくはその誘導体、ポリフルオレン若しくはその誘導体が好ましく、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、ベンゾキノン、アントラキノン、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ポリキノリンがさらに好ましい。

[0101] 電子輸送層の成膜法としては特に制限はないが、低分子の電子輸送材料で

は、粉末からの真空蒸着法、または溶液若しくは溶融状態からの成膜を挙げることができる。高分子の電子輸送材料では溶液または溶融状態からの成膜を挙げることができる。なお溶液または溶融状態からの成膜する場合には、高分子バインダーを併用してもよい。溶液から電子輸送層を成膜する方法としては、前述の溶液から正孔注入層を成膜する方法と同様の成膜法を挙げることができる。

[0102] 電子輸送層の膜厚は、求められる特性や成膜工程の簡易さなどを考慮して適宜設定され、例えば $1\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ であり、好ましくは $2\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ であり、さらに好ましくは $5\text{ nm} \sim 200\text{ nm}$ である。

[0103] <電子注入層>

電子注入層を構成する材料としては、発光層の種類に応じて最適な材料が適宜選択され、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルカリ金属およびアルカリ土類金属のうちの1種類以上を含む合金、アルカリ金属若しくはアルカリ土類金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩、またはこれらの物質の混合物などを挙げることができる。アルカリ金属、アルカリ金属の酸化物、ハロゲン化物、および炭酸塩の例としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、酸化リチウム、フッ化リチウム、酸化ナトリウム、フッ化ナトリウム、酸化カリウム、フッ化カリウム、酸化ルビジウム、フッ化ルビジウム、酸化セシウム、フッ化セシウム、炭酸リチウムなどを挙げることができる。また、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩の例としては、マグネシウム、カルシウム、バリウム、ストロンチウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム、酸化カルシウム、フッ化カルシウム、酸化バリウム、フッ化バリウム、酸化ストロンチウム、フッ化ストロンチウム、炭酸マグネシウムなどを挙げることができる。電子注入層は、2層以上を積層した積層体で構成されてもよく、例えば LiF/Ca などを挙げることができる。電子注入層は、蒸着法、スパッタリング法、印刷法などにより形成される。電子注入層の膜厚としては、 $1\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{ m}$ 程度が好ましい。

[0104] <陰極>

陰極の材料としては、仕事関数が小さく、発光層への電子注入が容易で、電気伝導度の高い材料が好ましい。また陽極側から光を取出す構成の有機EL素子では、発光層から放たれる光を陰極で陽極側に反射するために、陰極の材料としては可視光反射率の高い材料が好ましい。陰極には、例えばアルカリ金属、アルカリ土類金属、遷移金属および周期表の13族金属などを用いることができる。陰極の材料としては、例えばリチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウム、スカンジウム、バナジウム、亜鉛、イットリウム、インジウム、セリウム、サマリウム、ユーロピウム、テルビウム、イッテルビウムなどの金属、前記金属のうちの2種以上の合金、前記金属のうちの1種以上と、金、銀、白金、銅、マンガン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫のうちの1種以上との合金、またはグラファイト若しくはグラファイト層間化合物などが用いられる。合金の例としては、マグネシウム－銀合金、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、インジウム－銀合金、リチウム－アルミニウム合金、リチウム－マグネシウム合金、リチウム－インジウム合金、カルシウム－アルミニウム合金などを挙げることができる。また、陰極としては導電性金属酸化物および導電性有機物などから成る透明導電性電極を用いることができる。具体的には、導電性金属酸化物として酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、ITO、およびIZOを挙げることができ、導電性有機物としてポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体などを挙げることができる。なお陰極は、2層以上を積層した積層体で構成されていてもよい。なお電子注入層が陰極として用いられる場合もある。

[0105] 陰極の膜厚は、求められる特性や成膜工程の簡易さなどを考慮して適宜設定され、例えば10nm～10μmであり、好ましくは20nm～1μmであり、さらに好ましくは50nm～500nmである。

[0106] 陰極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、また金属薄膜

を熱圧着するラミネート法などを挙げることができる。

実施例

[0107] (凸版印刷版の作製)

まず図 1 に模式的に示す凸版印刷版と同様の構成の凸版印刷版を作製した。ポリエステル系樹脂を感光性樹脂として使用し、フォトリソグラフィ法によって複数個の窪み 14 が形成された複数本の凸部 11 を有する凸版印刷版 12 を作製した。各凸部 11 の幅方向の幅 L1 は、 $80\text{ }\mu\text{m}$ であり、凸部 11 の高さ L3 は $136\text{ }\mu\text{m}$ である。また凸部 11 と凸部 11 との間隔 L2 は $220\text{ }\mu\text{m}$ である。各窪み 14 の深さは約 $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。各窪み 14 は正方格子の格子点の位置に配置するように形成し、1 インチ当り、536 個の窪みを形成した。凸部 11 の頂面の面積における窪み 14 の面積の割合 (窪みの面積 / 凸部の面積) $\times 100$ は、平面視で約 70% であった。

[0108] (基板の準備)

被塗布体として 200 mm (縦) $\times$ 200 mm (横) $\times$ 0.7 mm (厚み) の透明ガラス板を準備した。

[0109] (有機 E レインキの用意)

アニソール 90 重量部、シクロヘキシルベンゼン 10 重量部からなる混合溶媒を用意し、この混合溶媒に有機発光材料を 1 重量% の濃度で溶解し、有機 E レインキを用意した。有機発光材料には高分子発光材料 (サメイション社製、商品名「Green1300」) を用いた。用意した有機 E レインキの粘度は 25 cP ($0.025\text{ Pa}\cdot\text{s}$) であった。

[0110] (印刷)

図 3 に模式的に示す印刷装置と同様に動作する大日本スクリーン製造 (株) 製の「有版印刷実験装置」を用いて印刷を行った。凸版印刷版には上記で作製した凸版印刷版 12 を使用した。凸版印刷版 12 は、凸部 11 の延在する方向が版胴の周方向と一致するように、版胴に設置した。前述したように、まずスリットノズル (スリット幅 220 mm , スリット隙間 $50\text{ }\mu\text{m}$) を用いて、表面が酸化クロムから成る転写ロール 23 (図 3 参照) に有機 E レイ

ンキを供給し、転写ロール 23 の表面に有機 E L インキの薄膜を形成した。さらに凸版印刷版 12 の凸部 11 が転写ロールに対して $20\text{ }\mu\text{m}$ 押し込まれた状態となるように、凸版印刷版 12 を転写ロール 23 に押し当て、転写ロール 23 から凸版印刷版 12 の凸部 11 に有機 E L インキを転写した。次に凸版印刷版 12 の凸部 11 がガラス基板に対して $20\text{ }\mu\text{m}$ 押し込まれた状態となるように、凸版印刷版 12 をガラス基板に押し当てた。その後有機 E L インキを乾燥し、複数本の帯状の薄膜を得た。

[0111] (薄膜形状の測定)

形成された薄膜の断面形状を触針式膜厚計 (KLA-Tencor 社製; アルファステップ P 16) を用いて測定した。薄膜の延在する方向に垂直な平面で薄膜を切断したその断面形状はドーム状であった。幅方向の幅は $210\text{ }\mu\text{m}$ であり、膜厚は 59 nm であった。

[0112] (比較例)

実施例において使用した凸版印刷版 12 とは異なる凸版印刷版を使用したこと以外は、実施例と同様にして薄膜を形成した。実施例では凸部に窪みを形成したが、本比較例では凸部に窪みを形成していない凸版印刷版を使用した。すなわち凸部の頂面が平坦な凸版印刷版を使用した。なお凸部に窪みを形成していないことを除けば、比較例と実施例とで使用した凸版印刷版は同じ構成である。

(膜厚測定)

実施例と同様にして薄膜の形状を測定した。薄膜の断面はドーム状であった。薄膜の幅方向の幅は $210\text{ }\mu\text{m}$ 、膜厚は 53 nm であった。実施例の薄膜と比較すると、膜厚の薄い薄膜が形成されていた。

[0113] 以上のように、凸部の表面に窪みを形成することによって印刷される有機 E L インキの量を調整することができ、結果として、形成される薄膜の膜厚を調整することができることを確認した。

符号の説明

[0114] 11 凸部

- 1 2 凸版印刷版
- 1 4 窪み
- 2 1 印刷装置
- 2 2 インキ供給源
- 2 3 転写ロール
- 2 4 版胴
- 2 5 スリットノズル
- 2 6 洗浄機構
- 2 7 被印刷体
- 2 8 搬送テーブル

請求の範囲

- [請求項1] 表面が平坦な転写ロールを使用する凸版印刷法に用いられる凸版印刷版であって、
- 表面に所定の窪みが形成された凸部を有する、凸版印刷版。
- [請求項2] 前記凸部は、点対称となるように配置された複数の前記窪みを有する、請求項1記載の凸版印刷版。
- [請求項3] 互いに所定の間隔をあけて、所定の方向に延在する複数本の前記凸部を有する、請求項1に記載の凸版印刷版。
- [請求項4] 前記凸部は、前記所定の方向に延在する前記窪み、または前記所定の方向に垂直な方向に延在する前記窪みを有する、請求項3記載の凸版印刷版。
- [請求項5] インキ供給源と、
- 前記インキ供給源からインキが供給される、表面が平坦な転写ロールと、
- 前記転写ロールの表面に供給されたインキが転写される、請求項1～4のいずれか1つに記載の凸版印刷版と、
- を備える印刷装置。
- [請求項6] 表面が平坦な転写ロールにインキを供給する工程と、
- 請求項1～4のいずれか1つに記載の凸版印刷版を前記転写ロールに押し当て、前記インキを前記凸版印刷版に転写する工程と、
- 前記凸版印刷版を被印刷体に押し当て、前記インキを印刷する工程と、
- 前記インキを固化し、被印刷体上に薄膜を形成する工程と、
- を備える薄膜の製造方法。
- [請求項7] 一対の電極と、該電極間に設けられる有機EL層とを備える有機EL素子の製造方法であって、
- 一対の電極のうち一方の電極を形成する工程と、
- 表面が平坦な転写ロールに、前記有機EL層となる材料を含む有機

ＥＬインキを供給する工程と、

請求項１～４のいずれか１つに記載の凸版印刷版を前記転写ロールに押し当て、前記有機ＥＬインキを前記凸版印刷版に転写する工程と、

前記凸版印刷版を一对の前記一方の電極に押し当て、前記有機ＥＬインキを印刷する工程と、

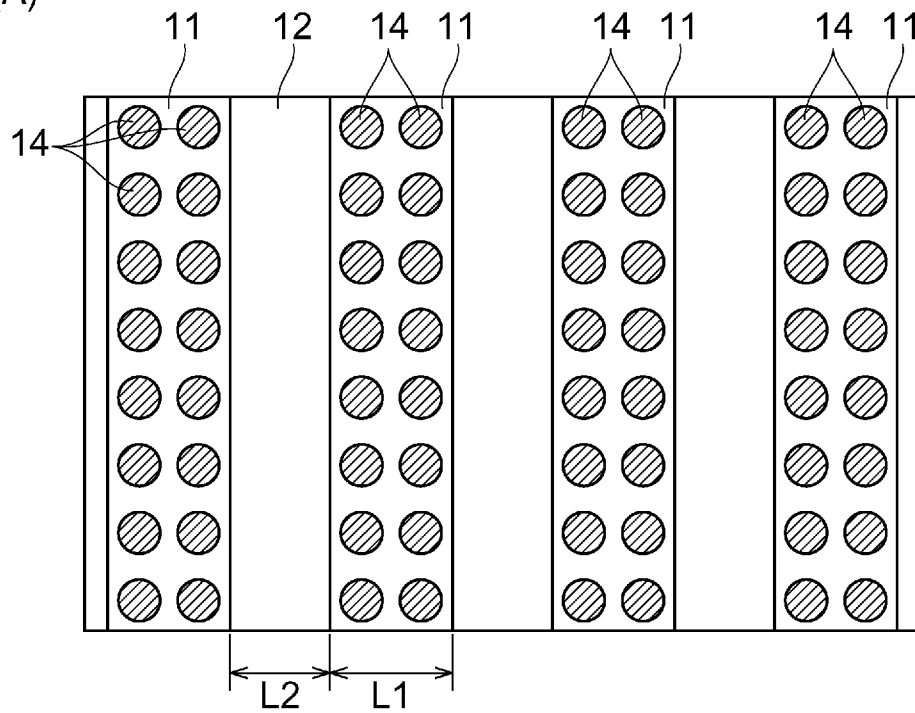
前記有機ＥＬインキを固化し、前記一方の電極上に有機ＥＬ層を形成する工程と、

前記有機ＥＬ層上に一对の電極のうちの他方の電極を形成する工程と、

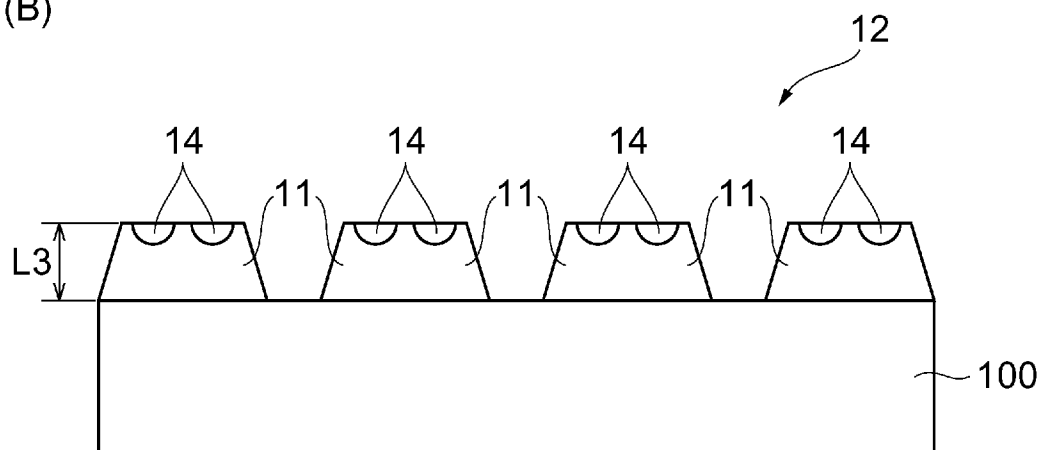
を備える有機ＥＬ素子の製造方法。

[図1]

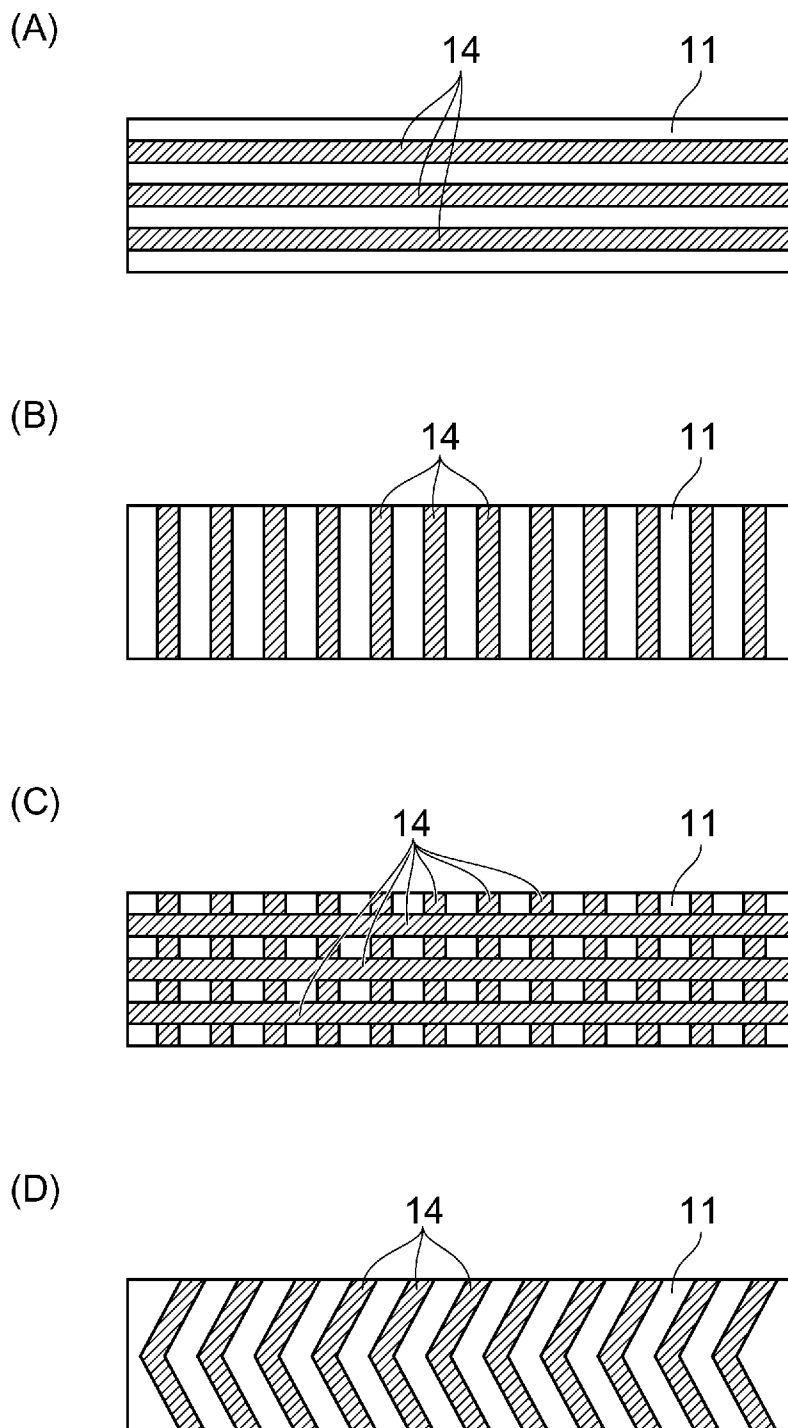
(A)



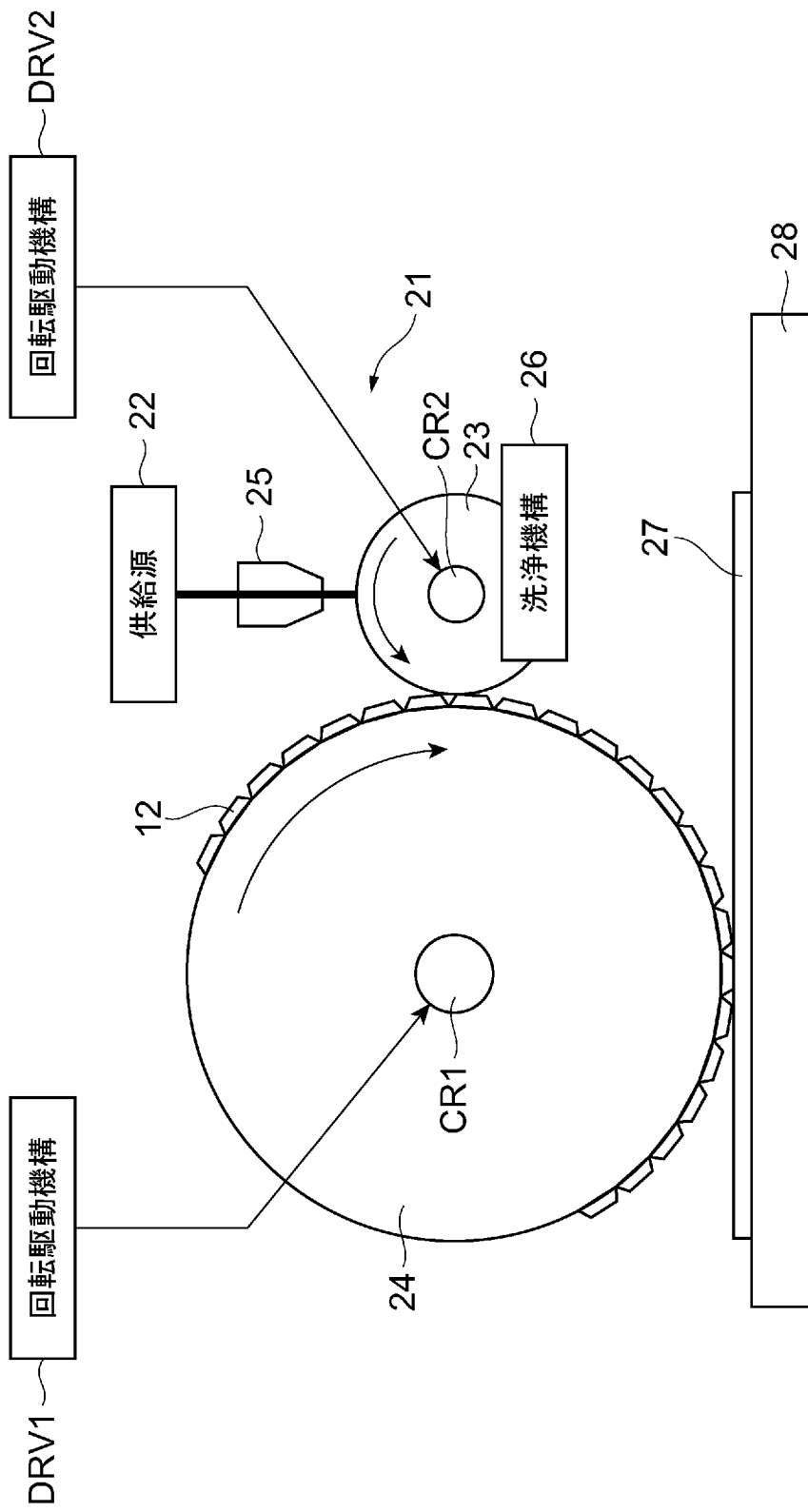
(B)



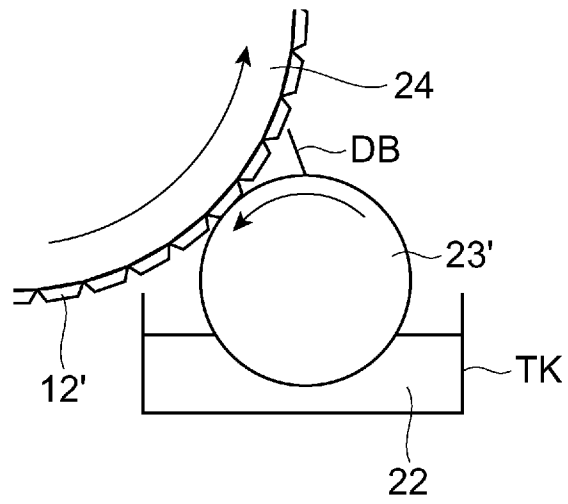
[図2]



[図3]

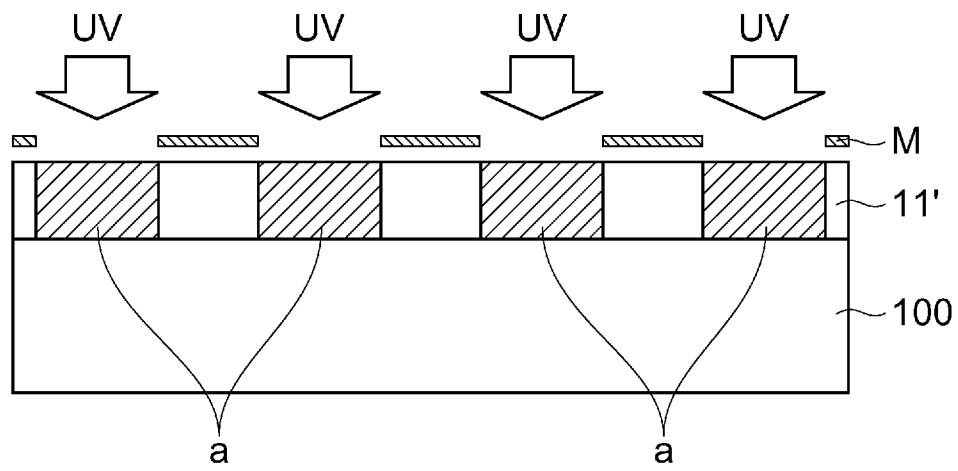


[図4]

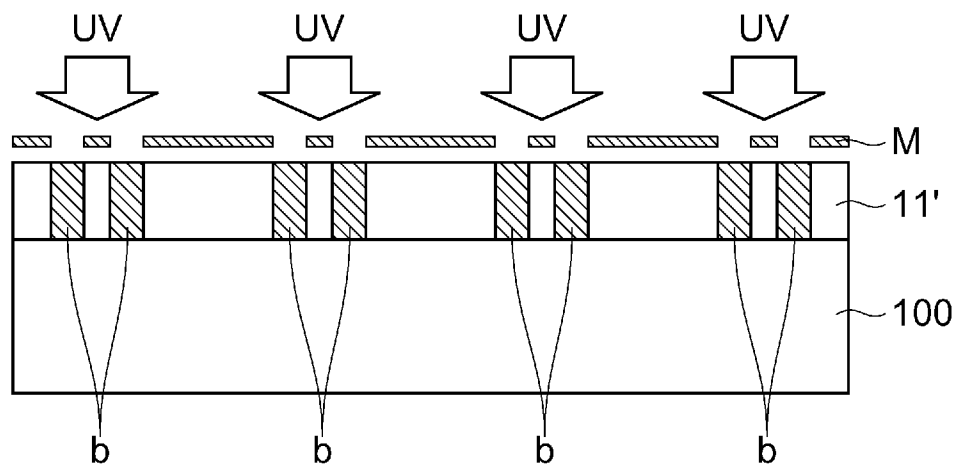


[図5]

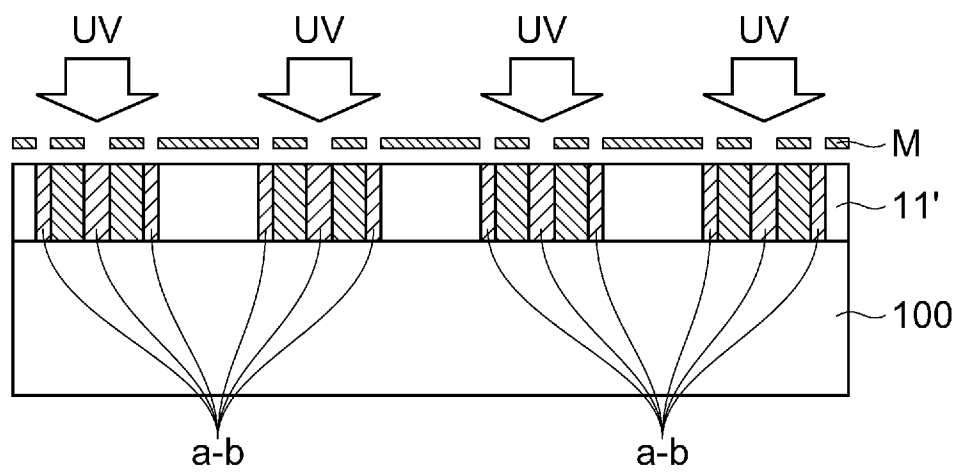
(A)



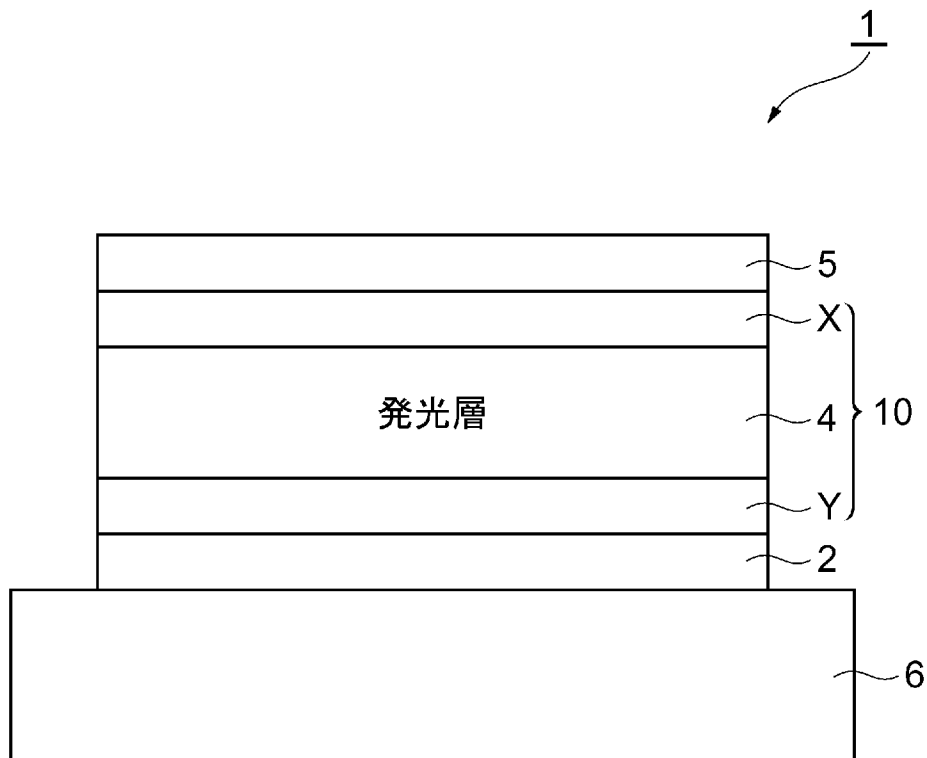
(B)



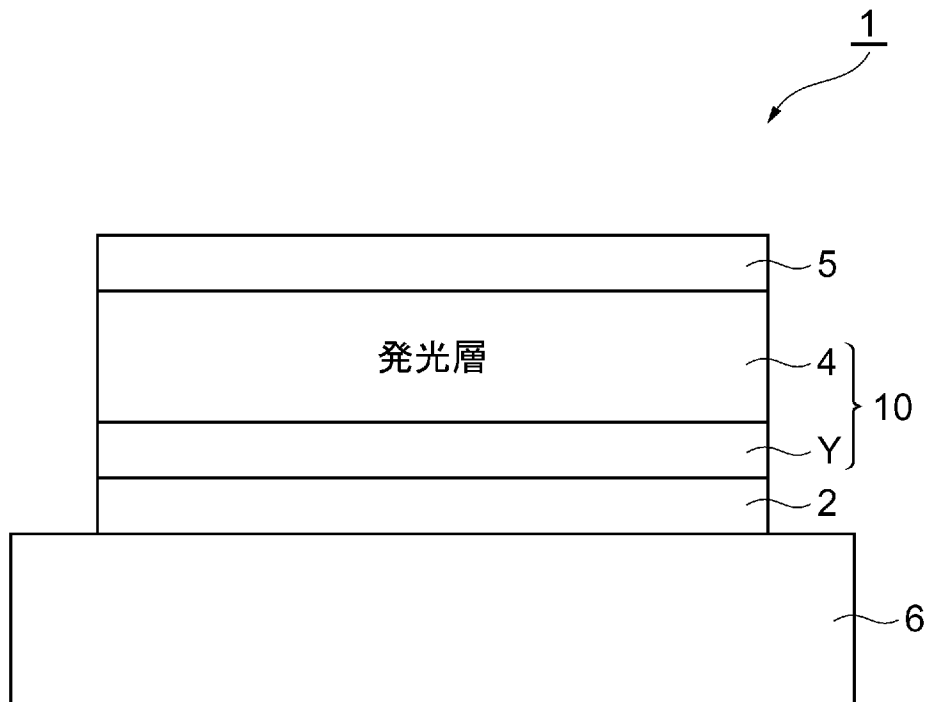
[図6]



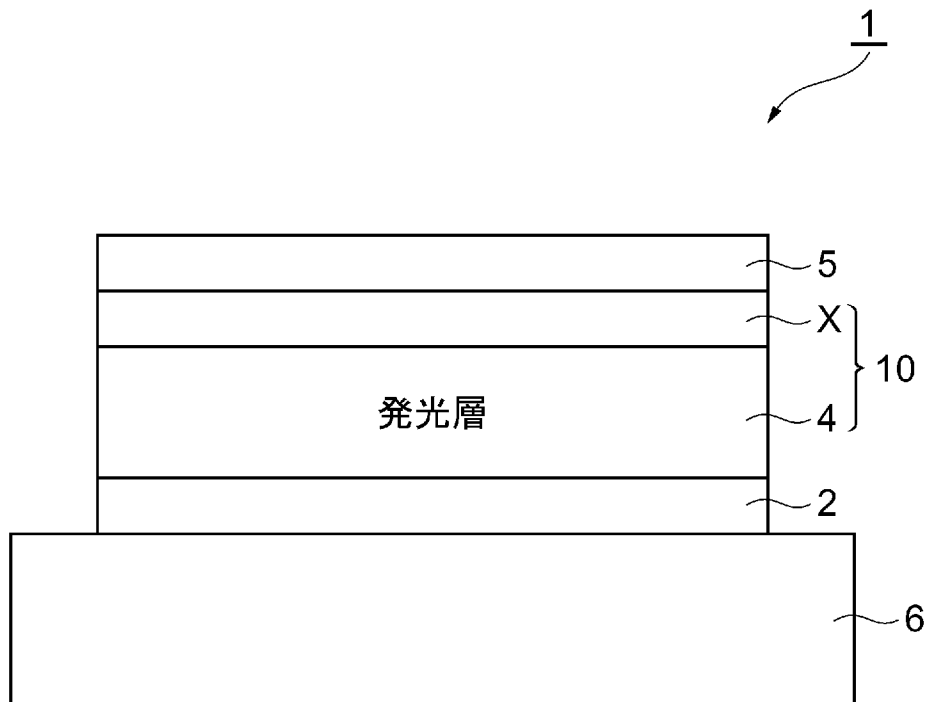
[図7]



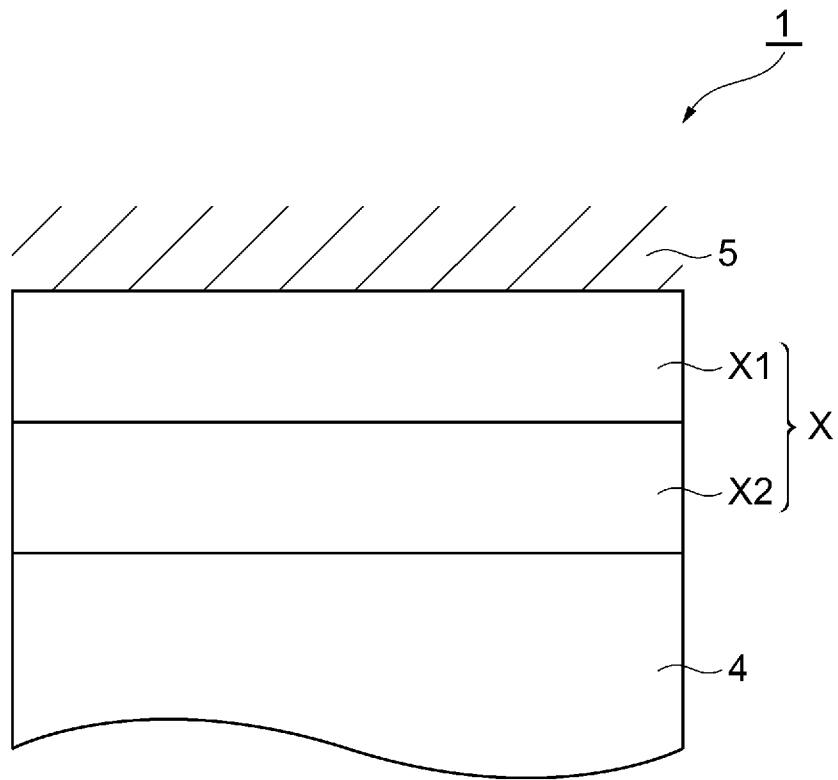
[図8]



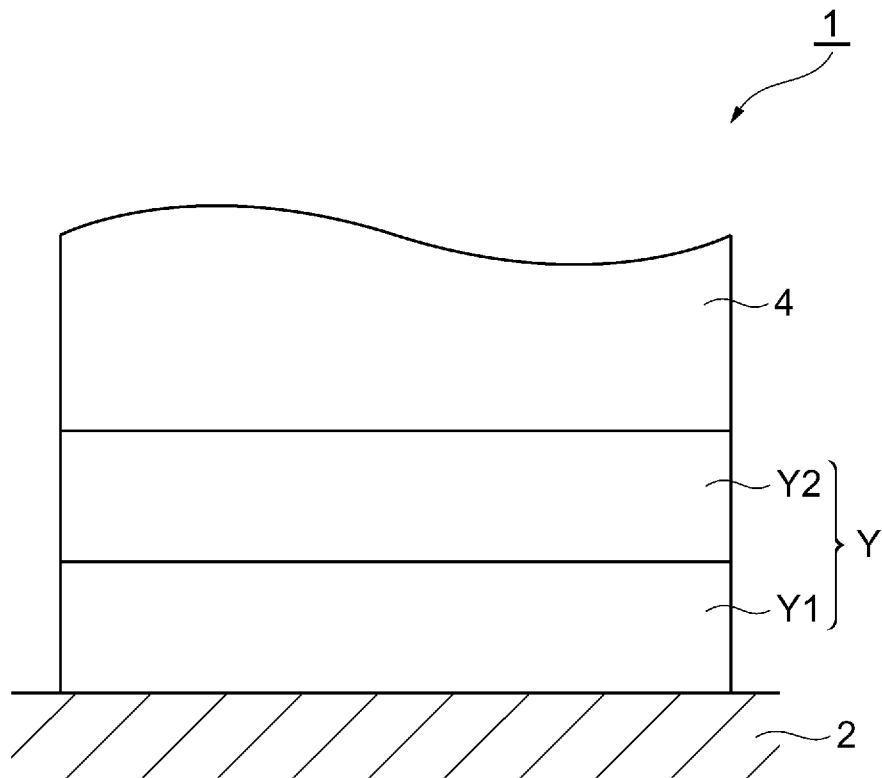
[図9]



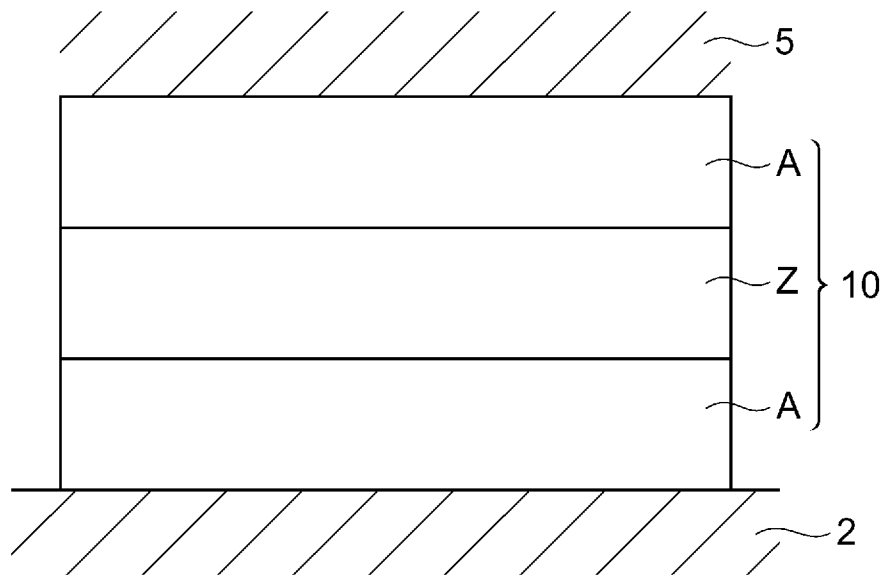
[図10]



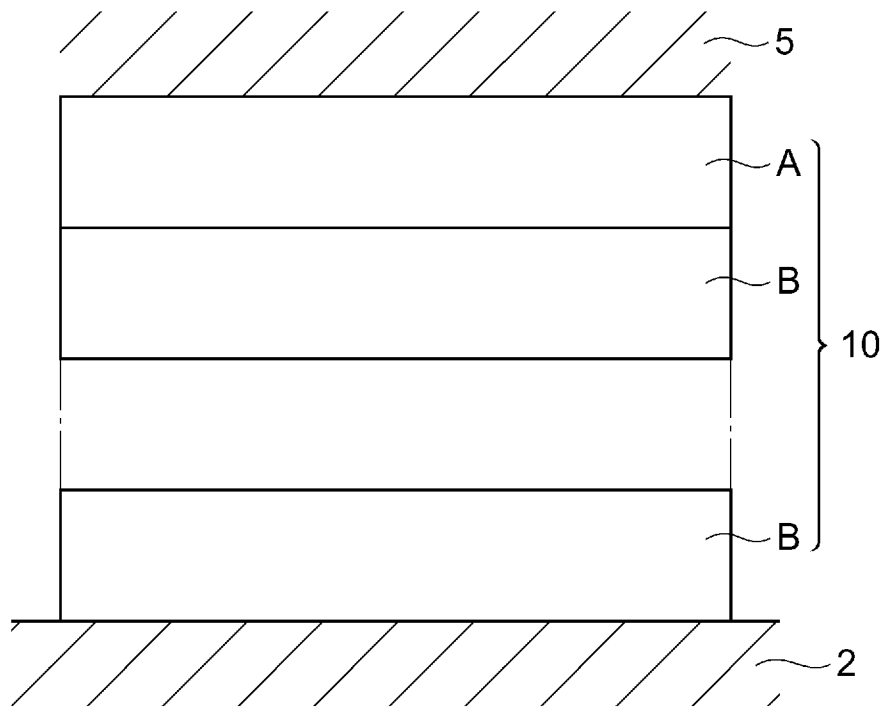
[図11]



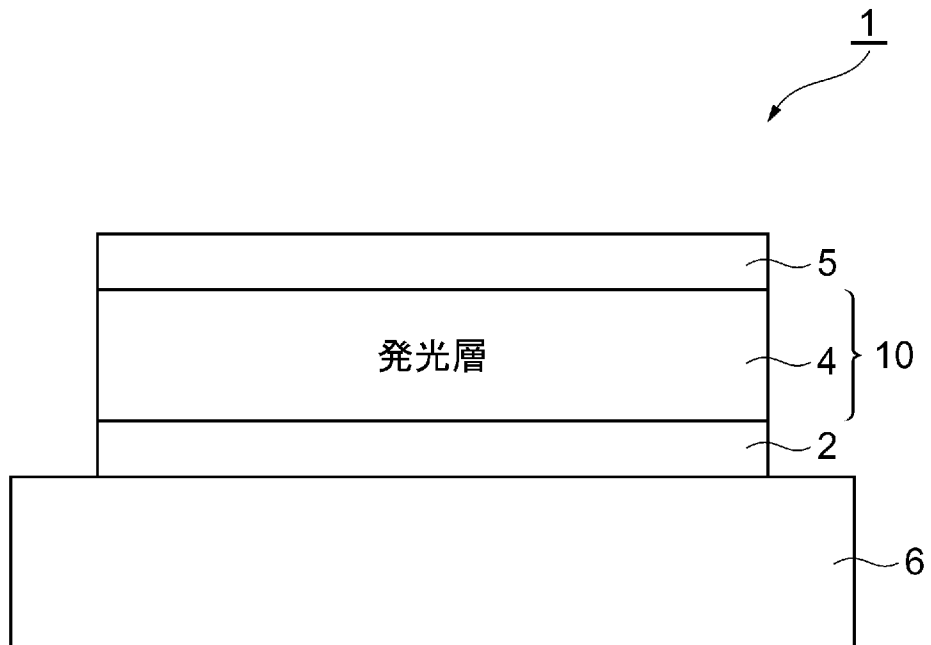
[図12]



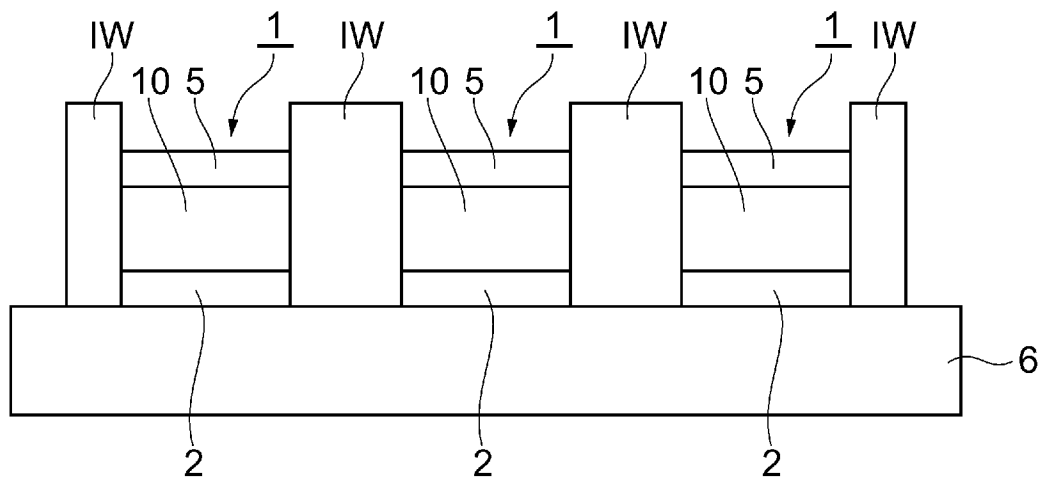
[図13]



[図14]



[図15]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/054040

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/10(2006.01)i, B41M1/02(2006.01)i, B41N1/12(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H05B33/10, B41M1/02, B41N1/12, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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 2009-272143 A (Dainippon Screen Mfg. Co., Ltd.), 19 November 2009 (19.11.2009), paragraphs [0022] to [0033], [0038] to [0040]; fig. 1, 2, 4 to 6 & CN 101579667 A & KR 10-2009-0116643 A	1, 5-7
X	JP 2004-237545 A (Komura Tech Co., Ltd.), 26 August 2004 (26.08.2004), paragraphs [0011] to [0032]; fig. 1 to 7 & US 2004/0185188 A1 & EP 1445116 A2 & DE 602004016232 D & KR 10-2004-0071060 A & CN 1519797 A & HK 1066896 A	1-4

☐ 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
15 March, 2011 (15.03.11)

Date of mailing of the international search report
22 March, 2011 (22.03.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/054040

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See extra sheet.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/054040

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

Document 1 (JP 2009-272143 A (Dainippon Screen Mfg. Co., Ltd.), 19 November 2009 (19.11.2009), [0022] - [0033], [0038] - [0040], [fig. 1], [fig. 2], [fig. 4] - [fig. 6]) discloses a coating apparatus 1 comprising: a supply source 24; a coating-fluid supply roller 21 adapted to be fed with a high-molecular organic EL material from said supply source 24 and having a circumference formed of a flat plane roller; and a printing plate 12, to which the high-molecular organic EL material fed to the surface of said coating-fluid supply roller 21 is transferred, wherein a protruding plane pattern is formed as a pattern section 122 of the printing plate 12, wherein a net pattern M having fine corrugating shape is formed all over the upper face of the pattern section 122, wherein the surface of the coating-fluid supply roller 21 in the coating apparatus 1 is fed on the surface thereof with the high-molecular organic EL material so that a thin film of the high-molecular organic EL material is formed, wherein the high-molecular organic EL material is transferred to the protruding pattern formed on the printing plate 12, and wherein the thin film pattern of the high-molecular organic EL material formed on the printing plate 12 is applied to and printed on a substrate P.

Moreover, document 2 (JP 2004-237545 A (Komura-Tech Co., Ltd.), 26 August 2004 (26.08.2004), [0011] - [0032], [fig. 1] - [fig. 7]) discloses a layer-forming letterpress R2 having a printing ridge 1 formed on the surface thereof, wherein a plurality of fine ridges 12 are distributed and formed on the top surfaces of the printing ridges 1 formed in band shapes and arranged in parallel at a predetermined pitches (intervals) P, wherein grooves 13 are formed between the adjoining fine ridges 12, and wherein the longitudinal direction of said fine ridges 12 is parallel to the longitudinal direction of the band-shaped printing ridges 1.

Therefore, the inventions of claims 1 - 6 are not admitted to involve any novelty to and any special technical feature over the invention disclosed in document 1 or document 2. Hence, the inventions of claims 1 - 7 do not comply with the requirement of unity of invention.

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, B41M1/02(2006.01)i, B41N1/12(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H05B33/10, B41M1/02, B41N1/12, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	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 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 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 9 - 2 7 2 1 4 3 A（大日本スクリーン製造株式会社）2 0 0 9 . 1 1 . 1 9, 【0 0 2 2】 - 【0 0 3 3】, 【0 0 3 8】 - 【0 0 4 0】, 【図1】, 【図2】, 【図4】 - 【図6】 & C N 1 0 1 5 7 9 6 6 7 A & K R 1 0 - 2 0 0 9 - 0 1 1 6 6 4 3 A	1, 5 - 7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「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 5 . 0 3 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

2 2 . 0 3 . 2 0 1 1

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）

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
X	JP 2004-237545 A (株式会社コムラテック) 2004.08.26, 【0011】 - 【0032】, 【図1】 - 【図7】 & US 2004/0185188 A1 & EP 1445116 A2 & DE 602004016232 D & KR 10-2004-0071060 A & CN 1519797 A & HK 1066896 A	1-4

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってP C T 規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。
特別ページ参照。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

文献１（ＪＰ ２００９－２７２１４３ Ａ（大日本スクリーン製造株式会社）２００９．１１．１９，【００２２】－【００３３】，【００３８】－【００４０】，【図１】，【図２】，【図４】－【図６】）には、供給源２４と、該供給源２４から高分子有機ＥＬ材料が供給される、その円周面が平滑な平ローラで構成される塗布液供給ローラ２１と、該塗布液供給ローラ２１の表面に供給された高分子有機ＥＬ材料が転写される印刷版１２とを備える塗布装置１であって、前記印刷版１２のパターン部１２２として凸状平面パターンが形成されており、前記パターン部１２２の上面には、微細な凹凸形状となった網点パターンＭが上面全面に形成されていること、及び、前記塗布装置１においては、塗布液供給ローラ２１の表面に高分子有機ＥＬ材料が供給されて高分子有機ＥＬ材料の薄膜が形成され、この高分子有機ＥＬ材料は印刷版１２に形成された凸状のパターンに転写され、この印刷版１２上に形成された高分子有機ＥＬ材料の薄膜パターンが、基板Ｐ上に印刷塗布されることが記載されている。

また、文献２（ＪＰ ２００４－２３７５４５ Ａ（株式会社コムラテック）２００４．０８．２６，【００１１】－【００３２】，【図１】－【図７】）には、表面に印刷用凸部１が形成されている層形成用凸版Ｒ２であって、帯状に形成されて所定のピッチ（間隔）Ｐで平行に配設されている印刷用凸部１の頂面には、複数の微小突条１２が分布形成されており、隣合う微小突条１２間には、溝部１３が形成されており、上記微小突条１２の長手方向は、帯状の印刷用凸部１の長手方向と平行になっている層形成用凸版Ｒ２が記載されている。

したがって、請求項１－６に係る発明は、文献１あるいは文献２に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しないので、請求項１－７に係る発明は、発明の単一性が欠如している。