

(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
2015年10月8日(08.10.2015)



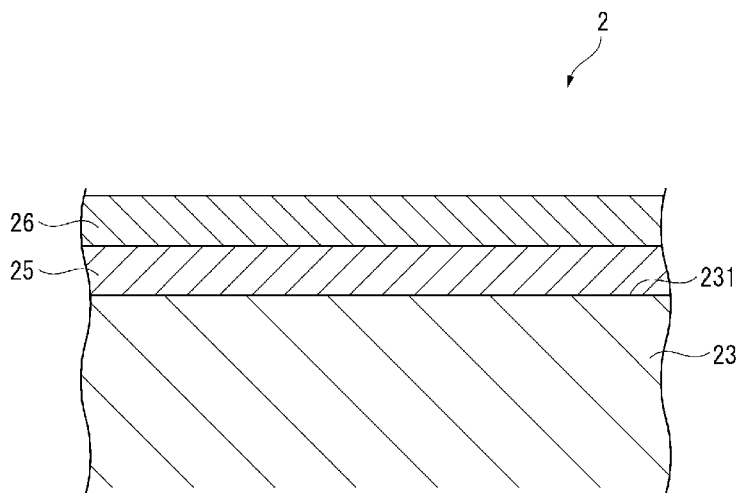
(10) 国際公開番号
WO 2015/151825 A1

- (51) 国際特許分類:
B29C 33/38 (2006.01) B30B 11/02 (2006.01)
B29C 43/02 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
B29C 43/36 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/058182
- (22) 国際出願日: 2015年3月19日(19.03.2015)
- (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 2014-072910 2014年3月31日(31.03.2014) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 重久 大磨 (SHIGEHISA Hiromaro); 〒4371613 静岡県御前崎市合戸2125-3 Shizuoka (JP). 福田 雅彦 (FUKUDA Masahiko); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人樹之下知的財産事務所 (KINOSHITA & ASSOCIATES); 〒1670051 東京都杉並区荻窪五丁目26番13号 荻窪TMビル3階 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, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (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))

(54) Title: COMPRESSION MOLDING DIE, PRODUCTION METHOD FOR COMPRESSION MOLDING DIE, AND PRODUCTION METHOD FOR COMPRESSION-MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称: 圧縮成形金型、圧縮成形金型の製造方法、及び圧縮成形体の製造方法



(57) Abstract: A compression molding die for pressurizing and compressing a material for organic EL elements and forming a compression-molded article. A nitride film including a nitride is laminated on a metal surface of the compression molding die that comes in contact with the material for organic EL elements during compression and a fluoride film including a fluoride formed by an immersion method is laminated on the nitride film.

(57) 要約: 有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を成形するための圧縮成形金型であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面には、窒化物を含む窒化物膜が積層され、前記窒化物膜には、浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている。

WO 2015/151825 A1

明 細 書

発明の名称：

圧縮成形金型、圧縮成形金型の製造方法、及び圧縮成形体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、圧縮成形金型、圧縮成形金型の製造方法、及び圧縮成形体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、圧縮成形金型の成形室内に粉末材料を充填し、パンチで圧縮して成形する方法が採用されている。

また、近年は、電子デバイス等に用いられる有機材料の粉末材料を圧縮成形する方法が検討されている。このような有機電子材料素子の一对の電極間に設けられる有機層は、一般的に真空加熱蒸着することで形成される。蒸着源に入れる有機素子用材料は一般的に粉末状であるが、粉末状であると、充填効率が低く、またハンドリング性に劣り、粉末が飛散したりする問題が生じていたからである。

先行技術文献

特許文献

- [0003] 特許文献1：韓国公開特許10-2009-0097318号公報
特許文献2：特開平2-297411号公報
特許文献3：実用新案登録第3163163号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明の目的は、粉末材料の圧縮成形後に、成形体から材料が部分的に剝離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる圧縮成形金型、圧縮成形金型の製造方法および圧縮成形体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

- [0005] 本発明の一態様によれば、有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を成形するための圧縮成形金型であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面には、窒化物を含む窒化物膜が積層され、前記窒化物膜には、浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形金型が提供される。
- [0006] 本発明の別の態様によれば、貫通孔を有する本体と、前記貫通孔の互いに異なる貫通孔入口からそれぞれ挿入され、前記本体の内部の成形室に充填された有機EL素子用材料を加圧するための加圧面がそれぞれ設けられている第1パンチ及び第2パンチと、を備え、前記加圧面に窒化物を含む窒化物膜および浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形金型が提供される。
- [0007] 本発明の別の態様によれば、有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を成形するための圧縮成形金型の製造方法であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面に、窒化物膜を形成する工程と、前記窒化物膜が形成された面をフッ化物を含有するフッ化物含有溶液に浸漬する工程と、前記フッ化物含有溶液を乾燥させてフッ化物膜を形成する工程と、を有する圧縮成形金型の製造方法が提供される。
- [0008] 本発明の別の態様によれば、有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を製造する圧縮成形体の製造方法であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面には、窒化物を含む窒化物膜が積層され、前記窒化物膜には、浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形体の製造方法が提供される。
- [0009] 本発明の圧縮成形金型、圧縮成形金型の製造方法および圧縮成形体の製造方法によれば、粉末材料の圧縮成形後に、成形体から材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる。

図面の簡単な説明

- [0010] [図1]一実施形態に係る圧縮成形装置の構成を示す一部断面概略図である。

[図2]前記実施形態に係る圧縮成形金型の表面を拡大して示す拡大断面概略図である。

[図3A]前記実施形態に係る圧縮成形金型を用いて実施する圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図3B]前記実施形態に係る圧縮成形金型を用いて実施する圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図3C]前記実施形態に係る圧縮成形金型を用いて実施する圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図3D]前記実施形態に係る圧縮成形金型を用いて実施する圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図3E]前記実施形態に係る圧縮成形金型を用いて実施する圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図4A]図3A～図3Eで説明する圧縮成形体の製造方法とは異なる圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図4B]図3A～図3Eで説明する圧縮成形体の製造方法とは異なる圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

[図4C]図3A～図3Eで説明する圧縮成形体の製造方法とは異なる圧縮成形体の製造方法を説明する図である。

発明を実施するための形態

[0011] <第一実施形態>

(1) 圧縮成形装置の構成

図1には、本実施形態に係る圧縮成形装置1の概略図が示されている。

本実施形態では、有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を製造する。

圧縮成形装置1は、圧縮成形金型2と、ベース部10と、ベース部10に互いに平行に立設された2本のガイドバー11と、ガイドバー11の上端に連結された上部フレーム12と、ベース部10および上部フレーム12の間にて支持されている下部可動板13、中部可動板14および上部可動板15

とを備える。図1に示すように、下部可動板13、中部可動板14および上部可動板15は、ベース部10側からこの順に互いに平行に設けられている。また、下部可動板13、中部可動板14および上部可動板15は、ガイドバー11に沿って上下方向にそれぞれ独立に移動可能に設けられている。なお、下部可動板13、中部可動板14および上部可動板15は、図示しない油圧シリンダ等の液体圧式駆動機構、エアシリンダ等の空気圧式駆動機構、あるいはカムもしくはクランク機構等の機械式駆動機構により移動できるように構成されている。

[0012] 圧縮成形金型2は、本体20と、第1パンチ23と、この第1パンチ23と対向して設けられる第2パンチ24とを備える。本体20は、中部可動板14の略中央部に交換可能に取り付けられている。本体20は、図1に示すように、上下に貫通する貫通孔21を有する。この貫通孔21に、第1パンチ23および第2パンチ24が挿入されて、圧縮成形金型2の内部に有機EL素子用材料を充填するための成形室22が形成される。成形室22は、成形すべき圧縮成形体の形状を成している。成形室22の形状、すなわち圧縮成形体の形状は、円柱状であったり、楕円柱状であってもよいし、横断面が半円形、扇形、三角形、四角形等の多角形であったり、小判型であったりしてもよい。また、圧縮成形体は、中実体でも中空体でもよい。

[0013] 第1パンチ23および第2パンチ24は、成形室22に充填された有機EL素子用材料を互いに反対方向から加圧して圧縮する。第1パンチ23および第2パンチ24は、貫通孔21に挿入可能に設けられている。

第1パンチ23は、下部可動板13の上面に固定されている。第1パンチ23は、下部可動板13が上下方向に移動することで、貫通孔21の軸方向に移動するように構成されている。第1パンチ23は、貫通孔21の他方の貫通孔入口21bから挿入される。第2パンチ24は、上部可動板15の下面に固定されている。第2パンチ24は、上部可動板15が上下方向に移動することで、貫通孔21の軸方向に移動するように構成されている。第2パンチ24は、貫通孔21の一方の貫通孔入口21aから挿入される。第1パ

ンチ 23 および第 2 パンチ 24 は、貫通孔 21 よりも若干小さく形成されていることが好ましい。挿入された第 1 パンチ 23 の側面と貫通孔 21 の内周面 21c との間、並びに第 2 パンチ 24 の側面と貫通孔 21 の内周面 21c との間に隙間が形成され、成形室 22 内の粉末材料から脱気された気体が、当該隙間を通過して排出されることが好ましい。

第 1 パンチ 23 および第 2 パンチ 24 のそれぞれの端部には、有機 EL 素子用材料を加圧する第 1 加圧面 231 および第 2 加圧面 241 が設けられている。本実施形態では、第 1 パンチ 23 の第 1 加圧面 231 および第 2 パンチ 24 の第 2 加圧面 241 は、平坦な面である。第 1 パンチ 23 の第 1 加圧面 231 と、第 2 パンチ 24 の第 2 加圧面 241 と、本体 20 の貫通孔 21 の内周面 21c とで、成形室 22 が形成される。成形室 22 に有機 EL 素子用材料が充填され、第 1 パンチ 23 および第 2 パンチ 24 で上下方向から加圧することで、第 1 加圧面 231 と第 2 加圧面 241 との間で圧縮されて圧縮成形体を得られる。

[0014] 図 2 には、本実施形態に係る圧縮成形金型 2 の表面の一部として、第 1 パンチ 23 の一部を拡大して示す断面概略図が示されている。

第 1 パンチ 23 の第 1 加圧面 231 は、加圧および圧縮時に有機 EL 素子用材料と接触する金属面である。図 2 に示すように、第 1 加圧面 231 には、窒化物を含む窒化物膜 25 が積層されている。さらに、窒化物膜 25 の上には、フッ化物を含むフッ化物膜 26 が積層されている。

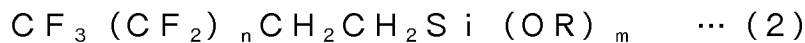
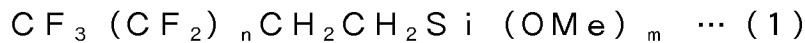
第 2 パンチ 24 の第 2 加圧面 241、および本体 20 の貫通孔 21 の内周面 21c も、加圧および圧縮時に有機 EL 素子用材料と接触する金属面である。第 2 加圧面 241、および内周面 21c にも、第 1 加圧面 231 と同様に、窒化物膜 25 およびフッ化物膜 26 が積層されている。本実施形態では、第 1 加圧面 231、第 2 加圧面 241、および内周面 21c に積層されたフッ化物膜 26 は、浸漬法によって形成されている。

[0015] 本実施形態において、窒化物膜 25 としては、窒化チタンアルミ、窒化チタンカーバイド、窒化クロム、窒化チタン、窒化チタンシリコン、および窒

化チタンアルミシリコンからなる群から選択される窒化物で構成されることが好ましく、窒化チタンアルミで構成されることがより好ましい。本実施形態では、窒化物膜 25 は、物理気相蒸着法で成膜した窒化チタンアルミで構成される。

[0016] フッ化物膜 26 は、フッ化炭素系化合物で構成されることが好ましい。フッ化炭素系化合物は、フッ化炭素で形成される鎖状部位と、他の物質と結合する反応基とで構成される。フッ化炭素系化合物としては、例えば、パーフルオロアルキルシラン類、パーフルオロポリエーテル基含有シラン化合物類などが挙げられる。

パーフルオロアルキルシラン類としては、下記式 (1) や式 (2) で表される化合物が挙げられる。



ただし、前記式 (1) において、 n は、1, 3, 5, または 7 であり、 m は、2 または 3 であり、 Me は、メチル基またはエチル基である。

また、前記式 (2) において、 n は、1, 3, 5, または 7 であり、 m は、2 または 3 であり、 R は、ハロゲン元素である。

前記式 (1) や式 (2) で表される化合物の具体例としては、 $\text{CF}_3 (\text{CF}_2)_5 \text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si} (\text{OCH}_3)_3$ (例えば、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ製の TSL8257)、 $\text{CF}_3 (\text{CF}_2)_7 \text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si} (\text{OCH}_3)_3$ (例えば、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ製の TSL8233)、 $\text{CF}_3 (\text{CF}_2)_7 \text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si} (\text{OCH}_3)_2$ (例えば、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ製の TSL8231、または信越化学工業製の KBM7803)、 $\text{CF}_3 (\text{CF}_2)_7 \text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si} (\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ (例えば、東レ・ダウコーニング製の AY43-158E) などが挙げられる。

パーフルオロポリエーテル基含有シラン化合物類には、パーフルオロポリエーテル変性アミノシラン、パーフルオロポリエーテル変性ポリシラザンな

どがある。具体的には、例えば、信越化学工業製のKY-164、ダイキン工業製のオプツールシリーズなどが挙げられる。

[0017] フッ化物膜26は、浸漬法によって形成されれば特に限定されないが、例えば、フッ化炭素系化合物を含有するフッ化物含有溶液に、圧縮成形金型2を浸漬させ、浸漬後、フッ化物含有溶液を乾燥させることで形成される。本実施形態では、第1パンチ23、第2パンチ24および本体20をフッ化物含有溶液に浸漬させる。その際、少なくとも、第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cをフッ化物含有溶液に浸漬させ、乾燥させて、各面にフッ化物膜26を形成させる。

[0018] さらに、本実施形態では、第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cの中心線平均粗さRaが0.5 μ m以下であることが好ましく、0.1 μ m以下であることがより好ましい。本実施形態では、フッ化物膜26が各面の表層に存在するので、フッ化物膜26表面の中心線平均粗さRaが0.5 μ m以下であれば、圧縮成形後、有機EL素子用材料がこれらの面に付着しにくくなり、圧縮成形体からの剥離が抑制される。

[0019] 圧縮成形装置1は、成形室22内部から外部へ気体を排出する脱気手段を有することが好ましく、圧縮成形金型2の本体20、第1パンチ23および第2パンチ24の少なくともいずれかが、脱気手段を有することが好ましい。本実施形態では、第1パンチ23は、脱気手段としての図示しない振動装置を有する。貫通孔21の貫通孔入口21bから第1パンチ23が挿入され、貫通孔21の内周面21cと第1パンチ23の第1加圧面231とで形成された凹部に粉末材料を充填する。充填後、第1パンチ23を当該振動装置により振動させることで、充填状態の粉末材料から脱気して成形室22の外部へと排出する。

[0020] (2) 圧縮成形金型の製造方法

次に、圧縮成形金型2の製造方法について説明する。

まず、加圧および圧縮時に有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型2の金属面に、窒化物をコーティングして窒化物膜25を形成する工程を実施

する。本実施形態では、少なくとも、第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cに窒化物膜25を形成する。窒化物膜25は、窒化物を各面にコーティングすることで形成される。窒化物膜25は、例えば、物理気相蒸着（Physical Vapor Deposition, PVD）法や化学気相蒸着（Chemical Vapor Deposition, CVD）法などによって形成することができる。窒化物膜25の形成前には、第1パンチ23の表面、第2パンチ24の表面、並びに本体20の表面および内周面21cを清浄化しておくことが好ましい。清浄化処理としては、例えば、表面研磨処理、有機溶媒等に浸漬させて行う超音波洗浄処理、アルゴンイオン等によるボンバード処理などが挙げられ、これらの処理を組み合わせ実施してもよい。

[0021] 次に、第1パンチ23、第2パンチ24および本体20をフッ化物含有溶液に浸漬させる。その際、少なくとも、窒化物膜25が形成されている第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cをフッ化物含有溶液に浸漬させる。その後、フッ化物含有溶液を乾燥させて、各面にフッ化物膜26を形成させる。フッ化物含有溶液は、常温で乾燥させてもよいし、加熱して乾燥させてもよい。

[0022] 本実施形態では、フッ化物含有溶液は、フッ化物および溶媒を含む。フッ化物は、上述のフッ化炭素系化合物で構成されることが好ましい。溶媒としては、フッ化物を溶解させ得ることができる溶媒であれば特に限定されないが、有機溶媒が好ましい。有機溶媒としては、例えば、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル系溶媒、ジオキサン、ジエチルエーテルなどのエーテル系溶媒、ブチルアルコールなどのアルコール系溶媒、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶媒などが挙げられる。溶媒としては、1種類からなる単独の溶媒でもよいし、複数種類を混合させた混合溶媒でもよい。

フッ化物含有溶液を乾燥させる際に、溶媒を除去するとともに、フッ化物を窒化物膜25に化学結合させてフッ化物膜26を形成することが好ましい。窒化物膜25にフッ化物を化学結合させる際には、予め窒化物膜25に活

性化処理を施しておくことが好ましい。活性化処理によって窒化物膜 25 の表面に活性化処理を施して活性化層が形成される。この窒化物膜 25 の表面に形成された活性化層に対して、フッ化物を化学結合させることが好ましい。活性化層を形成するための活性化処理を行うことで、窒化物膜 25 の表面に付着した汚れが分解されて清浄化され、窒化物膜表面には分子結合手を有する活性化層が形成され、この分子結合手に水酸基が吸着し、フッ化炭素系化合物の反応基と反応して結合し易くなる。

[0023] 活性化処理としては、特に限定されないが、物理的な方法としては、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、フレイム処理などが挙げられる。化学的な方法としては、酸およびアルカリの少なくともいずれかの溶液に浸漬させる処理、酸化剤処理、オゾン処理などが挙げられる。これらの活性化処理の中でも、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、オゾン処理が、窒化物膜 25 の表面の損傷を防止できるため好ましく、プラズマ処理および紫外線照射処理が、窒化物膜 25 の表面を活性化する効率が高くさらに好ましい。

[0024] フッ化物膜 26 を形成した後、未反応のフッ化物を除去する工程を実施することが好ましい。未反応フッ化物を除去することでフッ化物膜 26 の表面、すなわち有機 EL 素子用材料と接触する面を清浄にすることができる。フッ化物を除去する方法は、特に限定されないが、溶媒でフッ化物膜 26 を洗浄することが好ましく、フッ化物含有溶液に用いた溶媒と同じ種類の溶媒を用いて洗浄することがより好ましい。

[0025] 以上のようにして、圧縮成形金型 2 の第 1 パンチ 23、第 2 パンチ 24、および本体 20 に、窒化物膜 25 およびフッ化物膜 26 を含む積層膜が形成される。

[0026] (3) 圧縮成形体の製造方法

次に、圧縮成形装置 1、および圧縮成形金型 2 を用いて実施する圧縮成形体の製造方法について説明する。

図 3 A ~ 図 3 E には、圧縮成形体の製造方法の各工程における圧縮成形金

型2の本体20、第1パンチ23および第2パンチ24について記載され、その他の構成は省略されている。圧縮成形金型2を用いて実施する本実施形態の圧縮成形体の製造方法は、有機EL素子用材料を充填し、単軸に沿った加圧力で成形する方法である。

[0027] まず、図3Aに示すように、第1加圧面231を貫通孔21の内部に向けて、第1パンチ23を挿入する。このとき、第1加圧面231が貫通孔21内の所定深さ寸法の位置に到達するまで挿入する。この深さ寸法は、圧縮成形体の厚さ寸法等によって設定される。

[0028] 次に、図3Bに示すように、第1加圧面231によって底面が形成された貫通孔21の内部に、粉末状の有機EL素子用材料Pを充填する。有機EL素子用材料Pを充填後、第1パンチ23を前述の振動装置によって振動させて、脱気処理を行う。

[0029] 次に、図3Cに示すように、第2加圧面241を貫通孔21の内部に向けて、第2パンチ24を挿入し、第1パンチ23の第1加圧面231と対向させることで、貫通孔21の内周面21cと、第1加圧面231と、第2加圧面241とで、成形室22を形成する。そして、第1加圧面231と、第2加圧面241との間で有機EL素子用材料Pを圧縮することで、圧縮成形体Qが成形される。本実施形態では、第1パンチ23および第2パンチ24が移動して、有機EL素子用材料Pを両側から加圧する両押し方式で行う例を挙げて説明するが、この方式に限定されない。

圧縮圧力は、11MPa以上であることが好ましい。また、本体20の内周面21c、第1パンチ23の第1加圧面231、および第2パンチ24の第2加圧面241の表面温度が、10℃以上であることが好ましい。

[0030] 次に、図3Dに示すように、第1パンチ23の第1加圧面231と、第2パンチ24の第2加圧面241との間で圧縮成形体Qを挟み込んだまま、第1パンチ23および第2パンチ24を上昇移動させて、圧縮成形体Qを貫通孔21から抜き出す。第1パンチ23および第2パンチ24の上昇移動は、第1パンチ23の第1加圧面231が、本体20の上面と一致したところで

停止することが好ましい。第1パンチ23および第2パンチ24は、圧縮成形体Qに作用している応力が一気に解放されないよう、低速度で上昇移動させることが好ましい。

[0031] 次に、図3Eに示すように、第2パンチ24を上昇移動させて、圧縮成形体Qの上面を開放する。その後、第1加圧面231上に載置されている圧縮成形体Qを取り出す。このようにして有機EL素子用材料を圧縮して得た圧縮成形体Qを用いて、有機EL素子の製造方法を実施することが好ましい。

[0032] 本実施形態の有機EL素子用材料は、結合剤や滑沢剤などの成形助剤が混合されていない。有機EL素子用材料は、有機EL素子に用いられる材料であって特に限定されず、例えば、正孔輸送層に用いられる正孔輸送性材料、発光層に用いられるホスト材料、ドーパント材料、電子輸送層に用いられる電子輸送性材料などが挙げられる。また、有機EL素子用材料は、複数種類の有機EL素子用材料が混合されて構成されていてもよい。

[0033] 本実施形態において、成形前の有機EL素子用材料Pの平均粒径D50（メジアン径）は、小さい方が好ましい。有機EL素子用材料Pの平均粒径D50が小さくなるほど、圧縮成形体の硬度を向上させることができる。有機EL素子用材料Pの平均粒径D50は、70 μ m以下であることが好ましく、45 μ m以下であることがより好ましく、30 μ m以下であることがさらに好ましい。有機EL素子用材料Pの粒径分布において、最大粒径と最少粒径との差が小さいことが好ましい。

なお、有機EL素子用材料Pの平均粒径D50が、上述の好ましい範囲を満たしていることが本実施形態において好適である。

[0034] (3) 本実施形態の効果

本実施形態に係る圧縮成形金型2では、有機EL素子用材料Pが充填される成形室22は、第1パンチ23の第1加圧面231、第2パンチ24の第2加圧面241、および本体20の貫通孔21の内周面21cとで形成される。第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cには、窒化物膜25およびフッ化物膜26が積層されている。フッ化物膜26は、浸漬

法によって形成されている。その結果、圧縮成形後に圧縮成形体Qから材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる。また、圧縮成形体Qの表面を滑らかに成形することができる。浸漬法によってフッ化物膜26が第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cに均一形成されているためと考えられる。

なお、従来、刷毛塗り等の塗布法でフッ化物含有溶液を塗布し、加熱乾燥にてフッ化物膜を形成しているが、このような方法では、フッ化物膜が均一に形成され難く、有機EL素子用材料が金型表面に付着し易く、圧縮成形体の表面は、荒れてしまう。その結果、圧縮成形体から材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりする量が増えてしまい、成形後の圧縮成形体の重量が10%以上減少し、重量減少が著しい。

[0035] 本実施形態では、有機EL素子用材料Pを充填後、第1パンチ23を前述の振動装置によって振動させて、脱気処理を行うことで、充填された有機EL素子用材料P中に含まれていた気体を除去できる。また、本実施形態では、第1加圧面231と、第2加圧面241との間で有機EL素子用材料Pを圧縮する際の圧縮圧力は、11MPa以上である。その結果、有機EL素子用材料Pの粒子同士がより密に充填され、圧縮成形後に圧縮成形体Qから材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる。

[0036] 本実施形態では、成形助剤が含有されていない有機EL素子用材料を例に挙げて説明した。成形後の剥離等が生じた圧縮成形体は、その硬度が十分でない。その結果、圧縮成形体の割れなどが発生することによって、圧縮成形体の重量を正確に把握することが困難となり、有機EL素子の生産性の向上を図ることができない。一方で、本実施形態に係る圧縮成形金型2、および圧縮成形金型2を用いた圧縮成形体の製造方法によれば、圧縮成形体Qから材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる。そのため、蒸着源への圧縮成形体の供給回数を減らすことができ、有機EL素子の生産性の向上を図ることができる。

[0037] また、第1加圧面231、第2加圧面241、および内周面21cにおいては、フッ化物膜26の内層側に窒化物膜25が形成されているため、フッ化物膜26の耐摩耗性を向上させることができる。

[0038] <変形例>

なお、本発明は、上述した実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲で、以下に示される変形等をも含む。

[0039] 圧縮成形金型2の金属面に積層させる積層膜は、前記実施形態の構成に限定されない。例えば、窒化物膜25とフッ化物膜26との間に、前述の活性化層とは異なる層を介在させてもよいし、活性化層の形成を省略して直接、窒化物膜25とフッ化物膜26とを積層させた2層構成の積層膜としてもよい。

[0040] 圧縮成形装置1に設けられる脱気手段は、振動装置に限定されず、例えば、超音波発生装置、タッピング装置、真空脱気装置であってもよい。脱気手段としては、成形室22に充填された粉末材料から脱気することができればよい。また、脱気手段は、第1パンチ23に設けられる場合に限定されず、第2パンチ24や本体20に設けられていてもよい。

[0041] 圧縮成形金型2の貫通孔21の貫通孔入口21aにはテーパ加工が施されていてもよい。このテーパ加工は、貫通孔21の内部から貫通孔入口21aに向かって孔径が拡大するように施されている。このテーパ加工部分においても、窒化物膜25およびフッ化物膜26の積層膜が形成されていることが好ましい。なお、貫通孔入口21bにもテーパ加工が施されていてもよい。

[0042] なお、圧縮成形体Qを圧縮成形金型2から抜き出す方法は、上記実施形態で説明した方法に限定されない。

例えば、図4Aに示すように、本体20を下降移動させる。図4Bに示すように、本体20の下降移動は、本体20の上面が、第1パンチ23の第1加圧面231と一致したところで停止することが好ましい。本体20は、圧縮成形体Qに作用している応力が一気に解放されないよう、低速度で下降移動させることが好ましい。次に、図4Cに示すように、第2パンチ24を上

昇移動させて、圧縮成形体Qの上面を開放する。その後、第1加圧面231上に載置されている圧縮成形体Qを取り出す。

[0043] 圧縮成形方法は、上記実施形態で説明した方法に限定されない。例えば、フローティングダイ方式によって圧縮成形を行ってもよい。フローティングダイ方式では、第2パンチ24で加圧し、本体20の貫通孔21の内周面21cと、有機EL素子用材料との間で摩擦力が次第に増大し、本体20の支え力よりも大きくなると、本体20は中部可動板14と共に下降する。このとき、第1パンチ23は、相対的に上昇したことになる。その後、第2パンチ24を上昇させて、圧縮成形体を取り出す。このようなフローティングダイ方式によれば、圧縮成形体の厚み方向での密度調整が可能になる。その他、ウィズドロアル方式や、第2パンチ24のみが下降する片押し方式等を採用することができる。これらの方式を採用する場合においても、第1パンチ23の第1加圧面231、第2パンチ24の第2加圧面241、および本体20の貫通孔21の内周面21cに、窒化物膜25およびフッ化物膜26の積層膜を形成することで、圧縮成形後に圧縮成形体Qから材料が部分的に剥離したり、成形体表面から粉末が飛散したりすることを抑制できる。

[0044] また、圧縮成形金型に関しても、前記実施形態で説明した機構や形状などに限定されず、粉末状の材料を加圧および圧縮して、圧縮成形体を形成できる機構および形状の金型であればよい。

符号の説明

[0045] 1…圧縮成形装置、2…圧縮成形金型、21…貫通孔、21a, 21b…貫通孔入口、21c…内周面、22…成形室、23…第1パンチ、231…第1加圧面、24…第2パンチ、241…第2加圧面、P…粉末材料、Q…圧縮成形体。

請求の範囲

- [請求項1] 有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を成形するための圧縮成形金型であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面には、窒化物を含む窒化物膜が積層され、前記窒化物膜には、浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形金型。
- [請求項2] 貫通孔を有する本体と、前記貫通孔の互いに異なる貫通孔入口からそれぞれ挿入され、前記本体の内部の成形室に充填された有機EL素子用材料を加圧するための加圧面がそれぞれ設けられている第1パンチ及び第2パンチと、を備え、前記加圧面に窒化物を含む窒化物膜および浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形金型。
- [請求項3] 請求項2に記載の圧縮成形金型において、前記貫通孔の内周面にも前記窒化物膜および前記フッ化物膜が積層されている圧縮成形金型。
- [請求項4] 請求項1から請求項3のいずれか一項に記載の圧縮成形金型において、前記窒化物膜は、窒化チタンアルミ、窒化チタンカーバイド、窒化クロム、窒化チタン、窒化チタンシリコン、および窒化チタンアルミシリコンからなる群から選択される窒化物で構成される圧縮成形金型。
- [請求項5] 請求項1から請求項4のいずれか一項に記載の圧縮成形金型において、前記フッ化物は、フッ化炭素系化合物である圧縮成形金型。
- [請求項6] 有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を成形するための圧縮成形金型の製造方法であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面に、窒化物膜を形成する工程と、前記窒化物膜が形成された面をフッ化物を含有するフッ化物含有溶液に浸漬する工程と、前記フッ化物含有溶液を乾燥させてフッ化物膜を形成する工程と、を有する圧縮成形金型の製造方法。
- [請求項7] 請求項6に記載の圧縮成形金型の製造方法において、前記フッ化物

含有溶液は、前記フッ化物および溶媒を含み、前記フッ化物膜を形成する工程で、前記溶媒を除去するとともに、前記フッ化物を前記窒化物膜に化学結合させて前記フッ化物膜を形成し、前記フッ化物膜を形成した後に、未反応のフッ化物を除去する圧縮成形金型の製造方法。

[請求項8] 請求項7に記載の圧縮成形金型の製造方法において、前記未反応のフッ化物を除去する際に、前記フッ化物含有溶液に含まれていた前記溶媒と同じ種類の溶媒で前記フッ化物膜を洗浄する圧縮成形金型の製造方法。

[請求項9] 請求項6から請求項8のいずれか一項に記載の圧縮成形金型の製造方法において、前記窒化物膜に、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、フレイム処理、酸およびアルカリの少なくともいずれかの溶液に浸漬させる処理、酸化剤処理、並びにオゾン処理のうち少なくともいずれかの活性化処理を施した後で、前記窒化物膜が形成された面を前記フッ化物含有溶液に浸漬する圧縮成形金型の製造方法。

[請求項10] 請求項9に記載の圧縮成形金型の製造方法において、前記活性化処理は、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、またはオゾン処理である圧縮成形金型の製造方法。

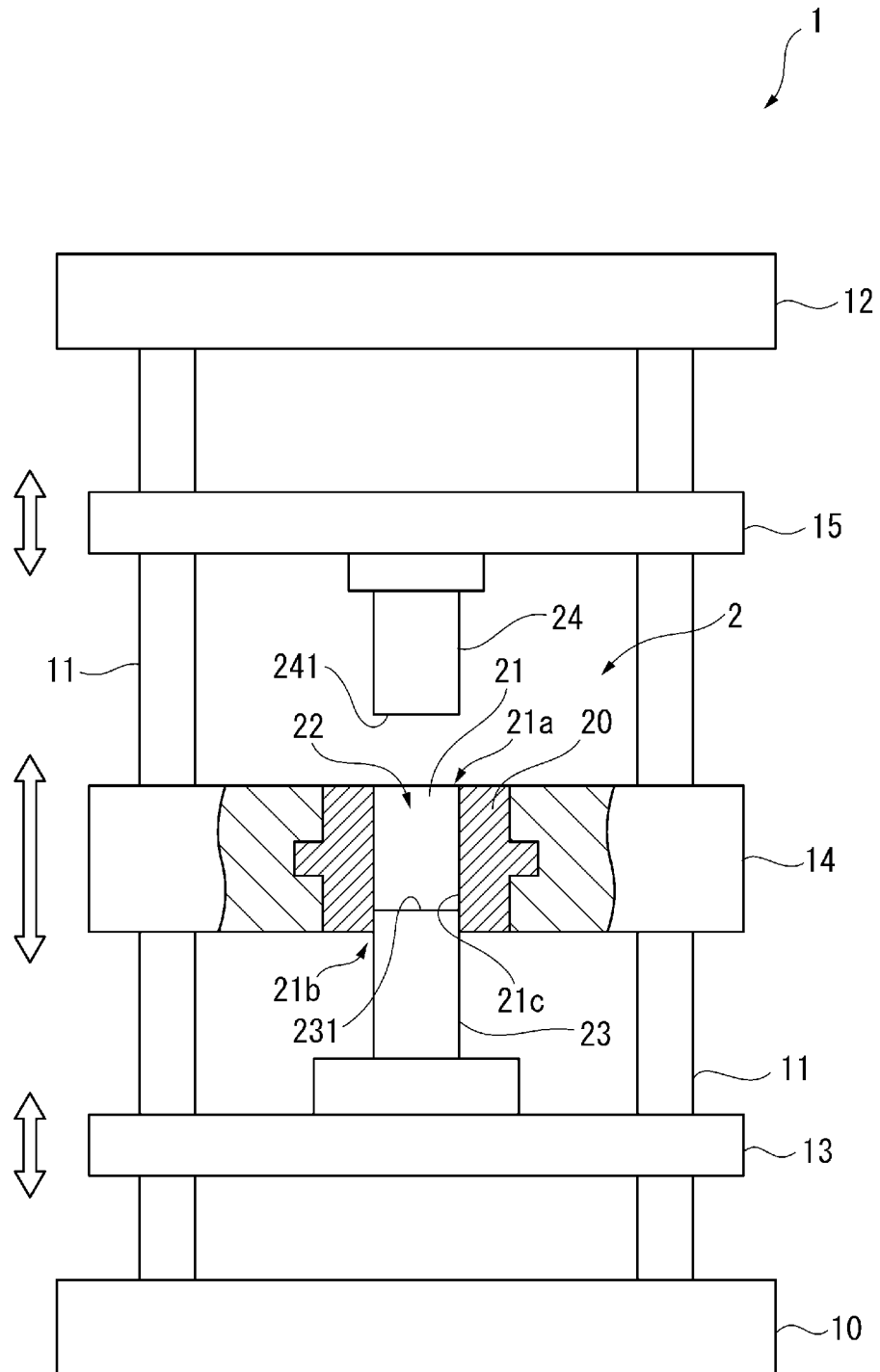
[請求項11] 請求項9に記載の圧縮成形金型の製造方法において、前記活性化処理は、プラズマ処理または紫外線照射処理である圧縮成形金型の製造方法。

[請求項12] 有機EL素子用材料を加圧および圧縮して圧縮成形体を製造する圧縮成形体の製造方法であって、圧縮時に前記有機EL素子用材料と接触する圧縮成形金型の金属面には、窒化物を含む窒化物膜が積層され、前記窒化物膜には、浸漬法によって形成されたフッ化物を含むフッ化物膜が積層されている圧縮成形体の製造方法。

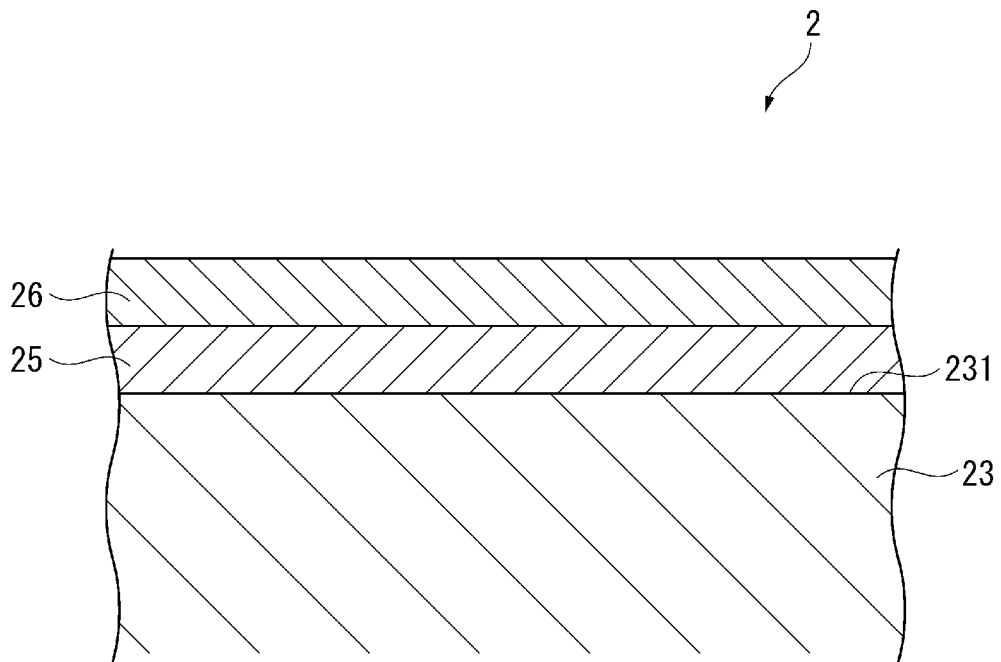
[請求項13] 請求項12に記載の圧縮成形体の製造方法において、前記窒化物膜は、窒化チタンアルミ、窒化チタンカーバイド、窒化クロム、窒化チタン、窒化チタンシリコン、および窒化チタンアルミシリコンからな

る群から選択される窒化物で構成される圧縮成形体の製造方法。

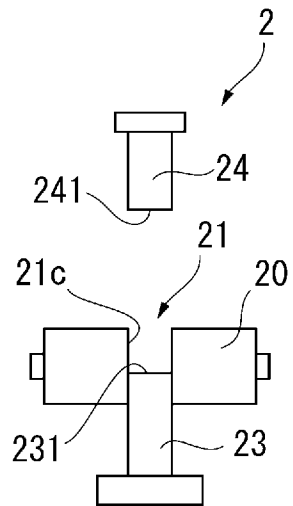
[図1]



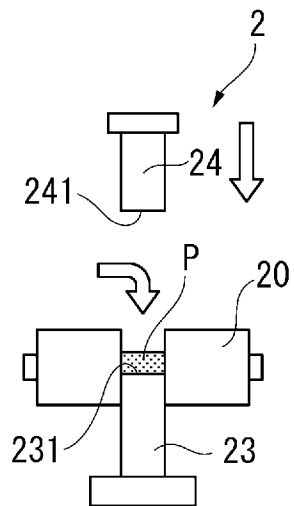
[図2]



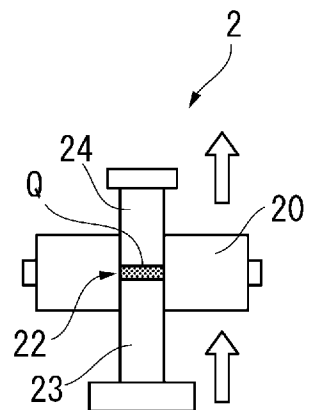
[図3A]



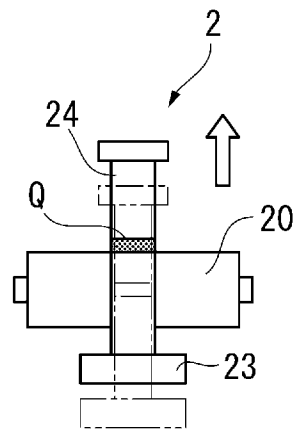
[図3B]



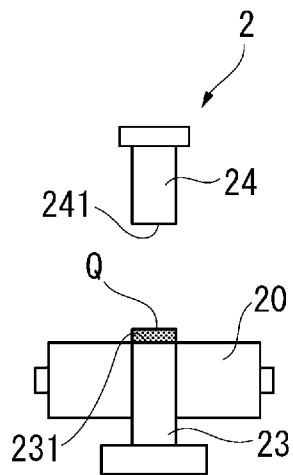
[図3C]



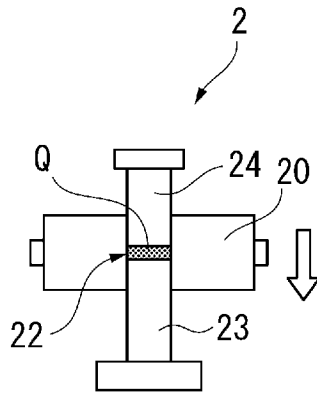
[図3D]



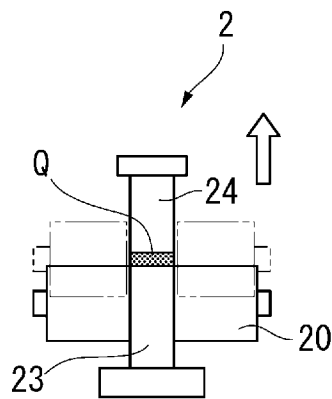
[図3E]



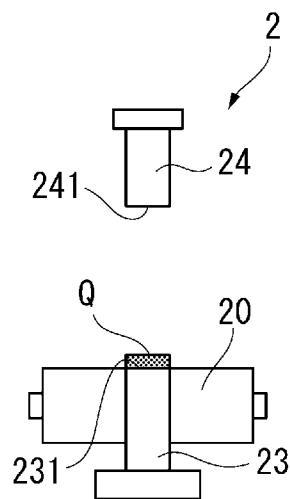
[図4A]



[図4B]



[図4C]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2015/058182

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29C33/38(2006.01)i, B29C43/02(2006.01)i, B29C43/36(2006.01)i, B30B11/02(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B29C33/00-33/76, B29C43/00-43/58, B30B11/02, H01L51/50, H05B33/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-273456 A (Eastman Kodak Co.), 30 September 2004 (30.09.2004), claim 1 & US 2004/0173929 A1 & EP 1454736 A2 & KR 10-2004-0081008 A & CN 1527647 A & TW 200420190 A	1-13
A	JP 2000-61952 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 29 February 2000 (29.02.2000), claim 1; paragraph [0001] (Family: none)	1-13

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 14 April 2015 (14.04.15)	Date of mailing of the international search report 21 April 2015 (21.04.15)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/058182

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 3-272815 A (Nippon Tungsten Co., Ltd.), 04 December 1991 (04.12.1991), claims; page 2, upper right column, line 13 to page 2, lower left column, line 1 (Family: none)	1-13
A	JP 3-254910 A (Hitachi Tool Engineering Ltd.), 13 November 1991 (13.11.1991), claims (Family: none)	1-13
A	JP 2002-1733 A (Fuji Die Co., Ltd.), 08 January 2002 (08.01.2002), claim 1; paragraph [0010] (Family: none)	1-13
A	JP 2008-112977 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 15 May 2008 (15.05.2008), claim 1; paragraphs [0007] to [0011] (Family: none)	1-13
A	JP 3-216298 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 24 September 1991 (24.09.1991), claims (Family: none)	1-13
A	JP 2012-56246 A (Fuji Film Kabushiki Kaisha), 22 March 2012 (22.03.2012), claims 1, 3; paragraphs [0064], [0065] (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. B29C33/38(2006.01)i, B29C43/02(2006.01)i, B29C43/36(2006.01)i, B30B11/02(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. B29C33/00-33/76, B29C43/00-43/58, B30B11/02, H01L51/50, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2015年
 日本国実用新案登録公報 1996-2015年
 日本国登録実用新案公報 1994-2015年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2004-273456 A（イーストマンコダックカンパニー） 2004.09.30, 【請求項1】 & US 2004/0173929 A1 & EP 1454736 A2 & KR 10-2004-0081008 A & CN 1527647 A & TW 200420190 A	1-13
A	JP 2000-61952 A（住友電気工業株式会社） 2000.02.29, 【請求項1】, 【0001】（ファミリーなし）	1-13

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 14.04.2015	国際調査報告の発送日 21.04.2015
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 阿川 寛樹 電話番号 03-3581-1101 内線 3469	4 R	5797
--	---	-----	------

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 3-272815 A (日本タングステン株式会社) 1991. 12. 04, 特許請求の範囲, 第 2 頁右上欄第 13 行 - 第 2 頁左下 欄第 1 行 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 3-254910 A (日立ツール株式会社) 1991. 11. 13, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2002-1733 A (富士ダイス株式会社) 2002. 01. 08, 【請求項 1】, 【0010】 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2008-112977 A (日立化成工業株式会社) 2008. 05. 15, 【請求項 1】, 【0007】 - 【0011】 (ファミリ ーなし)	1-13
A	JP 3-216298 A (出光興産株式会社) 1991. 09. 24, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2012-56246 A (富士フィルム株式会社) 2012. 03. 22, 【請求項 1】, 【請求項 3】, 【0064】, 【0065】 (フ ァミリーなし)	1-13