

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2010年4月1日(01.04.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/035337 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/04 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/067542
- (22) 国際出願日: 2008年9月26日(26.09.2008)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 富士電機ホールディングス株式会社(Fuji Electric Holdings Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒2100856 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 内海 誠(UTSUMI, Makoto) [JP/JP]; 〒1918502 東京都日野市富士町1番地 富士電機アドバンステクノロジー株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 谷 義一, 外(TANI, Yoshikazu et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂2丁目6-2 O Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: ORGANIC EL DEVICE AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: 有機ELデバイスおよびその製造方法

(57) Abstract: A long-term stable organic EL device using a protective layer with high visible light transmittance and excellent dampproof property and a method for manufacturing the same. The organic EL device comprises a substrate, an organic EL element formed on the substrate and including a lower electrode, an organic EL layer, an upper electrode, and a protective layer, and a protective substrate bonded onto the organic EL element by a bonding layer. The protective layer is a stack of a first layer closest to the upper electrode to an n-th layer (n is an integer of 3 or more). Each layer of the protective layer is made of silicon oxynitride or silicon nitride. Two adjacent layers of the protective layer have different chemical compositions. The first layer of the protective layer has a lower refractive index than the upper electrode. The n-th layer of the protective layer has a higher refractive index than the bonding layer. Regarding each integer k between 2 and n, the refractive index (k) of the k-th layer of the protective layer satisfies the relationship of refractive index (k-1) > refractive index (k).

(57) 要約: 本発明は、高い可視光透過率および優れた防湿性を有する保護層を用いて、長期にわたる安定性を有する有機ELデバイスおよびその製造方法を提供することである。本発明の有機ELデバイスは、基板と、基板上に形成され、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層からなる有機EL素子と、有機EL素子上に接着層を介して貼り合せられた保護基板を含み、保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層(nは3以上の整数である)までの積層体であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2層は異なる化学組成を有し、保護層の第1層は、上部電極よりも小さい屈折率を有し、保護層の第n層は、接着層よりも大きな屈折率を有し、および2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層の屈折率(k)は、屈折率(k-1) > 屈折率(k)の関係を満たす。

WO 2010/035337 A1

明 細 書

有機ELデバイスおよびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ディスプレイ用途において有用な有機ELデバイスおよびその製造方法に関する。より詳細には、外部環境からの水分の侵入を防止し、長期間にわたって優れた発光効率を示す有機ELデバイスおよびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、ディスプレイ用途において、自発光型の有機EL素子を用いた有機ELデバイスの研究が盛んに行われている。有機ELデバイスは、高い発光輝度および発光効率を実現することが期待されている。なぜなら、低電圧で高い電流密度が実現できるからである。特に、マルチカラー表示、特にフルカラー表示が可能な高精細な多色発光有機ELデバイスの実用化が、ディスプレイの技術分野において期待されている。

[0003] 有機ELデバイスをカラーディスプレイとして実用化する上での重要な課題は、高い精細度を実現することに加えて、色再現性を含め長期的な安定性を有することである。しかしながら、多色発光有機ELデバイスには、一定期間の駆動により発光特性(電流－輝度特性)が著しく低下するという欠点を有している。

[0004] この発光特性の低下原因の代表的なものは、ダークスポットの成長である。「ダークスポット」とは、発光欠陥点を意味する。このダークスポットは、素子中の酸素または水分により、駆動時および保存中に有機EL素子の構成層の材料の酸化または凝集が進行することによって、発生すると考えられている。ダークスポットの成長は、通電中はもちろん、保存中にも進行する。特に、ダークスポットの成長は、(1)素子の周囲の外部環境に存在する酸素または水分により加速され、(2)構成層中に吸着物として存在する酸素または水分に影響され、および(3)デバイス製造に用いられる部品に吸着している水分あるいは製造時における水分の侵入に影響される、と考えられている。その成長が継続すると、ダークスポットが有機ELデバイスの発光面全体に広がっていく。

[0005] 従来、有機EL素子の構成層への水分の浸入を防止する手段として、金属缶、ガラス板を用いて有機EL素子を封止する方法、あるいは、有機EL素子を封止した空間内に乾燥剤を配置する方法が行われてきている。しかしながら、軽量かつ薄型という有機ELデバイスの特徴を生かすために、乾燥剤を用いずに、薄膜で封止する技術が注目されている。

[0006] 封止用の薄膜として、窒化ケイ素、酸化窒化ケイ素などが用いられている。しかしながら、それら材料の製膜時における発光層へのダメージを抑制するために、製膜面の温度上昇を少なくとも発光層のガラス転移温度以下に抑制する必要がある。このため、有機ELデバイスに対して半導体プロセスで開発されてきた製膜方法を適用できず、十分な防湿性を有する封止用の薄膜が形成できないという課題がある。

[0007] これに対して、特開2005-209356号公報において、有機ELデバイスに適用可能な封止用薄膜として、スパッタ法またはプラズマCVD法によって形成される酸化窒化ケイ素膜が提案されている(特許文献1参照)。特許文献1には、高いガスバリア性と高い光透過率を両立するため、組成を連続的かつ傾斜的に変化させた傾斜酸化窒化ケイ素膜を用いること、または、酸化窒化ケイ素膜と窒化ケイ素膜との2層積層膜を用いることが開示されている。

[0008] また、特開2005-222778号公報において、有機ELデバイス適用可能な封止用薄膜として、圧縮応力を有する窒化ケイ素膜と引張応力を有する窒化ケイ素膜との積層膜が提案されている(特許文献2参照)。特許文献2には、窒化ケイ素膜中に形成されるSi-H結合の数によって、圧縮応力および引張応力の大きさ、および窒化ケイ素膜の屈折率を制御できることを開示している。しかしながら、積層膜を形成する窒化ケイ素膜中の主結合がSi-Nであるため、各層間の格子定数の変化が小さく、下地となる層の欠陥を引き継いで、欠陥を含む窒化ケイ素膜が形成される問題点が存在する。

[0009] 特許文献1:特開2005-209356号公報

特許文献2:特開2005-222778号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0010] 近年、アクティブマトリクス駆動型の有機ELデバイスの開口率を向上させるため、TFTなどを含むスイッチング回路を作製した基板の反対側に光を取り出す、いわゆるトップエミッション型構造のデバイスが主となってきている。この構造では、有機EL層の上に透明電極および封止膜が形成され、有機EL層を発する光は封止膜を通して外部へと放出される。上部電極として用いられるITOやIZOの屈折率はおよそ2であり、外気や光取り出し方向に形成される接着層、保護基板との屈折率差が大きい。特許文献1の封止膜は、光の進行方向に対する屈折率の規定がないため、透過率が低くなる欠点がある。

[0011] また、保護膜の製膜過程において連続的に製膜ガスの比率を変化させる方法は、原子配列の不整合点や、段差部などで生じる膜の成長方向の違いによって形成される界面等の膜欠陥が連続成長してしまうため、この膜欠陥により局所的に防湿性が低くなる可能性がある。

[0012] 本発明の目的は、高い可視光透過率および優れた防湿性を有する保護層を用いることによって、長期にわたる安定性を有する有機ELデバイスを提供することである。本発明の別の目的は、前述のような有機ELデバイス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

[0013] 本発明の有機ELデバイスは、基板と、前記基板上に形成される有機EL素子と、有機EL素子上に接着層を介して貼り合せられた保護基板を含み、前記有機EL素子は、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層からなり、前記保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、保護層の第1層は、上部電極よりも小さい屈折率を有し、保護層の第n層は、接着層よりも大きな屈折率を有し、および、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層の屈折率(k)は、 $\text{屈折率}(k-1) > \text{屈折率}(k)$ の関係を満たすことを特徴とする。

[0014] 本発明の有機ELデバイスは、基板と、前記基板上に形成される有機EL素子と、有機EL素子上に接着層を介して貼り合せられた保護基板を含み、前記有機EL素子

は、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層からなり、前記保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第k層のSi-N結合に対するSi-O結合のストレッチングモードのピーク面積比Si-O/Si-N面積比(k)は、Si-O/Si-N面積比(k-1) < Si-O/Si-N面積比(k) の関係を満たし、保護層中の第n層に関するSi-O/Si-N面積比(n)は、0.8以下であり、および、1からnまでの整数mのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第m層のSi-N結合に対するN-H結合のストレッチングモードのピーク面積比N-H/Si-N面積比(m)は、0.1未満であることを特徴とする。

[0015] 本発明の有機ELデバイスの製造方法は、前述の有機ELデバイスを製造する方法であって、基板上に、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層を順次形成して、有機EL素子を形成する工程と、接着層を介して、該有機EL素子に対して保護基板を貼り合わせる工程とを含み、前記保護層を形成する各層は、モノシラン、アンモニア、亜酸化窒素(N_2O)および窒素を原料ガスとして用い、モノシランガスに対するアンモニアガスの流量比が0.5以上1.0未満であり、モノシランガスに対する亜酸化窒素ガスの流量比が0以上、0.8未満であるプラズマCVD法によって形成され、および、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層を形成する際の亜酸化窒素ガスの流量(k)は、流量(k-1) < 流量(k) の関係を満たすことを特徴とする。

[0016] 本発明の有機ELデバイスの製造法において、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層中の第k-1層の形成終了時に放電およびガスの導入を停止し、第k層形成のためのガスの導入を行い、次いで放電を開始してもよい。

発明の効果

[0017] より発光効率の高い有機ELディスプレイの開発が要請されている近年の状況において、本発明は、優れた防湿性を有する保護層を用いることによって、長期間にわたって優れた発光効率を維持することができる有機ELデバイスを提供することができる。また、本発明の保護層は高い可視光透過率を有するため、本発明の構成は、特に

トップエミッション型有機ELデバイスにおいて有効である。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]図1は、本発明の有機ELデバイスの1つの例を示す断面図である。

[図2]図2は、モノシランガスに対する亜酸化窒素ガスの流量比と屈折率の変化を示す図である。

[図3]図3は、窒化ケイ素膜中のSi-N結合およびSi-O結合の比を決定するためのIRスペクトルを示す図である。

[図4]図4は、窒化ケイ素膜中のSi-N結合およびSi-O結合の比を決定するために、ピーク分離を施したIRスペクトルを示す図である。

[図5]図5は、亜酸化窒素ガスの流量比と赤外吸収スペクトルの変化を示す図である。

符号の説明

- [0019]
- 10 基板
 - 11 透明支持体
 - 20 有機EL素子
 - 21 下部電極
 - 22 有機EL層
 - 23 上部電極
 - 24 保護層
 - 30 保護基板
 - 40 色変換カラー層
 - 50 接着層

発明を実施するための最良の形態

[0020] 図1に本発明の有機ELデバイスの1つの例を示す。本発明の有機ELデバイスは、基板10と、基板10上に形成される有機EL素子20と、有機EL素子20上に接着層50を介して貼り合せられた保護基板30を含み、有機EL素子20は、下部電極21、有機EL層22、上部電極23および保護層24からなり、保護層24は、上部電極23に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護

層24中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層24中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、保護層24の第1層は、上部電極23よりも小さい屈折率を有し、保護層24の第n層は、接着層50よりも大きな屈折率を有し、および、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層24の第k層の屈折率(k)は、屈折率(k-1) > 屈折率(k)の関係を満たすことを特徴とする。なお、図1においては、色変換カラー層40が載置されている保護基板30を用い、有機EL素子20と色変換カラー層40とが対向する位置にある例を示した。

[0021] また、本発明の有機ELデバイスは、基板10と、基板10上に形成される有機EL素子20と、有機EL素子20上に接着層50を介して貼り合せられた保護基板30を含み、有機EL素子20は、下部電極21、有機EL層22、上部電極23および保護層24からなり、保護層24は、上部電極23に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層24中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層24中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層24中の第k層のSi-N結合に対するSi-O結合のストレッチングモードのピーク面積比Si-O/Si-N面積比(k)は、Si-O/Si-N面積比(k-1) < Si-O/Si-N面積比(k)の関係を満たし、保護層24中の第n層に関するSi-O/Si-N面積比(n)は、0.8以下であり、および、1からnまでの整数mのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層24中の第m層のSi-N結合に対するN-H結合のストレッチングモードのピーク面積比N-H/Si-N面積比(m)は、0.1未満であることを特徴とする。

[0022] 前述の有機ELデバイスは、基板10上に、下部電極21、有機EL層22、上部電極23および保護層24を順次形成して、有機EL素子20を形成する工程と、接着層50を介して、有機EL素子20に対して保護基板30を貼り合わせる工程とを含む方法によって製造することができる。当該方法において、保護層24を形成する各層は、モノシラン、アンモニア、亜酸化窒素(N_2O)および窒素を原料ガスとして用い、モノシランガスに対するアンモニアガスの流量比が0.5以上1.0未満であり、モノシランガスに対する亜酸化窒素ガスの流量比が0以上、0.8未満であるプラズマCVD法によって形

成される。この方法において、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層24の第k層を形成する際の亜酸化窒素ガスの流量(k)は、流量(k-1) < 流量(k)の関係を満たす。

[0023] また、前述の方法において、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層中の第k-1層の形成終了時に放電およびガスの導入を停止し、第k層形成のためのガスの導入を行い、次いで放電を開始して、保護層中の隣接する2層間の界面を明確にすることが望ましい。

[0024] 本発明の基板10は、他の構成層の形成に用いられる種々の条件(たとえば、使用される溶媒、温度など)に耐えることができる任意の材料を用いて形成することができる。また、基板10は、優れた寸法安定性を有することが望ましい。基板10を形成するのに用いられる透明材料は、ガラス、あるいは、ポリオレフィン、ポリメチルメタクリレートなどのアクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、およびポリアミド樹脂などの樹脂を含む。前述の樹脂を用いる場合、基板10は、剛直性であっても可撓性であってもよい。あるいはまた、特に図1に示すトップエミッション型有機ELデバイスの場合、基板10を、シリコン、セラミックなどの不透明材料を用いて形成してもよい。絶縁性、および有機EL発光素子の形態を保持できる剛性を有する平坦な材料を用いて形成することができる。

[0025] 基板10は、その表面上に、複数のスイッチング素子(TFTなど)および配線などをさらに含んでもよい。この構成は、複数の独立した発光部を有するアクティブマトリクス駆動型有機ELデバイスの作製に有効である。

[0026] 基板10と有機EL層22との間に位置する下部電極21、および有機EL層22の基板10とは反対側に位置する上部電極23は、有機EL層22へのキャリア注入および外部駆動回路との接続の機能を有する。下部電極21および上部電極23は、それぞれ、陽極(正孔注入電極)または陰極(電子注入電極)のいずれであってもよい。下部電極21および上部電極23のいずれか一方は陽極であり、他方は陰極である。図1に示すトップエミッション型構造においては、下部電極21が反射電極であることが望ましく、上部電極23が透明電極である。

[0027] 下部電極21として用いられる反射電極は、高反射率の金属(アルミニウム、銀、モリ

ブデン、タングステン、ニッケル、クロムなど)またはそれらの合金、あるいはアモルファス合金(NiP、NiB、CrP、もしくはCrBなど)を用いて形成することができる。可視光に対して80%以上の反射率を得ることができるという観点から、特に好ましい材料は、銀合金を含む。用いることができる銀合金は、銀と、第10族のニッケルまたは白金、第1族のルビジウム、および第14族の鉛からなる群から選択される少なくとも1種の金属との合金、あるいは、銀と、第2族のマグネシウムおよびカルシウムからなる群から選択される少なくとも1種の金属との合金を含む。

[0028] 上部電極23として用いられる透明電極は、 SnO_2 、 In_2O_3 、In-Sn酸化物、In-Zn酸化物、ZnO、またはZn-Al酸化物などの導電性金属酸化物を用いて形成することができる。透明電極は、有機EL層22からの発光を外部に取り出すための経路となることから、波長400～800nmの範囲内で50%以上、好ましくは85%以上の透過率を有することが望ましい。

[0029] 下部電極21および上部電極23は、抵抗加熱方式または電子ビーム加熱方式の蒸着法、またはスパッタ法を用いて形成することができる。蒸着法の場合、 1.0×10^{-4} Pa以下の圧力において、0.1～10nm/秒の成膜速度で成膜を行うことができる。一方、DCマグネトロンスパッタ法などのスパッタ法の場合、スパッタガスとしてArなどの不活性ガスを用い、0.1～2.0Pa程度の圧力において成膜を行うことができる。上部電極23をスパッタ法で形成する場合、被成膜基板の表面となる有機EL層22の劣化を防止するため、ターゲット近傍に形成されるプラズマを有機EL層22に直接照射しないことが好ましい。

[0030] 有機EL層22は、下部電極21と上部電極23との間に位置し、それぞれの電極と接触している。発光部の中核をなす層である。有機EL層22は、少なくとも発光層を含み、必要に応じて正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層および／または電子注入層を含む。たとえば、有機EL層22は、下記のような層構成を有することができる。

- (1)陽極／発光層／陰極
- (2)陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- (3)陽極／発光層／電子注入層／陰極
- (4)陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極

(5)陽極／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極

(6)陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極

(7)陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極

なお、上記(1)～(7)の各構成において、陽極および陰極は、それぞれ下部電極21または上部電極23のいずれかである。

[0031] 発光層は、公知の材料を用いて形成することができる。青色から青緑色の発光を得るための材料は、たとえば、ベンゾチアゾール系化合物、ベンゾイミダゾール系化合物もしくはベンゾオキサゾール系化合物のような蛍光増白剤；トリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(Alq_3)に代表されるアルミニウム錯体のような金属キレート化オキソニウム化合物；4, 4'-ビス(ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)のようなスチリルベンゼン系化合物；芳香族ジメチリディン系化合物；縮合芳香環化合物；環集合化合物；およびポルフィリン系化合物などを含む。

[0032] あるいはまた、ホスト化合物にドーパントを添加することによって、種々の波長域の光を発する発光層を形成することもできる。この場合、ホスト化合物としては、ジスチリルアリーレン系化合物、N, N'-ジトリル-N, N'-ジフェニルビフェニルアミン(TPD)、 Alq_3 などを使用することができる。一方、ドーパントとしては、ペリレン(青紫色)、クマリン6(青色)、キナクリドン系化合物(青緑色～緑色)、ルブレン(黄色)、4-ジシアノメチレン-2-(p-ジメチルアミノスチリル)-6-メチル-4H-ピラン(DCM、赤色)、白金オクタエチルポルフィリン錯体(PtOEP、赤色)などを使用することができる。

[0033] 正孔輸送層は、トリアリールアミン部分構造、カルバゾール部分構造、またはオキサジアゾール部分構造を有する材料を用いて形成することができる。正孔輸送層の好まし材料は、TPD、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(α -NPD)、MTDAPB(o-, m-, p-)、m-MTDATAなどを含む。正孔注入層は、銅フタロシアニン錯体(CuPc)などを含むフタロシアニン(Pc)類、インダンスレン系化合物などの材料を用いて形成することができる。

[0034] 電子輸送層は、 Alq_3 のようなアルミニウム錯体、PBDもしくはTPOBのようなオキサ

ジアゾール誘導体、TAZのようなトリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、フェニルキノキサリン類、BMB-2Tのようなチオフェン誘導体などの材料を用いて形成することができる。電子注入層は、 Alq_3 のようなアルミニウム錯体、またはアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属をドーピングしたアルミニウムのキノリノール錯体などの材料を用いて形成することができる。

[0035] 以上のような各構成層に加えて、任意選択的に、有機EL層22と陰極として用いる下部電極21または上部電極23のいずれかとの間に、キャリア注入効率をさらに高めるためのバッファ層を任意選択的に形成することもできる(図示せず)。バッファ層は、アルカリ金属、アルカリ土類金属もしくはそれらの合金、または希土類金属、あるいはそれら金属のフッ化物などの電子注入性材料を用いて形成することができる。

[0036] さらに、有機EL層22の上表面に、上部電極23の形成時のダメージを緩和するために、MgAgなどからなるダメージ緩和層(図示せず)を形成することも好ましい。

[0037] 有機EL層22を構成する各層は、所望される特性を実現するのに十分な膜厚を有することが重要である。本発明においては、発光層、正孔輸送層、電子輸送層および電子注入層が2~50nmの膜厚を有し、正孔注入層が2~200nmの膜厚を有することが望ましい。また、任意選択的なバッファ層は、駆動電圧低減および透明性向上の観点から、10nm以下の膜厚を有することが好ましい。

[0038] 有機EL層22の各構成層、バッファ層およびダメージ緩和層は、蒸着(抵抗加熱蒸着または電子ビーム加熱蒸着)などの当該技術において知られている任意の手段を用いて作製することができる。

[0039] 保護層24は、外部環境または水分を含有するおそれのある層から電極および/または有機EL層22への水分の侵入を防止するための層である。保護層24は、3層以上の無機膜からなり、該無機膜のそれぞれは窒化ケイ素膜または酸化窒化ケイ素膜である。保護層中の隣接する2つの無機膜(層)は、異なる化学組成を有する。そして、上部電極23、保護層24を構成する無機膜および接着層50の屈折率は、上部電極23から接着層50に向かい、小さくなることが望ましい。すなわち、保護層24を上部電極23に近い方から第1層から第n層(nは3以上の整数である)までの積層体とし、第k層の屈折率を屈折率(k)とする場合、屈折率が以下の関係を満たすことが望まし

い:

- (1) (上部電極23の屈折率) > 屈折率(1);
- (2) 屈折率(n) > (接着層50の屈折率);および
- (3) 2からnまでの整数kのそれぞれに関して、
屈折率(k-1) > 屈折率(k)。

したがって、保護層24を構成する無機膜の屈折率は、接着層50の屈折率(通常1.6程度)から上部電極23の屈折率(通常2.1程度)までの範囲内である。

[0040] 保護層24を構成する無機膜は、膜剥離を防止するために、小さい応力を有することが望ましい。本発明においては、収縮性または伸張性のいずれであっても、無機膜の応力が20MPa以下の絶対値を有することが望ましい。応力は、たとえばSiウェハ上に無機膜を形成し、無機膜形成前後のSiウェハの反りの変化量から求めることができる。

[0041] 特に、図1に示すようなトップエミッション型構造において、保護層24は有機EL層からの光の外部への放出経路上に位置するため、高い可視光透過率を有することが望ましい。具体的には、波長400~800nmの範囲内で膜の消衰係数が0.001よりも小さいことが望ましい。

[0042] 保護層24を構成する窒化ケイ素膜および酸化窒化ケイ素膜は、化学気相成長(CVD)法を用いて形成することができる。特に、モノシラン、アンモニア、亜酸化窒素および窒素を原料ガスとして用い、高周波電力を印加するプラズマCVD法が望ましい。ここで、窒化ケイ素膜を形成する場合には、亜酸化窒素を用いない。前述の屈折率を得るために、モノシランガスに対するアンモニアガスの流量を0.5以上1.0未満に設定する。亜酸化窒素を用いずに窒化ケイ素膜を形成する場合、前述のアンモニア／モノシラン流量比を用いると、およそ1.8から1.9の屈折率を有する窒化ケイ素膜が得られる。屈折率を低下させるために、亜酸化窒素ガスをモノシランガスに対して0から0.8の流量比で導入する。亜酸化窒素を用いた場合には酸化窒化ケイ素膜が形成され、亜酸化窒素／モノシランガス流量比の増大に伴って、得られる酸化窒化ケイ素膜の屈折率は低下する。図2に、亜酸化窒素／モノシラン流量比の比率と波長450nmにおける屈折率との関係を示す(製造例1参照)。

- [0043] 防湿性の高い窒化ケイ素膜および酸化窒化ケイ素膜を得るため、高周波電力の周波数を25MHz以上50MHz以下に設定することが望ましい。より好ましくは、27.12MHzまたは40.68MHzの周波数の高周波電力を用いる。また、高周波電力の電力密度を $0.1 \sim 2 \text{ W/cm}^2$ とすることが望ましい。基板10または基板10の上にすでに形成されている層へのダメージを回避するという観点から、70°C以下の基板温度において、窒化ケイ素膜および酸化窒化ケイ素膜の形成を行うことが好ましい。
- [0044] また、本発明における保護層24を構成する各層は、明確に界面を持つことが重要である。言い換えると、保護層24中で隣接する2つの層(窒化ケイ素膜または酸化窒化ケイ素膜)は、異なる化学組成を有することが重要である。明確な界面は、水分拡散に対する抵抗となり、防湿性を向上させる点で有効である。このため、1つの層の形成が終了する毎に、放電および原料ガス導入を停止し、次の層を形成するための新たな原料ガスの導入を行い、放電させることが望ましい。たとえば、保護層24を上部電極23に近い方から第1層から第n層(nは3以上の整数である)までの積層体とする場合、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層中の第k-1層の形成終了時に放電および原料ガスの導入を停止し、第k層形成のための原料ガス(第k-1層形成用のガスとは異なる成分または異なる流量比を有する)の導入を行い、次いで放電を開始することが望ましい。
- [0045] 本発明において、保護層24を構成する窒化ケイ素膜および酸化窒化ケイ素膜の「化学組成」とは、膜中のSi、NおよびOのモル比ではなく、Si-N結合、Si-O結合およびN-H結合のピーク面積比を意味する。本発明において保護層24を上部電極23に近い方から第1層から第n層(nは3以上の整数である)までの積層体とする場合、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第k層のSi-N結合に対するSi-O結合のストレッチングモードのピーク面積比Si-O/Si-N面積比(k)は、 $\text{Si-O/Si-N面積比}(k-1) < \text{Si-O/Si-N面積比}(k)$ の関係を満たすことが望ましい。また、第n層のSi-O/Si-N面積比(n)は、0.8以下であることが望ましい。言い換えると、1からnまでの整数mのそれぞれにおいて、 $\text{Si-O/Si-N面積比}(m) \leq 0.8$ を満たすことが望ましい。加えて、1からnまでの整数mのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって

求められる、保護層中の第m層のSi-N結合に対するN-H結合のストレッチングモードのピーク面積比N-H/Si-N面積比(m)は、0.1未満であることが望ましい。

[0046] 以上で説明した屈折率および化学組成の関係を達成するために、本発明において保護層24を上部電極23に近い方から第1層から第n層(nは3以上の整数である)までの積層体とする場合、2からnまでの整数kのそれぞれに関して、第k層を形成する際の亜酸化窒素の流量(k)は、流量(k-1) < 流量(k)の関係を満たすことが望ましい。

[0047] 本発明におけるSi-O/Si-N面積比の決定法を説明する。最初に、酸化窒化ケイ素膜のIRスペクトルを測定する。本発明におけるIRスペクトルは、ストレッチングモードの吸収を用いる。このモードの吸収は、強度が強く、ピーク分離が容易であることから好ましい。また、横軸として波数(単位: cm^{-1})の線形軸を用いて表わされ、部分的な拡大などのないスペクトルである。ここで、バックグラウンド吸収を排除するために、酸化窒化ケイ素膜が形成された被成膜基板、および酸化窒化ケイ素膜が形成されていない被成膜基板のIRスペクトルを測定し、その差スペクトルをとることが望ましい。

[0048] 得られたIRスペクトルは、膜中での光干渉による吸光度の変動などを含んでいる。この吸光度の変動を排除するために、ベースラインを用いた補正を行う。図3は、この補正工程を説明する図であり、測定したままのIRスペクトル100、ベースライン110およびベースライン補正後のIRスペクトル120を示す。本発明における酸化窒化ケイ素膜に対するベースラインは、以下に規定される波数におけるIRスペクトル100の吸光度を直線で結ぶことによって得られる。

400、612、1500、1650、2030、

2330、2900、3200、3550、4000 (cm^{-1})

そして、各波数において、IRスペクトル100の吸光度からベースライン110の吸光度を減算して、ベースライン補正後のIRスペクトル120を得る。

[0049] 次に、ベースライン補正後のIRスペクトル120に対して、ピーク分離を行う。ピーク分離は、各ピークを式(I)で表わされるガウス関数 G_n で表現することによって行う。

[0050] [数1]

$$G_n = A_n \exp(-B_n(x - C_n)^2) \quad (I)$$

- [0051] 式中、 A_n は各ピークの吸光度の極大値であり、 C_n は各ピークの吸光度が極大となる波数(単位: cm^{-1})であり、 x は波数であり、 B_n は変数である。そして、最小二乗法を用いて、各ピークに関する B_n を求める。すなわち、各ピークのガウス関数 G_n の和と、ベースライン補正後のIRスペクトル120の吸光度との差の二乗和が最小値となるようにして、各ピークを分離する。図4に、図3のベースライン補正後のIRスペクトル120のピーク分離を行った結果を示す。
- [0052] 本発明においては、 $830 \sim 870 \text{cm}^{-1}$ に極大を有するピークをSi-N結合のストレッチングモードを示すピークとし、 $970 \sim 1070 \text{cm}^{-1}$ に極大を有するピークをSi-O結合のストレッチングモードを示すピーク、 $3250 \sim 3400 \text{cm}^{-1}$ に極大を有するピークをN-H結合のストレッチングモードを示すピークとする。
- [0053] 最後に、ピーク分離により得られた各ピークのガウス関数 G_n を積分して、Si-N結合、Si-O結合、N-H結合の吸収面積を求め、それによってSi-O/Si-N面積比、N-H/Si-N面積比を決定する。
- [0054] 保護基板30は、たとえば、ポリオレフィン、ポリメチルメタクリレートなどのアクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、またはポリイミド樹脂のような樹脂を用いて形成することができる。樹脂を用いる場合、保護基板30は剛直性であっても可撓性であってもよい。
- [0055] 色変換カラー層40は、有機EL層22からの発光の色相を調整するための層である。本発明における「色変換カラー層」は、カラー層、色変換層、およびカラー層と色変換層との積層体の総称である。色変換カラー層40は、図1に示すように保護基板30の内側に設けてもよいし、保護基板30の外側に設ける構造も考えられる。
- [0056] カラー層は、特定の波長域の光を透過させる層である。カラー層は、有機EL層22または色変換層からの光の色純度を向上させる機能を有する。カラー層は、市販のフラットパネルディスプレイ用カラー材料(たとえば、富士フイルムエレクトロニクスマテリアルズ(株)製のカラーモザイクなど)を用いて形成することができる。カラー層の形成には、スピンコート、ロールコート、キャスト、ディップコートなどの塗布法を用いることができる。また、塗布法によって形成した膜を、フォトリソグラフィ法などによってパタ

ーニングして、所望のパターンを有するカラー層を形成してもよい。

[0057] 色変換層は、特定の波長域の光を吸収して波長分布変換を行い、異なる波長域の光を放出する層である。色変換層は、少なくとも蛍光色素を含み、必要に応じてマトリクス樹脂を含んでもよい。蛍光色素は、有機EL層22からの光を吸収し、所望の波長域(たとえば、赤色領域、緑色領域または青色領域)の光を放射する。

[0058] 青色から青緑色領域の光を吸収して、赤色領域の蛍光を放射する蛍光色素は、たとえば、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン3B、ローダミン101、ローダミン110、スルホローダミン、ベーシックバイオレット11、ベーシックレッド2などのローダミン系色素;シアニン系色素;1-エチル-2-[4-(p-ジメチルアミノフェニル)-1,3-ブタジエニル]-ピリジニウム-パークロレート(ピリジン1)などのピリジン系色素;およびオキサジン系色素を含む。あるいはまた、前述のような蛍光性を有する各種染料(直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料など)を用いてもよい。

[0059] 青色から青緑色領域の光を吸収して、緑色領域の蛍光を放射する蛍光色素は、たとえば、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン6)、3-(2'-ベンゾイミダゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン7)、3-(2'-N-メチルベンゾイミダゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン30)、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチルキノリジン(9,9a,1-gh)クマリン(クマリン153)などのクマリン系色素;ソルベントイエロー11、ソルベントイエロー116などのナフタリイミド系色素;および、ベーシックイエロー51などのクマリン色素系染料などを含む。あるいはまた、前述のような蛍光性を有する各種染料(直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料など)を用いてもよい。

[0060] 色変換層のマトリクス樹脂としては、アクリル樹脂、種々のシリコンポリマー、またはそれらに代替可能な任意の材料を用いることができる。たとえば、マトリクス樹脂として、ストレート型シリコンポリマー、変性樹脂型シリコンポリマーを用いることができる。

[0061] 色変換層は、スピンコート、ロールコート、キャスト、ディップコートなどの塗布法、あるいは蒸着法を用いて形成することができる。複数種の蛍光色素を用いて色変換層を形成する場合には、所定の比率の複数種の蛍光色素、およびマトリクス樹脂を混

合して予備混合物を形成し、当該予備混合物を用いて蒸着を行うこともできる。あるいはまた、共蒸着法を用いて、色変換層を形成してもよい。共蒸着法は、複数種の蛍光色素のそれぞれをマトリクス樹脂と混合することによって複数種の蒸着用混合物を形成し、それら蒸着用混合物を別個の加熱部位に配置し、そして、蒸着用混合物を別個に加熱することによって実施される。特に、複数種の蛍光色素の特性(蒸着速度および/または蒸気圧など)が大きく異なる場合には、共蒸着法を用いることが有利である。

[0062] 色変換層を含む色変換カラー層40を用いる場合、色変換層の特性劣化を防止するために、色変換カラー層40全体を覆うようにパッシベーション層(不図示)を形成してもよい。パッシベーション層は、絶縁性酸化物(SiO_x 、 TiO_2 、 ZrO_2 、 AlO_x など)、絶縁性窒化物(AlN_x 、 SiN_x など)を用いて形成することができる。パッシベーション層は、プラズマCVD法のような方法を用いて形成することができる。色変換層の劣化防止の観点から、パッシベーション層形成の際には、色変換カラー層40を最上層とする被成膜基板の温度を 100°C 以下とすることが望ましい。

[0063] 接着層50は、基板10と保護基板30とを貼り合わせるために用いられる層である。接着層50は、たとえば、熱硬化型接着材、UV硬化型接着剤、UV熱併用硬化型接着剤などを用いて形成することができる。用いることができる接着剤は、エポキシ樹脂系接着剤などを含む。ここで、前述の接着剤は、基板10と保護基板30との距離を画定するためのスペーサ粒子を含んでもよい。用いることができるスペーサ粒子は、ガラスビーズなどを含む。基板10または保護基板30のいずれかの表面の所定の位置に接着剤を塗布し、基板10および保護基板30とを貼り合わせ、そして接着剤を硬化させることによって、接着層50を形成することができる。接着層の屈折率の範囲は1.5よりも大きく1.8よりも小さいことが望ましい。

[0064] 図1には、単一の発光部を備える有機ELデバイスの例を示した。しかしながら、本発明の有機ELデバイスは、独立して制御される複数の発光部を備えてもよい。たとえば、下部電極および上部電極の両方を複数のストライプ状電極からなる電極群とし、下部電極を構成するストライプ状電極の延在方向と上部電極を構成するストライプ状電極の延在方向とを交差させて、いわゆるパッシブマトリクス駆動の有機ELデバイ

スを形成してもよい。ここで、任意の画像および／または文字を表示するディスプレイ用途においては、下部電極を構成するストライプ状電極の延在方向と上部電極を構成するストライプ状電極の延在方向とを直交させることが好ましい。あるいはまた、下部電極を複数の部分電極に分割し、複数の部分電極のそれぞれを基板上に形成されたスイッチング素子と1対1に接続し、上部電極を一体型の共通電極として、いわゆるアクティブマトリクス駆動の有機ELデバイスを形成してもよい。

[0065] なお、パッシブマトリクス駆動型デバイスおよびアクティブマトリクス駆動型デバイスのいずれの場合においても、下部電極を構成する複数の部分電極の間に絶縁膜を設けることが望ましい。絶縁膜は、絶縁性酸化物(SiO_x 、 TiO_2 、 ZrO_2 、 AlO_x など)、絶縁性窒化物(AlN_x 、 SiN_x など)、または高分子材料などを用いて形成することができる。

[0066] さらに、独立して制御される複数の発光部を有する構成において、複数種の色変換層を用いて、多色表示が可能な有機ELデバイスを形成することができる。たとえば、赤色、緑色および青色の色変換層を用いて、赤色、緑色および青色の副画素を構成し、3色の副画素を1組とする画素をマトリクス状に配列することによってフルカラーディスプレイが可能な有機ELデバイスを形成することができる。

実施例

[0067] <製造例1>

本製造例においては、モノシランの流量を100sccmとし、窒素の流量を2000sccmとし、アンモニアの流量を80sccmに固定し、亜酸化窒素の流量を0～160sccmの範囲で変化させた。このとき、混合ガスの圧力を100Paとした。また、周波数27.12MHzおよび電力密度 $0.5\text{W}/\text{cm}^2$ の高周波電力を用い、 50°C の被成膜基板上に窒化ケイ素膜または酸化窒化ケイ素膜を形成した。本製造例においては、窒化ケイ素膜および酸化窒化ケイ素膜を、「 SiNO_x 膜」と総称する。

[0068] (1) $\text{Si-O}/\text{Si-N}$ 面積比、 $\text{N-H}/\text{Si-N}$ 面積比

被成膜基板として厚さ0.5mmのSiウェーハを用い、膜厚 $1\mu\text{m}$ の SiNO_x 膜を形成した。得られた SiNO_x 膜のIRスペクトルを、透過型フーリエ変換赤外分光測定器を用いて測定した。Siウェーハ起因のバックグラウンド吸収を除去するため、同一ロット

のSiウェーハをリファレンスとして用い、SiNO_x膜/Siウェーハ積層体とSiウェーハとの差スペクトルを測定した。次いで、前述のようにベースラインの決定、ベースライン補正を行った。スペクトル形状を図5に示す。この後にピーク分離を行って、Si-N結合、Si-O結合、N-H結合の吸収面積を求め、Si-O/Si-N面積比、N-H/Si-N面積比をそれぞれを決定した。結果を第1表に示す。

[0069] (2) 屈折率および消衰係数の測定

被成膜基板としてSiウェーハを用い、膜厚1 μ mのSiNO_x膜を形成した。分光エリプソメーター(VASE、ジェーエーウーラム社製)を用いて、得られたSiNO_x膜の屈折率および消衰係数を測定した。波長475nmにおける屈折率の変化を図2に示す。亜酸化窒素の添加に従い屈折率は低下し、流量100sccmではおよそ1.68となった。

[0070] (3) 防湿性

膜厚100nmのカルシウム膜を覆うように、膜厚3 μ mのSiNO_x膜を形成した。得られたサンプルを、1000時間にわたって95°C、50%RHの恒温槽中に放置し、カルシウム膜の変質面積を測定して、各膜の防湿性を評価した。

[0071] カルシウム膜は、当初は不透明である。しかしながら、主として雰囲気中の水分とカルシウムが反応すると、水酸化カルシウムを生成し、反応部分の膜が透明になる。500 μ m×500 μ mの範囲の写真撮影を行い、撮影された写真に対して「透明」および「不透明」の2値化を行って、透明化しなかった非変質部の面積のパーセンテージを算出した。撮影領域は、膜厚のバラツキの最も少ないサンプル中央部とした。これらの結果を第1表に示す。

[0072] (4) 膜応力

被成膜基板として直径4インチ(約10.2cm)のSiウェーハを用いた。成膜前に、Siウェーハの反りを測定した。次いで、膜厚3 μ mのSiNO_x膜を形成し、成膜後のSiウェーハの反りを測定した。成膜前後のSiウェーハの反りの変化量から、SiNO_x膜の膜応力を算出した。結果を第1表に示す。

[0073] [表1]

第1表：窒化ケイ素膜または酸化窒化ケイ素膜の特性

サンプル番号	N ₂ O流量 (sccm)	Si-O/Si-N 面積比	N-H/Si-N 面積比	屈折率	非変質部 面積比(%)	消衰係数 ($\times 10^{-4}$)	膜応力 (MPa)
1	0	0	0.08	1.86	96	2	7
2	10	0.05	0.05	1.83	98	0	7
3	15	0.1	0.06	1.80	97	0	6
4	20	0.2	0.07	1.78	96	0	6
5	40	0.4	0.08	1.74	94	0	5
6	70	0.8	0.09	1.69	90	0	5
7	100	1.0	0.10	1.68	72	0	5
8	160	2.0	0.16	1.63	54	0	4

[0074] 第1表から、亜酸化窒素の添加量が0～20sccmの膜の防湿性はほぼ同等であるが、更に亜酸化窒素の添加量を増やすと、防湿性が低下する傾向が見られた。亜酸化窒素の添加量が20sccmよりも多くなると、N-H/Si-N面積比が大きくなることから、防湿性の制御には、膜中のN-H結合比を小さくする製膜条件で保護膜を形成する必要があると推察した。非変質部の面積が90%以上を保持している領域が保護膜として適していると考えている。

[0075] <実施例1>

本実施例においては、画素数2×2、画素幅0.3mm×0.3mmの赤色発光有機ELデバイスを作製した。

[0076] 基板10としてフュージョンガラス(コーニング製1737ガラス、50×50×1.1mm)を準備した。スパッタ法を用いて、基板10上に膜厚100nmのAg膜を堆積させた。得られたAg膜をフォトリソグラフ法によってパターニングして、幅0.3mmの2つのストライプ状電極からなる下部電極21を形成した。

[0077] 次に、下部電極21を形成した基板10を抵抗加熱蒸着装置内に設置した。マスクを使用した蒸着法によって、下部電極21の上に膜厚1.5nmのLiからなるバッファ層を形成した。引き続いて、蒸着法を用いて、電子輸送層/発光層/正孔輸送層/正孔注入層の4層からなる有機EL層22を形成した。電子輸送層は膜厚20nmのAlq₃であり、発光層は膜厚30nmのDPVBiであり、正孔輸送層は膜厚10nmのα-NPDであり、正孔注入層は膜厚100nmのCuPcであった。有機EL層22の成膜の際には、装置の真空槽の内圧を 1×10^{-4} Paとし、0.1nm/sの成膜速度で各層を形成した。引き続いて、蒸着法を用いて、膜厚5nmのMgAg膜を形成して、ダメージ緩和層

を形成した。

[0078] 次に、ダメージ緩和層を形成した積層体を、真空を破ることなしに対向スパッタ装置に移動させた。メタルマスクを用いるスパッタ法によって、膜厚100nmのIZOを堆積させて、透明な上部電極23を形成した。上部電極23は、下部電極21のストライプ状電極と直交する方向に延び、0.3mmの幅を有する2つのストライプ状電極から構成された。上部電極23は波長475nmにおいて2.10の屈折率を有した。

[0079] 次に、上部電極23を形成した積層体をプラズマCVD装置に移動させ、3層構成の保護層24を形成した。第1の層はモノシラン100sccm、アンモニア80sccmおよび窒素2000sccmの混合ガスを原料として用い、周波数27.12MHzおよび電力密度 $0.5\text{W}/\text{cm}^2$ の高周波電力を印加して、膜厚500nmの窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル1)を形成した。このとき、成膜時の装置内圧力を100Paとし、被成膜基板を担持するステージの温度を50℃とした。第2の層は、第1の層の形成条件に亜酸化窒素を10sccm追加し、膜厚500nmの酸化窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル2)を形成した。第3の層は、第1の層の形成条件に亜酸化窒素を20sccm追加し、膜厚500nmの酸化窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル4)を形成した。以上の工程により、基板10上に下部電極21／有機EL層22／上部電極23／保護層24からなる有機EL素子20を形成した。得られた有機EL素子20を、内部環境を酸素濃度5ppm以下および水分濃度5ppm以下に調整した貼り合わせ装置内に移動させた。

[0080] [表2]

第2表：有機ELデバイスの構成層の特性

構成層		屈折率	Si-O/Si-N 面積比	N-H/Si-N 面積比	N ₂ O流量 (sccm)
上部電極		2.10	—	—	—
保護層	第1層	1.86	0	0.08	0
	第2層	1.83	0.05	0.05	10
	第3層	1.78	0.2	0.07	20
接着層		1.60	—	—	—

[0081] 別途、保護基板30としてフュージョンガラス(コーニング製1737ガラス、50×50×1.1mm)を準備した。保護基板30上に、赤色カラー材料(カラーモザイクCR7001(富士フイルムエレクトロニクスマテリアルズ製))を塗布し、パターニングを行って、有

機EL素子20の画素に相当する位置に、 $0.5\text{mm} \times 0.5\text{mm}$ の寸法を有する4つの部分からなる赤色カラー層を形成した。赤色カラー層は、 $1.5\mu\text{m}$ の膜厚を有した。

[0082] 次いで、赤色カラー層を形成した保護基板30を抵抗加熱蒸着装置に設置した。蒸着法を用いて、赤色カラー層上に、クマリン6およびDCM-2を含む、 300nm の膜厚を有する赤色変換層を堆積させた。クマリン6およびDCM-2のそれぞれを別個の坩堝内で加熱して、クマリン6の蒸着速度を 0.3nm/s とし、DCM-2の蒸着速度を 0.005nm/s とした。赤色変換層中のクマリン6:DCM-2のモル比は49:1であった。以上の工程によって、赤色変換カラー層40を有する保護基板30を形成した。得られた保護基板30を前述の貼り合わせ装置内に移動させた。

[0083] 次いで、貼り合わせ装置内で、保護基板30の赤色変換カラー層40を形成した表面の外周部にエポキシ系UV硬化型接着剤を、赤色変換カラー層40上に熱硬化型接着剤(オグソールSI-20(大阪ガスケミカル製))を滴下した。赤色変換カラー層40および有機EL素子20が対向し、かつ赤色変換カラー層40の位置が有機EL素子20の画素に対応するように、有機EL素子20を形成した基板10および赤色カラー層40を形成した保護基板30を仮接着させた。引き続いて、貼り合わせ装置内を約 10MPa まで減圧して、基板10と保護基板30とを貼り合わせた。貼り合わせ終了後、貼り合わせ装置内の圧力を大気圧まで上昇させた。

[0084] 次に、マスクを用いて保護基板30外周部のUV硬化型接着剤のみに紫外線を照射して、接着剤を仮硬化させた。続いて、貼り合わせ体を、加熱炉内で1時間にわたって 80°C に加熱して接着剤を硬化させ、接着層50を形成して、有機ELデバイスを得た。加熱終了後、加熱炉内で30分間をかけて有機ELデバイスを自然冷却させて、加熱炉から取り出した。熱硬化型接着剤(オグソールSI-20(大阪ガスケミカル製))から形成された有機EL素子20上の接着層50は 1.60 の屈折率を有した。

[0085] <比較例1>

保護層24として、膜厚 1500nm の窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル1)を形成したことを除いて実施例1の手順を繰り返して、有機ELデバイスを形成した。すなわち、モノシラン 100sccm 、アンモニア 80sccm および窒素 2000sccm の混合ガスを原料として用い、周波数 27.12MHz および電力密度 0.5W/cm^2 の高周波電力を印

加して、膜厚1500nmの窒化ケイ素膜を製膜し、有機ELデバイスの形成を行った。

[0086] <比較例2>

保護層24として、膜厚1500nmの酸化窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル4)を形成したことを除いて実施例1の手順を繰り返して、有機ELデバイスを形成した。すなわち、モノシラン100sccm、アンモニア80sccm、亜酸化窒素20sccmおよび窒素2000sccmの混合ガスを原料として用い、周波数27.12MHzおよび電力密度0.5 W/cm²の高周波電力を印加して、酸化窒化ケイ素膜を製膜し、有機ELデバイスの形成を行った。

[0087] <比較例3>

保護層24を構成する3つの層の形成順序を実施例1と逆順にしたことを除いて実施例1の手順を繰り返して、有機ELデバイスを形成した。すなわち、上部電極23の側から、膜厚500nmの酸化窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル4)、膜厚500nmの酸化窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル2)、および膜厚500nmの窒化ケイ素膜(製造例1のサンプル1)を形成した。本比較例の保護層24の膜厚は、1500nmであった。

[0088] 実施例1および比較例1～3で得られた有機ELデバイスを、60℃、90%RHの環境に配置し、電流密度0.1A/cm²の電流を流して、1000時間にわたって連続駆動し、その際の電圧および輝度を測定した。輝度を電流値で除算して、発光効率を求めた。実施例1の有機ELデバイスの発光効率を1として、実施例1および比較例の有機ELデバイスの初期発光効率および1000時間連続駆動後の発光効率を求めた。結果を第3表に示す。

[0089] [表3]

第3表：有機ELデバイスの長期安定性

	発光効率	
	初期	1000時間 連続駆動後
実施例1	1	0.8
比較例1	0.9	0.5
比較例2	0.9	0.4
比較例3	0.7	0.6

[0090] 第3表から分かるように、比較例1～3のデバイスは、初期において、実施例1のデバイスに劣る発光効率を示した。これは、比較例1～3のデバイスの保護層24と接着層50との屈折率差が、実施例1における屈折率差よりも大きいことに起因すると考えられる。その結果として、有機EL層22を発した光の一部が保護層24で反射され、発光効率が低下したと考えられる。

[0091] また、比較例1および2のデバイスは、実施例1と比較して1000時間連続駆動後の発光効率が著しく低下することが分かる。比較例のデバイスにおいては、保護層24が単層であるために保護層24を通した水分の侵入によって、発光効率の低下が進行したと考えられる。

請求の範囲

- [1] 基板と、前記基板上に形成される有機EL素子と、有機EL素子上に接着層を介して貼り合せられた保護基板を含む有機ELデバイスであって、
前記有機EL素子は、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層からなり、
前記保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、
保護層の第1層は、上部電極よりも小さい屈折率を有し、
保護層の第n層は、接着層よりも大きな屈折率を有し、および
2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層の屈折率(k)は、屈折率 $(k-1) > \text{屈折率}(k)$ の関係を満たす
ことを特徴とする有機ELデバイス。
- [2] 基板と、前記基板上に形成される有機EL素子と、有機EL素子上に接着層を介して貼り合せられた保護基板を含む有機ELデバイスであって、
前記有機EL素子は、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層からなり、
前記保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、
2からnまでの整数kのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第k層のSi-N結合に対するSi-O結合のストレッチングモードのピーク面積比Si-O/Si-N面積比(k)は、Si-O/Si-N面積比 $(k-1) < \text{Si-O/Si-N面積比}(k)$ の関係を満たし、
保護層中の第n層に関するSi-O/Si-N面積比(n)は、0.8以下であり、および
1からnまでの整数mのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第m層のSi-N結合に対するN-H結合のストレッチングモードのピーク面積比N-H/Si-N面積比(m)は、0.1未満である
ことを特徴とする有機ELデバイス。
- [3] 基板上に、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層を順次形成して、有機E

L素子を形成する工程と、

接着層を介して、該有機EL素子に対して保護基板を貼り合わせる工程とを含み、

保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、

保護層の第1層は、上部電極よりも小さい屈折率を有し、

保護層の第n層は、接着層よりも大きな屈折率を有し、および

2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層の屈折率(k)は、屈折率 $(k-1) > \text{屈折率}(k)$ の関係を満たす

有機ELデバイスの製造方法であって、

前記保護層を形成する各層は、モノシラン、アンモニア、亜酸化窒素(N_2O)および窒素を原料ガスとして用い、モノシランガスに対するアンモニアガスの流量比が0.5以上1.0未満であり、モノシランガスに対する亜酸化窒素ガスの流量比が0以上、0.8未満であるプラズマCVD法によって形成され、および

2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層を形成する際の亜酸化窒素ガスの流量(k)は、流量 $(k-1) < \text{流量}(k)$ の関係を満たす

ことを特徴とする有機ELデバイスの製造方法。

[4] 基板上に、下部電極、有機EL層、上部電極および保護層を順次形成して、有機EL素子を形成する工程と、

接着層を介して、該有機EL素子に対して保護基板を貼り合わせる工程とを含み、

前記保護層は、上部電極に近い方から第1層から第n層までの積層体であり、ここでnは3以上の整数であり、保護層中の各層は酸化窒化ケイ素または窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する2つの層は異なる化学組成を有し、

2からnまでの整数kのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第k層のSi-N結合に対するSi-O結合のストレッチングモードのピーク面積比Si-O/Si-N面積比(k)は、Si-O/Si-N面積比 $(k-1) < \text{Si-O/Si-N面積比}(k)$

O/Si-N面積比(k)の関係を満たし、

保護層中の第n層のSi-O/Si-N面積比(n)は、0.8以下であり、および

1からnまでの整数mのそれぞれに関して、赤外吸収スペクトル測定によって求められる、保護層中の第m層のSi-N結合に対するN-H結合のストレッチングモードのピーク面積比N-H/Si-N面積比(m)は、0.1未満である

有機ELデバイスの製造方法であって、

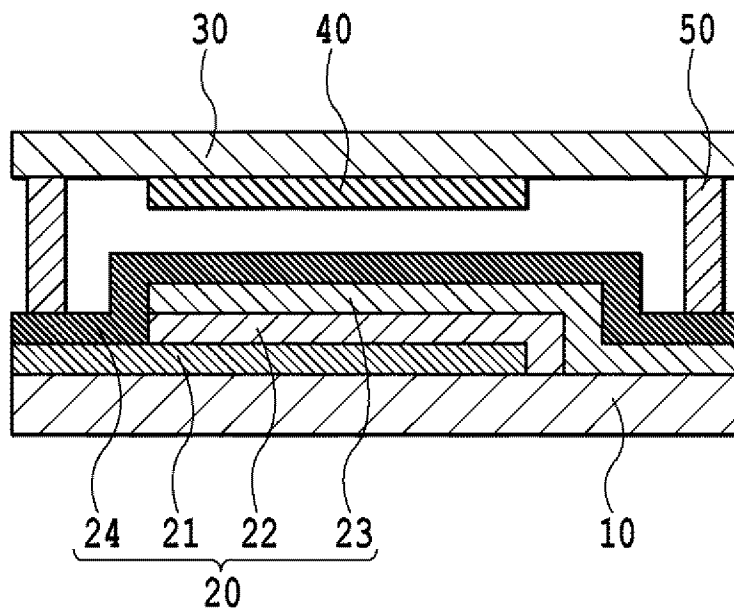
前記保護層を形成する各層は、モノシラン、アンモニア、亜酸化窒素(N_2O)および窒素を原料ガスとして用い、モノシランガスに対するアンモニアガスの流量比が0.5以上1.0未満であり、モノシランガスに対する亜酸化窒素ガスの流量比が0以上、0.8未満であるプラズマCVD法によって形成し、および

2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層の第k層を形成する際の亜酸化窒素ガスの流量(k)は、流量(k-1) < 流量(k)の関係を満たす

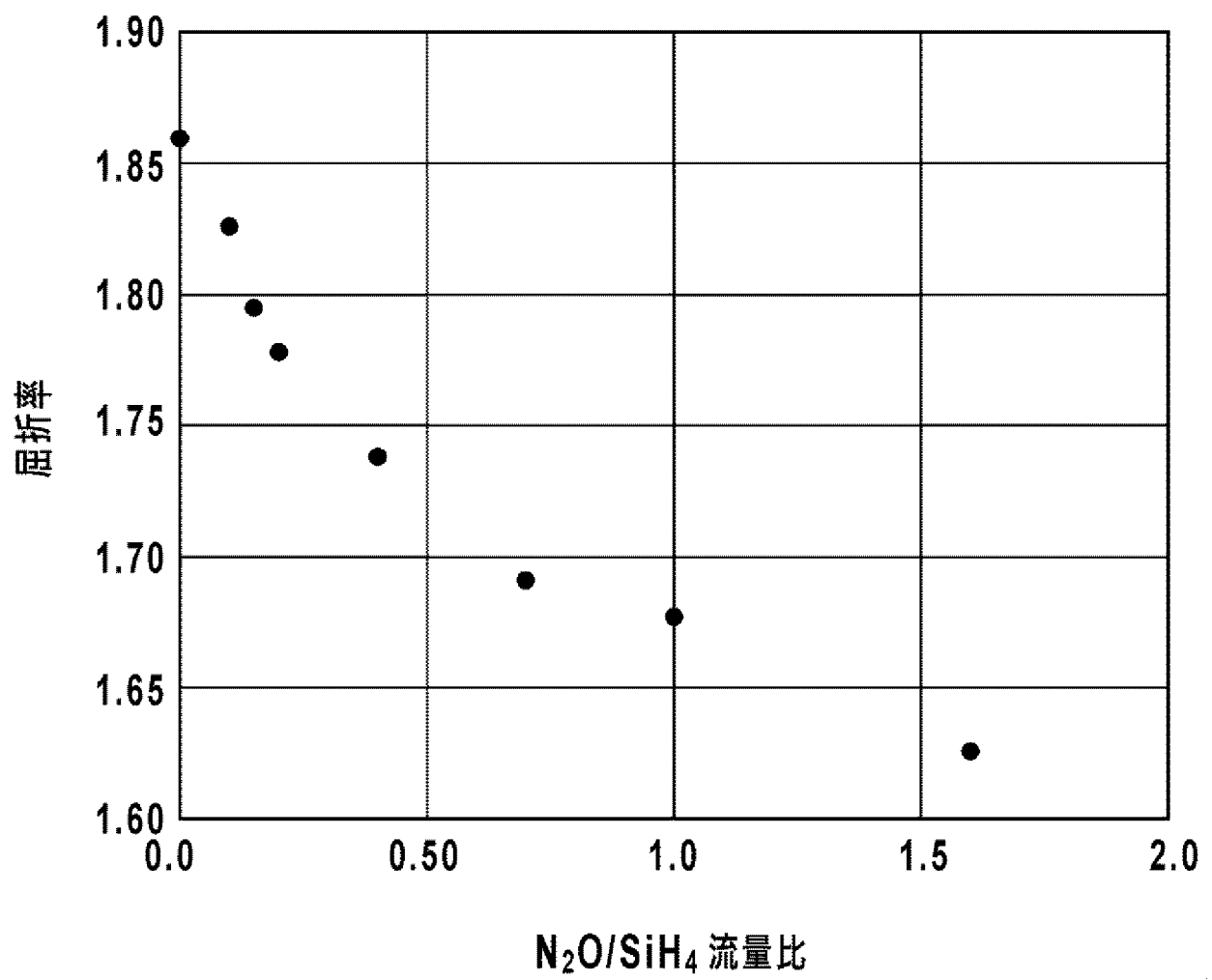
ことを特徴とする有機ELデバイスの製造方法。

- [5] 2からnまでの整数kのそれぞれに関して、保護層中の第k-1層の形成終了時に放電およびガスの導入を停止し、第k層形成のためのガスの導入を行い、次いで放電を開始することを特徴とする請求項3または4に記載の有機ELデバイスの製造方法。

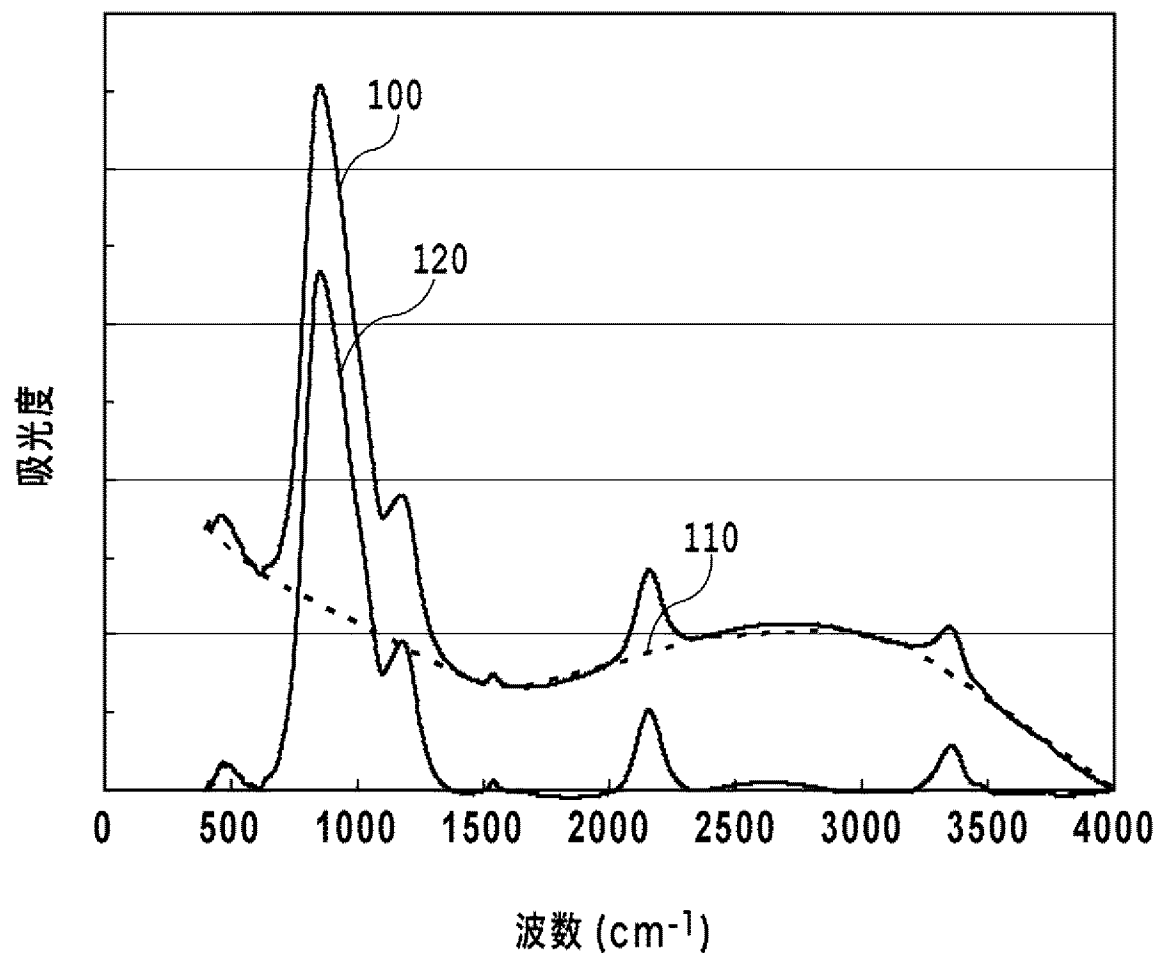
[図1]



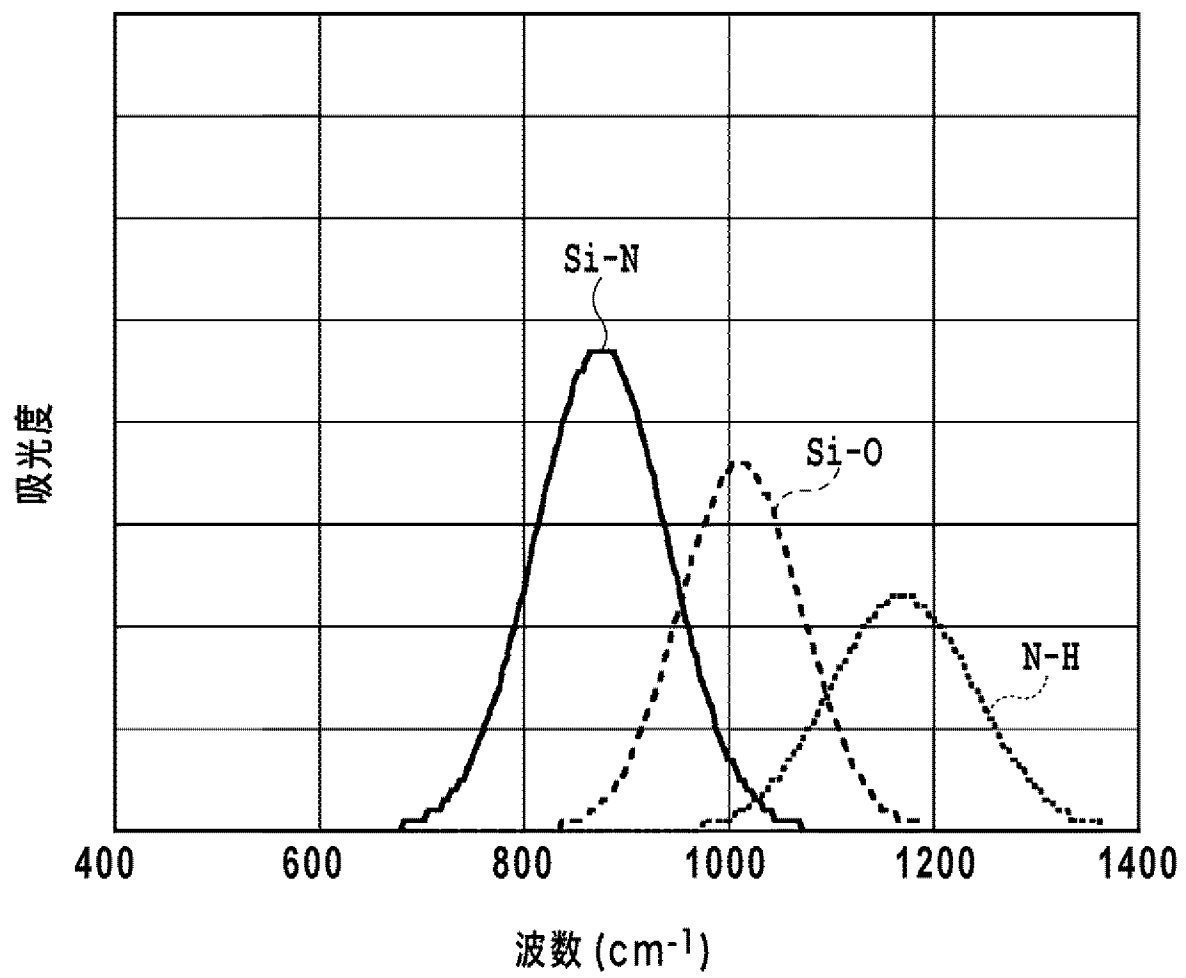
[図2]



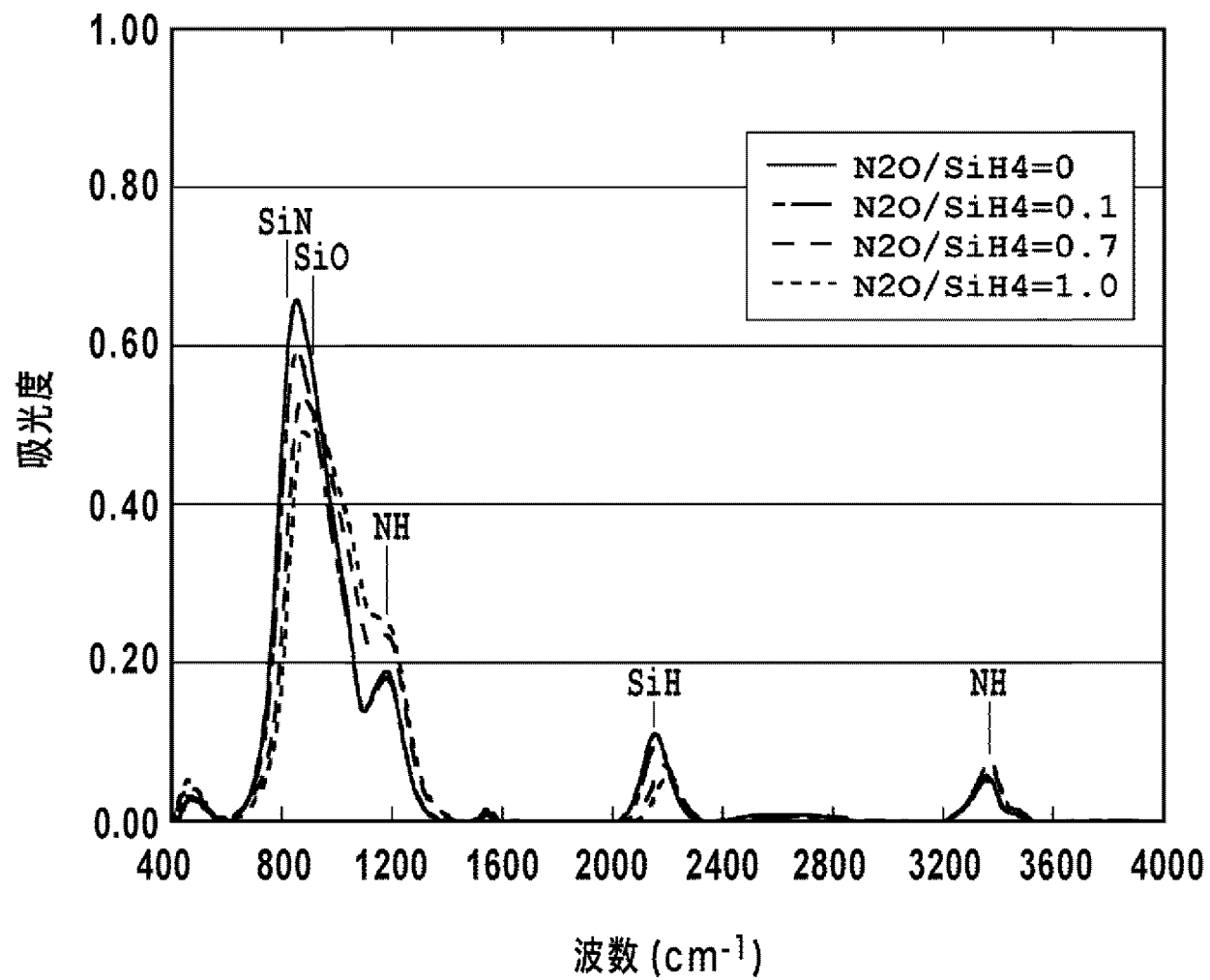
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/067542

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/04(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)

H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-210665 A (Canon Inc.), 11 September, 2008 (11.09.08), Claims 5, 7; Par. Nos. [0002] to [0003], [0049] to [0051], [0094] to [0108], [0118] to [0120]; Fig. 1 (Family: none)	1-5
Y	WO 2002/017689 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 28 February, 2002 (28.02.02), Claims 1 to 3; page 6, line 10 to page 7, line 1; page 7, line 23 to page 8, line 20; Fig. 2 & US 2003/0071567 A1 & US 2005/0275346 A1 & EP 1317165 A1 & TW 244876 B & CN 1389085 A & KR 10-2007-0049248 A	1

☒ 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
05 January, 2009 (05.01.09)

Date of mailing of the international search report
20 January, 2009 (20.01.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/067542

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 2005-209356 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 04 August, 2005 (04.08.05), Claims 1 to 3, 7; Par. Nos. [0008] to [0012], [0029] to [0030], [0039] to [0041]; Par. No. [0063], examples 1, 2, 6 on the table 1; Par. Nos. [0064] to [0066] (Family: none)	1-5
A	JP 2008-153004 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 03 July, 2008 (03.07.08), Full text; all drawings (Family: none)	1-5
A	JP 2003-203771 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 18 July, 2003 (18.07.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-5
A	JP 2005-302336 A (Hitachi, Ltd.), 27 October, 2005 (27.10.05), Full text; all drawings & US 2005/0231106 A1	1-5
A	JP 2006-4917 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 05 January, 2006 (05.01.06), Full text; all drawings & US 2005/0263775 A1 & US 2007/0181912 A1 & CN 1700826 A	1-5
A	JP 4106076 B (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 04 April, 2008 (04.04.08), Full text; all drawings (Family: none)	1-5
A	JP 2007-123173 A (Canon Inc.), 17 May, 2007 (17.05.07), Full text; all drawings (Family: none)	1-5
A	JP 2007-123174 A (Canon Inc.), 17 May, 2007 (17.05.07), Full text; all drawings (Family: none)	1-5
A	JP 2007-184251 A (Sony Corp.), 19 July, 2007 (19.07.07), Full text; all drawings & WO 2007/066719 A & WO 2007/066719 A1	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/067542

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 2007-220646 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 30 August, 2007 (30.08.07), Full text; all drawings & US 2007/0164666 A1	1-5
A	JP 2007-273094 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 18 October, 2007 (18.10.07), Full text; all drawings & US 2007/0228944 A1	1-5
A	JP 2005-222778 A (Shimadzu Corp.), 18 August, 2005 (18.08.05), Full text; all drawings (Family: none)	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/067542

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

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, 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/JP2008/067542

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

The constitution common to claims 1, 3 and claims 2, 4, 5 is an organic EL device comprising a substrate, an organic EL element formed on the substrate, and a protective substrate bonded onto the organic EL element by a bonding agent, wherein the organic EL element includes a lower electrode, an organic EL layer, an upper electrode, and a protective layer, the protective layer is a stack of a first layer closest to the upper electrode to an n-th layer, n being an integer of 3 or more, each layer of the protective layer is made of silicon oxynitride or silicon nitride, and two adjacent layers of the protective layer have different chemical compositions.

However, the search has revealed that this constitution is not novel since an organic EL element in which silicon nitride as a first sealing layer, silicon oxynitride as a second sealing layer, and silicon nitride as a third sealing layer are stacked on an upper electrode of the organic EL element, bonded by an acrylic resin bonding layer, and sealed with a glass substrate is disclosed in JP 2008-210665 A (Canon Inc.) 11 September, 2008 (11.09.08), claim5, claim7, [0103], [0118] <Comparative Example 2>.

In consequence, since the constitution makes no contribution over the prior art, this common constitution cannot be a special technical feature within the meaning of PCT Rule 13.2, second sentence.

Therefore, there is no matter common to all the inventions of claims 1-5.

Since there is no other common matter which can be considered as a special technical feature within the meaning of PCT Rule 13.2, second sentence, no technical relationship among these different inventions within the meaning of PCT Rule 13 can be seen.

As mentioned above, the inventions of claims 1-5 obviously do not satisfy the 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. H05B33/04(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 (I P C))

Int.Cl. H05B33/04, H01L51/50, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2 0 0 8 - 2 1 0 6 6 5 A (キヤノン株式会社) 2 0 0 8 . 0 9 . 1 1 , 請求項 5 ・ 7 , [0 0 0 2] ~ [0 0 0 3] , [0 0 4 9] ~ [0 0 5 1] , [0 0 9 4] ~ [0 1 0 8] , [0 1 1 8] ~ [0 1 2 0] , 【図 1】 (ファミリーなし)	1 - 5
Y	W O 2 0 0 2 / 0 1 7 6 8 9 A 1 (出光興産株式会社) 2 0 0 2 . 0 2 . 2 8 , 請求項 1 - 3 , 第 6 頁 1 0 行 ~ 第 7 頁 第 1 行 , 第 7 頁 2 3 行 ~ 第 8 頁 2 0 行 , 【図 2】 & US 2003/0071567 A1 & US 2005/0275346 A1 & EP 1317165 A1 & TW 244876 B & CN 1389085 A & KR 10-2007-0049248 A	1

☒ 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

0 5 . 0 1 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

2 0 . 0 1 . 2 0 0 9

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

磯貝 香苗

2 0

9 6 0 7

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2005-209356 A(凸版印刷株式会社) 2005.08.04, 請求項1-3, 請求項7, [0008]~[0012], [0029]~[0030], [0039]~[0041], [0063]【表1】 実施例1・2・6, [0064]~[0066](ファミリーなし)	1-5
A	J P 2008-153004 A(コニカミノルタホールディングス株 式会社)2008.07.03, 全文全図(ファミリーなし)	1-5
A	J P 2003-203771 A(松下電器株式会社) 2003.07.18, 全文全図((ファミリーなし))	1-5
A	J P 2005-302336 A(株式会社日立製作所) 2005.10.27, 全文全図 & US 2005/0231106 A1	1-5
A	J P 2006-4917 A(株式会社半導体エネルギー研究所) 2006.01.05, 全文全図 & US 2005/0263775 A1 & US 2007/0181912 A1 & CN 1700826 A	1-5
A	J P 4106076 B(松下電器株式会社) 2008.04.04, 全文全図(ファミリーなし)	1-5
A	J P 2007-123173 A(キヤノン株式会社) 2007.05.17, 全文全図(ファミリーなし)	1-5
A	J P 2007-123174 A(キヤノン株式会社) 2007.05.17, 全文全図(ファミリーなし)	1-5
A	J P 2007-184251 A(ソニー株式会社) 2007.07.19, 全文全図 & WO 2007/066719 A & WO 2007/066719 A1	1-5
A	J P 2007-220646 A(凸版印刷株式会社) 2007.08.30, 全文全図 & US 2007/0164666 A1	1-5
A	J P 2007-273094 A(凸版印刷株式会社) 2007.10.18, 全文全図 & US 2007/0228944 A1	1-5
A	J P 2005-222778 A(株式会社島津製作所) 2005.08.18, 全文全図 (ファミリーなし)	1-5

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. ☐ 請求の範囲 _____ 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. ☐ 請求の範囲 _____ 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. ☐ 請求の範囲 _____ 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の範囲について作成した。
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の範囲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の範囲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の範囲について作成した。

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。

請求の範囲 1・3 と請求の範囲 2・4・5 とに共通して有する構成は、基板と基板上に形成された有機 E L 素子と、有機 E L 素子上に接着剤を介して貼り合わせられた保護基板を含む有機 E L デバイスであって、有機 E L 素子は、下部電極、有機 E L 層、上部電極及び保護層からなり、保護層は上部電極に近い方から第 1 層から第 n 層までの積層体であり、ここで n は 3 以上の整数であり、保護層の各層は酸化窒化ケイ素又は窒化ケイ素で構成され、保護層中の隣接する 2 つの層は異なる化学組成を有する有機 E L デバイスである。

しかしながら、調査の結果、当該構成は J P 2 0 0 8 - 2 1 0 6 6 5 A (キヤノン株式会社) 2 0 0 8 . 0 9 . 1 1 , 請求項 5 ・ 請求項 7 , [0 1 0 3] , [0 1 1 8] < 比較例 2 > に、有機 E L 素子の上部電極上に第 1 封止層として窒化シリコン、第 2 封止層として酸化窒化シリコン、第 3 封止層として窒化シリコンを積層し、アクリル樹脂接着層を介してガラス基板により接着封止された有機 E L 素子が開示されているから新規ではないことが明らかとなった。

結果として、当該構成は先行技術の域を出ないから、P C T 規則 1 3 . 2 第 2 文の意味に於いて、当該共通構成は特別な技術的特徴ではない。

それ故、請求の範囲 1 - 5 に係る発明全てに共通の事項はない。

P C T 規則 1 3 . 2 の第 2 文の意味に於いて特別な技術的特徴と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間に P C T 規則 1 3 の意味における技術的な関連性を見いだすことはできない。

よって、請求の範囲 1 - 5 に係る発明は発明の単一性を満たしていないことが明らかである。