

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公開特許公報 (A) (11)特許出願公開番号

特開2003 - 297572

(P2003 - 297572A)

(43)公開日 平成15年10月17日(2003.10.17)

(51) Int.CI⁷

識別記号

F I

テマコード(参考)

H 05 B 33/14

H 05 B 33/14

A 3 K 0 0 7

33/02

33/02

33/10

33/10

審査請求 未請求 請求項の数 180 L (全 12数)

(21)出願番号 特願2002 - 96704(P2002 - 96704)

(71)出願人 000004237

日本電気株式会社

(22)出願日 平成14年3月29日(2002.3.29)

東京都港区芝五丁目7番1号

(72)発明者 東口 達

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(72)発明者 石川 仁志

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

(74)代理人 100084250

弁理士 丸山 隆夫

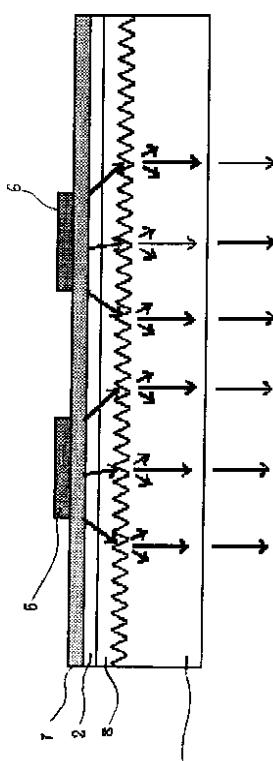
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 発光素子、その製造方法およびこれを用いた表示装置

(57)【要約】

【課題】 光もれがなく、光取り出し効率の高い発光素子を提供する。

【解決手段】 光透過性基板上に設けられた高屈折率層及びその上に設けられた透明な第1の電極及び第2の電極に挟持された1層もしくは多層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子を少なくとも備え、前記高屈折率層は発光層より大きい屈折率を有するか1.65以上の屈折率を有する材料により構成すると共に高屈折率層と光透過性基板の界面の中心線平均粗さが0.01μm以上、0.6μm以下になるように粗面化する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 光透過性基板上に、高屈折率層と、透明な第1の電極及び第2の電極とに挟持された1層もしくは多層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子とを少なくとも備え、前記高屈折率層は1.65以上の屈折率を有すると共に、前記高屈折率層と前記光透過性基板との界面が、中心線平均粗さで0.01μm以上、0.6μm以下の範囲にあることを特徴とする発光素子。

【請求項2】 光透過性基板上に、高屈折率層と、透明な第1の電極及び第2の電極とに挟持された1層もしくは多層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子とを少なくとも備え、前記高屈折率層は前記発光層よりも大きい屈折率を有すると共に、前記高屈折率層と前記光透過性基板との界面が、中心線平均粗さで0.01μm以上、0.6μm以下の範囲にあることを特徴とする発光素子。

【請求項3】 前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が、1.02以上であることを特徴とする請求項1に記載の発光素子。

【請求項4】 前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が、1.02以上であることを特徴とする請求項2に記載の発光素子。

【請求項5】 前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とする請求項1または3に記載の発光素子。

【請求項6】 前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とする請求項2または4に記載の発光素子。

【請求項7】 前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接する光透過性層が、他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする請求項1、3または5のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項8】 前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接する光透過性層が、他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする請求項2、4または6のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項9】 高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とする請求項7に記載の発光素子。

【請求項10】 高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とする請求項8に記載の発光素子。

【請求項11】 前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする請求項1、3、5、7または9のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項12】 前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする請求項2、4、6、8または10のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項13】 前記光透過性基板と前記高屈折率層と*

*の界面の形状が光透過性基板上に被覆率1以下に薄膜状に形成され、前記薄膜を有する光透過性基板がエッチングされて形成されることを特徴とする請求項1、3、5、7または9のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項14】 前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の形状が光透過性基板上に被覆率1以下に薄膜状に形成され、前記薄膜を有する光透過性基板がエッチングされて形成されることを特徴とする請求項2、4、6、8、または10のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項15】 前記高屈折率層の厚みが0.4~2μmの範囲にあることを特徴とする請求項1、3、5、7、9、11または13のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項16】 前記高屈折率層の厚みが0.4~2μmの範囲にあることを特徴とする請求項2、4、6、8、10、12または14のいずれか1項に記載の発光素子。

【請求項17】 請求項1、3、5、7、9、11、13または15のいずれか1項に記載の発光素子が複数配置された事を特徴とする表示装置。

【請求項18】 請求項2、4、6、8、10、12、14または16のいずれか1項に記載の発光素子が複数配置された事を特徴とする表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス(有機EL)素子に関し、詳細には、有機EL素子からの発光が、隣接した有機EL素子の領域に漏洩する虞の無い光の取り出し効率に優れた発光素子に関し、さらに、この素子を有する表示装置に関する。

【0002】

【従来の技術】有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子との再結合により、蛍光性物質が発光する原理を利用した自発型の発光素子である。イーストマン・コダック社のC.W.Tangらによって、積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告(C.W.Tang, S.A.VanSlyke, Applied Physics Letters, 51巻, 913頁, 1987年など)がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム)を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いた有機EL素子をガラス基板上に作製している。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高められること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高められること、発光層内で生成した励起子を閉じこめられることなどが挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送(注入)層、電子輸送性発光層の2層型、

又は正孔輸送(注入)層、発光層、電子輸送(注入)層の3層型等が知られている。こうした積層型構造素子では、注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

【0003】また、有機EL素子は、キャリア再結合の際にスピン統計の依存性により、一重項生成の確率に制限があり、したがって発光確率に上限が生じる。この上限の値はおよそ25%であると考えられている。更に有機EL素子は、その発光体の屈折率の影響のため、臨界角以上の出射角の光は全反射を起こし外部に取り出すことができない。このため発光体の屈折率がたとえば1.6とすると発光量全体の20%程度しか有効に利用できず、エネルギーの変換効率の限界としては一重項生成確率を併せ全体で5%($0.25 \times 0.2 = 0.05$)程度であり、低効率とならざるをえない(筒井哲夫「有機エレクトロルミネッセンスの現状と動向」、月刊ディスプレイ、vol.1.1、No.3、p11、1995年9月)。発光確率に強い制限の生じる有機EL素子は、光の取り出し効率が致命的ともいえる効率の低下を招くことになる。

【0004】このような光の取り出し効率を向上させる手法として、従来、無機EL素子などの同等な構造を持つ発光素子を用いて検討してきた。例えば、基板に集光性を持たせることで効率を向上させる方法(特開昭63-314795号公報)は、発光面積の大きな素子に対しては有効であるが、ドットマトリクスディスプレイ等の画素面積の微小な素子には、集光性を持たせるレンズの形成が困難である。また基板ガラスと発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法(特開昭62-172691号公報)もあるが、この方法では、前方への光の取り出し効率の改善の効果はあるが全反射を有効に防ぐことはできない。したがって屈折率の大きな無機EL素子に対しては有効であっても、比較的低屈折率の発光体である有機EL素子に対しては大きな改善効果を生まない。

【0005】また基板の有機EL素子と接しない面における全反射を低減させる方法として、この面に光を拡散させる機能を持たせる手法(特開2000-231985号公報)があるが、従来用いられているガラス基板では有機EL素子とガラス基板の間の界面において全反射される光の割合が大きいために、その効果は小さい。

【0006】またこうした光拡散機能を有する基板を用いて、有機EL素子を複数並べた発光素子を作製した場合、有機EL素子から発せられた光が隣接する画素領域へ到達するために、本来非発光画素であるはずの画素から光が観測される光もれの問題が生じる。この光もれを解決するために、基板と有機EL素子の間にブラックマスクと光拡散層を設ける手法が検討されている(特開平11-8070号公報参照)。

【0007】しかしながらこの場合には、ブラックマス

クによって光の一部が吸収されてしまうため、光取り出し効率がさらに低下するという問題点がある。したがって有機EL素子を用いた発光素子の光もれ防止と光の取り出し効率の改善方法は未だ不十分であり、この方法の開拓が有機EL素子の実用化に不可欠である。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、有機EL素子を用いた発光素子の光もれ防止と光の取り出し効率を改善し、高性能な発光素子及び表示装置を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】請求項1に記載の発光素子の発明は、光透過性基板上に、高屈折率層と、透明な第1の電極及び第2の電極とに挟持された1層もしくは多層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子とを少なくとも備え、前記高屈折率層は1.65以上の屈折率を有すると共に、前記高屈折率層と前記光透過性基板との界面が、中心線平均粗さで0.01μm以上、0.6μm以下の範囲にあることを特徴とする。

【0010】請求項2に記載の発光素子の発明は、光透過性基板上に、高屈折率層と、透明な第1の電極及び第2の電極とに挟持された1層もしくは多層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子とを少なくとも備え、前記高屈折率層は前記発光層よりも大きい屈折率を有すると共に、前記高屈折率層と前記光透過性基板との界面が、中心線平均粗さで0.01μm以上、0.6μm以下の範囲にあることを特徴とする発光素子。

【0011】請求項3に記載の発光素子の発明は、請求項1において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が、1.02以上であることを特徴とする。

【0012】請求項4に記載の発光素子の発明は、請求項2において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が、1.02以上であることを特徴とする。

【0013】請求項5に記載の発光素子の発明は、請求項2において、前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とする請求項1または3に記載の発光素子。

【0014】請求項6に記載の発光素子の発明は、請求項2または4において、前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とする。

【0015】請求項7に記載の発光素子の発明は、請求項1、3または5のいずれか1項において、前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接する光透過性層が、他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする。

【0016】請求項8に記載の発光素子の発明は、請求項2、4または6のいずれか1項において、前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接す

る光透過性層が、他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする。

【0017】請求項9に記載の発光素子の発明は、請求項7において、高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とする。

【0018】請求項10に記載の発光素子の発明は、請求項8において、高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とする。

【0019】請求項11に記載の発光素子の発明は、請求項1、3、5、7または9のいずれか1項において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする。

【0020】請求項12に記載の発光素子の発明は、請求項2、4、6、8または10のいずれか1項において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする。

【0021】請求項13に記載の発光素子の発明は、請求項1、3、5、7または9のいずれか1項において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の形状が光透過性基板上に被覆率1以下に薄膜状に形成され、前記薄膜を有する光透過性基板がエッチングされて形成されることを特徴とする。

【0022】請求項14に記載の発光素子の発明は、請求項2、4、6、8、または10において、前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の形状が光透過性基板上に被覆率1以下に薄膜状に形成され、前記薄膜を有する光透過性基板がエッチングされて形成されることを特徴とする。

【0023】請求項15に記載の発光素子の発明は、請求項1、3、5、7、9、11または13のいずれか1項において、前記高屈折率層の厚みが0.4~2μmの範囲にあることを特徴とする。

【0024】請求項16に記載の発光素子の発明は、請求項2、4、6、8、10、12または14のいずれか1項において、前記高屈折率層の厚みが0.4~2μmの範囲にあることを特徴とする。

【0025】請求項17に記載の表示装置の発明は、請求項1、3、5、7、9、11、13または15のいずれか1項の発光素子が複数配置された事を特徴とする。

【0026】請求項18に記載の表示装置の発明は、請求項2、4、6、8、10、12、14または16のいずれか1項に記載の発光素子が、複数配置された事を特徴とする。

【0027】

【発明の実施の形態】発明者は上記の問題を解決すべく鋭意検討した結果、有機EL素子を用いた発光素子において、光透過性基板上に有機EL素子の発光層の屈折率よりも大きな屈折率がある場合は1.65よりも大きな屈

折率を有する高屈折率層を設けた上に有機EL素子を備え、前記光透過性基板と前記高屈折率層の界面の中心線平均粗さが0.01μm以上、0.6μm以下とすることにより、光もれの影響が抑制され光取り出し効率の改善された発光素子が得られる事を見出した。

【0028】さらに前記高屈折率層の膜厚を0.4~2μmとする事及び、前記界面の展開面積比が1.02以上となるように成型する事により、さらに光もれが抑制され光取り出し効率の改善された発光素子が得られる事を見出した。ここで展開面積比とは、光透過性基板上の粗面化された部分を光透過性基板面に投影した面積をS1、光透過性基板の粗面化された部分の表面積をS2とした場合に、S2/S1で求められる数値である。

【0029】また光透過性基板を複数の光透過性層で構成し、高屈折率層と接する光透過性層の屈折率を他の光透過性層よりも小さくすることにより、さらに光もれが抑制され光取り出し効率の改善された発光素子が得られる事を見出した。

【0030】本発明の発光素子の断面図を図1及び図2に示す。従来の有機EL素子に於いては、発光層から発せられた光が有機EL素子-基板界面、基板-空気界面の2つの界面での損失により、発光層から発せられた光のおよそ2割(約20%)しか有効に取り出せない。透明な第1の電極と光透過性基板の間に発光層の屈折率よりも大きな屈折率がある場合は1.65よりも大きな屈折率を有する高屈折率層を設ける事で、有機EL素子内に閉じ込められて損失される光の割合を低減し、高屈折率層側へより多くの光を取り出すことができるが、これだけでは同時に高屈折率層-光透過性基板界面及び光透過性基板-空気界面で損失する光の割合が増え、全体としては光の取り出し効率は変化しない。

【0031】この光透過性基板と高屈折率層の界面を粗面化することにより界面で光が種々の方向へ出射、反射するために高屈折率層から光透過性基板中へ出射されない光の割合を低下させることができるが、等方的な拡散では光透過性基板-空気界面において損失される光の割合が大きいため光の取り出し効率向上の効果は小さい上に、隣接する画素への光もれが生じる。

【0032】ここで高屈折率層-光透過性基板界面を中心線平均粗さ0.01μm以上、0.6μm以下の粗面とすると、高屈折率層から光透過性基板へ導入される光のうち光透過性基板の基板面の法線方向に進む成分の割合が大きくなる。光透過性基板の法線方向に進む成分は光透過性基板-空気界面で反射されずに空気中へ射出されるため高屈折率層-光透過性基板界面での損失低減と相まって、光取り出し効率は大きく改善される。また光透過性基板の基板面の法線方向に進む光の成分が増えると、光もれの原因となる基板面に平行な方向へ広がる光の成分の割合が低下するために、隣接画素同士の光もれは改善される。

【0033】ただし、光透過性基板と有機EL素子の間に高屈折率層を設けなかった場合、有機EL素子内に閉じ込められる光の割合が非常に大きいため、光の取り出し効率の向上効果は無いに等しい。さらに光透過性基板 - 高屈折率層界面の展開面積比が1.02以上であることにより基板面の法線方向へ進む光の割合がさらに増加し、より光もれが効果的に抑制される。

【0034】また、高屈折率層を0.4~2.0μmの膜厚に形成することにより、高屈折率層内で基板面に平行な方向へ光が広がることを抑制することが出来、さらに光もれが効果的に抑制される。またさらに、光透過性基板を複数の光透過性層の積層により形成し、高屈折率層と接する光透過性層が他の光透過性層よりも小さい屈折率を有するようにして、高屈折率層 - 光透過性基板界面での損失がさらに低減されると共に、基板面の法線方向へ進む光の割合がより増大し、より高い光取り出し効率が実現される。

【0035】光透過性基板 - 高屈折率層界面の粗面化はいかなる手法も用いることが可能であるが、光透過性基板に対する逆スパッタリング法あるいは被覆率1以下の薄膜を形成しこれをマスクとして用いてエッチングする方法を用い、高屈折率層を窒化シリコン膜などのCVDや真空蒸着等の真空プロセスで製膜することで、この界面の形状形成を真空一貫プロセスで行うことが出来、低成本に目的の構造を得ることが出来る。有機EL素子の形成プロセスにスパッタリング及び真空蒸着法を用いた場合には光透過性基板から発光素子まで真空一貫プロセスにより作製することが可能であり、真空プロセスの簡素化の効果はより大きくなる。

【0036】すなわち本発明は以下のア～コの発光素子である。

ア：光透過性基板上に設けられた高屈折率層及びその上に設けられた透明な第1の電極及び第2の電極に挟持された1層もしくは複数層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子を少なくとも備え、前記高屈折率層は1.65以上の屈折率を有すると共に高屈折率層と光透過性基板の界面の中心線平均粗さが0.01μm以上、0.6μm以下であることを特徴とする発光素子。

イ：光透過性基板上に設けられた高屈折率層及びその上に設けられた透明な第1の電極及び第2の電極に挟持された1層もしくは複数層の有機薄膜層よりなる有機エレクトロルミネッセンス素子を少なくとも備え、前記高屈折率層は前記発光層よりも大きい屈折率を有すると共に高屈折率層と光透過性基板の界面の中心線平均粗さが0.01μm以上、0.6μm以下であることを特徴とする発光素子。

ウ：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が1.02以上であることを特徴とするア記載の発光素子。

工：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面の展開面積比が1.02以上であることを特徴とするイ記載の発光素子。

オ：前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とするア及びウ記載の発光素子。

カ：前記高屈折率層が窒化シリコンからなることを特徴とするキ及びケ記載の発光素子。

キ：前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接する光透過性層がその他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする前記ア、ウ、オ記載の発光素子。

ク：前記光透過性基板が複数の光透過性層からなり、高屈折率層と接する光透過性層がその他の光透過性層よりも小さい屈折率を有することを特徴とする前記イ、工、カ記載の発光素子。

【0037】ケ：高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とするキ記載の発光素子

コ：高屈折率層と接する光透過性層が多孔質シリカからなることを特徴とするク記載の発光素子

サ：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする前記ア、ウ、オ、キ、ケ記載の発光素子。

シ：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板に対する逆スパッタリング法により形成されることを特徴とする前記イ、工、カ、ク、コ記載の発光素子。

ス：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板上に被覆率1以下の薄膜を形成する工程と前記薄膜を有する光透過性基板をエッチングする工程により形成されることを特徴とするア、ウ、オ、キ、ケ記載の発光素子。

セ：前記光透過性基板と前記高屈折率層との界面形状が光透過性基板上に被覆率1以下の薄膜を形成する工程と前記薄膜を有する光透過性基板をエッチングする工程により形成されることを特徴とするイ、工、カ、ク、コ記載の発光素子。

ソ：前記高屈折率層が0.4~2μmの厚さを有することを特徴とするア、ウ、オ、キ、ケ、サ、ス記載の発光素子。

タ：前記高屈折率層が0.4~2μmの厚さを有することを特徴とするイ、工、カ、ク、コ、シ、セ記載の発光素子。

チ：ア、ウ、オ、キ、ケ、サ、ス記載の発光素子を複数並置した事を特徴とする表示装置。

ツ：イ、エ、カ、ク、コ、シ、セ、タ記載の発光素子を複数並置した事を特徴とする表示装置。

【0038】<実施形態>本発明における有機EL素子の素子構造は、第1の電極、第2の電極の両電極間に少なくとも発光層を含む1層あるいは複数層の有機層を有

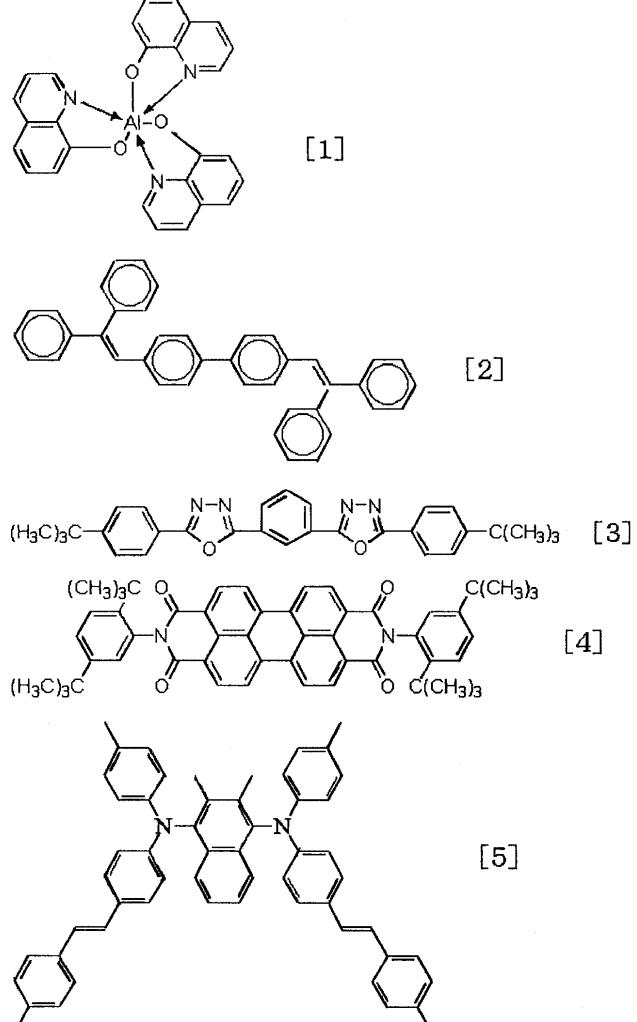
する構造でありさえすれば、特にその構造に制約を受けない。第1の電極、第2の電極はいずれかが陽極、他方が陰極の役割を果たす。第1の電極が陽極、第2の電極が陰極である場合、有機EL素子の構造例として、図3～6に示すように 陽極、発光層、陰極、 陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、 陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは 陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。またこれらの有機層間及び有機層電極間に電荷注入特性の向上や絶縁破壊を抑制あるいは発光効率を向上させる目的で、弗化リチウム、弗化マグネシウム、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等の無機の誘電体、絶縁体からなる薄膜層、あるいは有機層と電極材料又は金属との混合層、あるいはポリアニリン、ポリアセチレン誘導体、ポリジアセチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体等の有機高分子薄膜を挿入してもよ *

*い。本発明に用いられる発光材料としては特に限定されず、通常発光材料として使用されている化合物であれば特に制限されず、何を使用してもよい。

【0039】例えば、下記のトリス(8-キノリノール)アルミニウム錯体(A1q3)[1]、ビスジフェニルビニルビフェニル(BDPVBi)[2]、1,3-ビス(p-t-ブチルフェニル-1,3,4-オキシアゾールイル)フェニル(OXD-7)[3]、N,N'-ビス(2,5-ジ-t-ブチルフェニル)ペリレンテトラカルボン酸ジイミド(BPPC)[4]、1,4-ビス(N-p-トリル-N-4-(4-メチルスチリル)フェニルアミノ)ナフタレン[5]等の低分子発光材料、ポリフェニレンビニレン系ポリマーなどの高分子系発光材料を挙げることができる。

【0040】

【化1】



【0041】また、電荷輸送材料に蛍光材料をドープした層を発光材料として用いることもできる。例えば、前記のA1q3(化学式[1])などのキノリノール金属錯体に4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM)(化学式[6])、2,3-キナクリドン(化学式

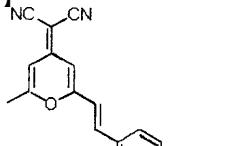
[7])などのキナクリドン誘導体、3-(2'-ベンゾチアゾール)-7-ジエチルアミノクマリン(化学式[8])などのクマリン誘導体をドープした層、あるいは電子輸送材料ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリン)-4-フェニルフェノール-アルミニウム錯体(化学式[9])にペリレン(化学式[10])等の縮

11

含多環芳香族をドープした層、あるいは正孔輸送材料
4,4'-ビス(*m*-トリルフェニルアミノ) ピフェニル(TPD)(化学式[11])にルブレン(化学式
[12])等をドープした層等を用いることができる。

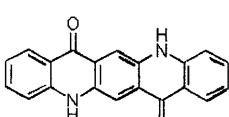
【0042】

【化2】

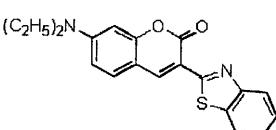


12

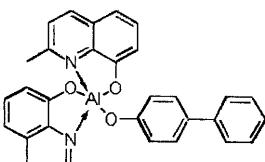
[6]



[7]



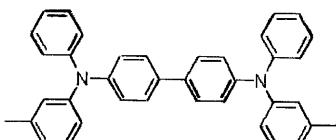
[8]



[9]



[10]



[11]

10



[12]

[6]

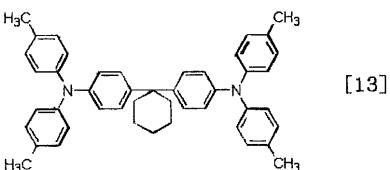
[9]

[10]

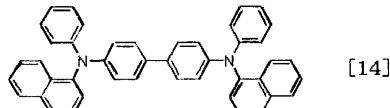
[11]

20

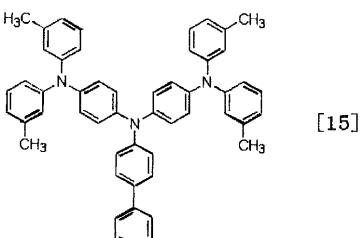
30



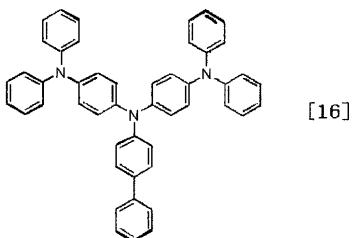
[13]



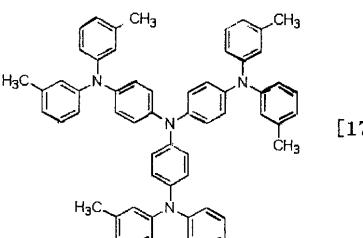
[14]



[15]



[16]



[17]

【0043】本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限
定されず、通常正孔輸送材料として使用されている化
合物であれば何を使用してもよい。例えば、ビス(ジ(*p*
-トリル)アミノフェニル) - 1,1 - シクロヘキサン
(化学式[13])、TPD(化学式[11])、N,N'-ジフェニル-N-N-ビス(1-ナフチル)
-1,1'-ビフェニル) - 4,4'-ジアミン(NPB)
(化学式[14])等のトリフェニルジアミン類
や、スターバースト型分子(化学式[15]～[17]
等)等が挙げられる。

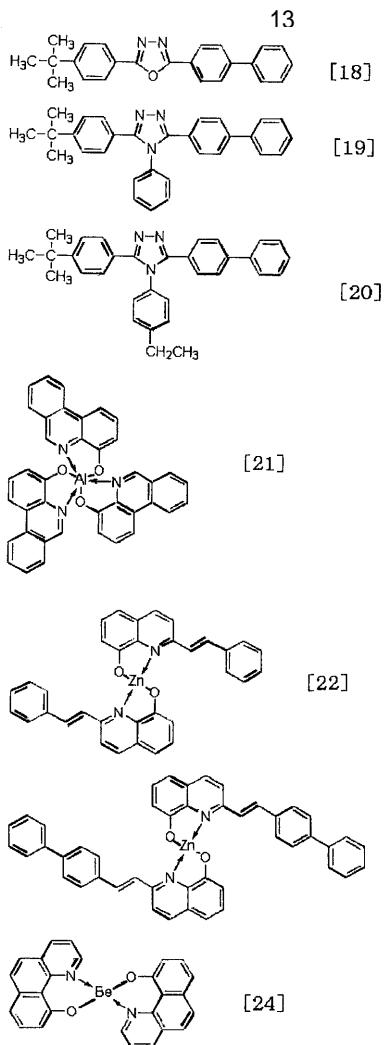
【0044】

【化3】

【0045】本発明に用いられる電子輸送材料は特に限
定されず、通常電子輸送材として使用されている化合物
であれば何を使用してもよい。例えば、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(Bu-PBD)(化学式
[18])、OXD-7(化学式[3])等のオキサジ
アゾール誘導体、トリアゾール誘導体(化学式[1
9]、[20]等)、キノリノール系の金属錯体(化学
式[1]、[9]、[21]～[24]等)が挙げられ
る。

【0046】

【化4】



【0047】有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上30の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、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、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。

【0048】本発明の有機EL素子に於ける各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記の化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスティング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

【0049】本発明に於ける有機EL素子の発光層、正孔輸送層、電子輸送層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

【0050】本発明における高屈折率層は発光層の屈折率より大きい屈折率か、1.65よりも大きい屈折率を有する。これに用いることの出来る材料の例としてはF

10 D-11、LaK3、BaF10、LaF2、SF13、SFS1などの高屈折率光学ガラスやジルコニア、Ta₂O₅、サファイアガラス、チタニアガラス、ZnSe、窒化シリコン等の無機材料の他、ポリエーテルスルホン(PES)系樹脂などに代表される含硫黄系樹脂等が挙げられる。また本発明における光透過性基板およびこれを構成する光透過性層としては有機EL素子から発せられる光に対して透過性を有していればどのようなものでも用いることができる。例えばガラスの他、多孔質シリカや樹脂からなる基板も用いることができる。

20 【0051】本発明の高屈折率層に接する光透過性層は他の光透過性層よりも小さい屈折率を有するが、さらに1.3以下の屈折率を有することが望ましい。1.3以下の屈折率を有する光透過性層としては多孔質シリカなどが使用できる。

【0052】光透過性基板と高屈折率層の界面を粗面化する方法としては、目的の界面形状が得られればどのようなものでも用いることができる。例としては研磨法や逆スパッタリング法、さらに被覆率1以下の薄膜を形成しこれをマスクとしてエッチングを行う方法の他、多孔性シリカからなる光透過性層の表面の凹凸をそのまま利用することも可能である。プロセスとしては、光透過性基板を粗面化しその上に高屈折率層を形成しても、高屈折率層を粗面化しその上に光透過性基板を形成しても、いずれでも良い。

【0053】これらのうち、光透過性基板の粗面化を逆スパッタリング法やドライエッチング法によって行い、この上にプラズマCVD法などにより窒化シリコンを形成した場合、各プロセスを真空一貫の条件下で行うことができコスト面で有利である。また、有機エレクトロルミネッセンス素子の形成もスパッタリング及び真空蒸着法を用いて行った場合、その全工程を真空プロセス中で行うことができ、コスト削減効果はさらに大きくなる。

【0054】前記被覆率1以下の薄膜を形成する材料としては、金、銀、ニッケル、コバルト等の金属やそれらの合金、あるいは酸化インジウム錫合金などの金属酸化物などの無機物を、真空蒸着あるいはスパッタリング等の一般的な製膜法により島状に形成したものが使用できる他、通常のフォトリソグラフィー用レジストを島状パターンに露光後現像したものも使用できる。エッチング法としてはウェットエッチング、ドライエッチングのい

50

ずれも使用できるが、前述の通りドライエッティング法を用いた場合、後のプロセスとの組み合わせによって大きなコスト削減効果が期待できる。

【0055】以下、本発明を実施例をもとに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されて解釈されるものではない。

【0056】

【実施例1】実施例1の発光素子の構造を図1に示す。ガラス基板に対しArを用いた逆スパッタリング法を基板表面の中心線平均粗さが0.01μmになるまで行った。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した。この上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/になるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。この電極2上に正孔輸送層3として、化学式[14]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として[1]を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次いで、第2の電極6としてマグネシウム-銀合金を、マスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう、幅80μm、間隔120μmに、厚さ200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない10050cd/m²の発光が得られた。

【0057】

【実施例2】ガラス基板に対し逆スパッタリング法を用いて基板表面の中心線粗さが0.05μmとなるまで行った以外は実施例1と同様にして、発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない11000cd/m²の発光が得られた。

【0058】

【実施例3】ガラス基板に対し逆スパッタリング法を用いて基板表面の中心線粗さが0.6μmになるまで行った以外は実施例1と同様にして、発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない10100cd/m²の発光が得られた。

【0059】

【実施例4】ガラス基板に対し逆スパッタリング法を行い、基板表面の中心線粗さが0.05μmで、かつ展開面積比が1.03になるまで行った以外は実施例1と同様にして、発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない12000cd/m²の発光が得られた。

【0060】

【実施例5】窒化シリコン膜の膜厚が0.4μmである他は実施例4と同様の手法により発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない10900cd/m²の発光が得られた。

【0061】

【実施例6】窒化シリコン膜の膜厚が2μmである他は実施例4と同様の手法により発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない11000cd/m²の発光が得られた。

【0062】

【実施例7】石英ガラス基板に対しDCスパッタ装置により電流2mA、製膜時間120秒の条件で金を製膜した。これに対し、圧力で2.6Paの四フッ化炭素ガスを用いた反応性イオンエッティングをRFパワー100W、エッティング時間233秒の条件で行った。エッティング後、王水により金を取り除いた。こうして得られたガラス基板面は中心線粗さ0.02μm、展開面積比1.25の粗面であった。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/になるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化学式[14]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として化学式[1]の化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金を、マスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう、幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれがない10050cd/m²の発光が得られた。

【0063】

【実施例8】ガラス基板に対しDCスパッタ装置により電流2mA、製膜時間120秒の条件で金を製膜した。これに対し、2.6Paの四フッ化炭素ガスを用いた反応性イオンエッティングをRF出力100W、エッティング時間233秒の条件で行った。エッティング後、王水により金を取り除いた。こうして得られたガラス基板面は、中心線粗さ0.02μm、展開面積比1.25の粗面であった。この上にジルコニアを真空蒸着法により1.8μmの膜厚で形成した。ジルコニア膜を研磨により平坦化した上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/になるようにスパッタ

リング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化学式[14]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成し、その上に発光層4として化学式[1]の化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次いで、電子輸送層5として化学式[18]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金を、マスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに、厚さ200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない13800cd/m²の発光が得られた。

【0064】

【実施例9】ガラス基板に対しRFスパッタ装置によりRF出力200W、製膜時間400秒の条件でコバルトを製膜した。これに、圧力で2.6Paの四フッ化炭素ガスを用いた反応性イオンエッティングをRF出力100W、エッティング時間233秒の条件で行った。エッティング後、王水によりコバルトを取り除いた。こうして得られたガラス基板面は中心線粗さ0.04μm、展開面積比1.10の粗面であった。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。窒化シリコン膜を研磨により平坦化した上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化合物[14]を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として化学式[1]の化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]の化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない13700cd/m²の発光が得られた。

【0065】

【実施例10】ガラス基板に対しコバルト膜の代わりにRFスパッタ装置によりRF出力200W、製膜時間200秒の条件で酸化インジウム錫合金を製膜する他は実施例9と同様の手法により発光素子を作製した。窒化シリコン膜を形成する前のガラス基板面は中心線粗さ0.02μm、展開面積比2.05の粗面であった。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない14000cd/m²の発光が得られた。

【0066】

【実施例11】ガラス基板に対しコバルト膜の代わりに

真空蒸着法により銀を100nmの膜厚で製膜し、高屈折率層として1.2μmの酸化ジルコニアの真空蒸着膜を用いる他は実施例9と同様の手法により発光素子を作製した。酸化ジルコニア膜を形成する前のガラス基板面は中心線粗さ0.03μm、展開面積比2.10の粗面であった。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない15000cd/m²の発光が得られた。

【0067】

【実施例12】実施例12の発光素子の構造を図2に示す。ガラス基板上にテトラエトキシシランとエタノールとシュウ酸の反応により得られた反応物と粒径15nmのシリカ粒子をメタノールに分散させたシリカゾル、さらにエタノール及びブチルセロソルブを混合した塗布液をスピンドルにより製膜した後、300℃に加熱して1000の硬化膜とした。得られた膜の屈折率は1.28であった。これに対しArを用いた逆スパッタリング法を基板表面の中心線平均粗さが0.03μmになるまで行った。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化学式[14]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として化学式[1]で示される化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない15000cd/m²の発光が得られた。

【0068】

【実施例13】窒化シリコン膜の代わりに、真空蒸着法で作製した1.2μmの膜厚のジルコニア膜を用いる他は実施例9と同様の手法により発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない15300cd/m²の発光が得られた。

【0069】

【実施例14】ガラス基板上にテトラエトキシシランとエタノールとシュウ酸の反応により得られた反応物と粒径15nmのシリカ粒子をメタノールに分散させたシリカゾル、さらにエタノール及びブチルセロソルブを混合した塗布液をスピンドルにより製膜した後、300℃

に加熱して1000(100nm)の硬化膜とした。得られた膜の屈折率は1.28であった。この上にRFスパッタ装置によりRF出力200W、製膜時間400秒の条件でコバルトを製膜した。これに対し、圧力で2.6Paの四フッ化炭素ガスを用いた反応性イオンエッチングをRF出力100W、エッチング時間80秒の条件で行った。エッチング後、王水によりコバルトを取り除いた。こうして得た基板面は中心線平均粗さ0.07μm、展開面積比1.15であった。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化学式[14]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として化学式[1]で示される化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない8500cd/m²の発光が得られた。

【0070】

【実施例15】ガラス基板に対しArを用いた逆スパッタリング法を基板表面の中心線平均粗さが0.01μmになるまで行った。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した。この上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に発光層4として化学式[5]で示される化合物を真空蒸着法により100nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない4050cd/m²の発光が得られた。

【0071】

【実施例16】ガラス基板に対しArを用いた逆スパッタリング法を基板表面の中心線平均粗さが0.01μmになるまで行った。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒

*化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した。この上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に正孔輸送層3として、化学式[14]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。その上に発光層4として化学式[1]で示される化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない8500cd/m²の発光が得られた。

【0072】

【実施例17】ガラス基板に対しArを用いた逆スパッタリング法を基板表面の中心線平均粗さが0.01μmになるまで行った。この上に窒化シリコンをプラズマCVD法により1.2μmの膜厚で形成した。得られた窒化シリコン膜の屈折率は1.98であった。この窒化シリコン膜を研磨により平坦化した。この上にITOを80μm幅、120μm間隔のストライプ状でシート抵抗が20/となるようにスパッタリング法により製膜し、第1の電極2とした。その上に発光層4として化学式[1]で示される化合物を真空蒸着法により50nm形成した。次に、電子輸送層5として化学式[18]で示される化合物を真空蒸着法にて20nm形成した。次に第2の電極6としてマグネシウム-銀合金をマスクを通した真空蒸着法によって第1の電極のストライプと直交するストライプとなるよう幅80μm、間隔120μmに200nm形成して発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から隣接画素への光もれのない15900cd/m²の発光が得られた。

【0073】

【比較例1】ガラス基板に対し逆スパッタリングを施さない以外は実施例1と同様の手法により発光素子を作製した。この素子の各有機EL素子に直流電圧10Vを順次印加したところ、各素子から3000cd/m²の発光が得られたが、各画素点灯時には隣接する画素領域から光もれが観測された。

【0074】

【発明の効果】本発明の有機EL素子を用いた発光素子によって、光もれを効果的に防止し、光の取り出し効率を改善することができ、また本発明によって、高性能な発光素子及び表示装置を提供することが可能となった。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の発光素子の断面図である。

【図2】本発明に用いられる有機EL素子の断面図であ

る。

【図3】本発明に用いられる有機EL素子の断面図である。

【図4】本発明に用いられる有機EL素子の断面図である。

【図5】本発明に用いられる有機EL素子の断面図である。

【図6】本発明に用いられる有機EL素子の断面図である。

【符号の説明】

* 1 光透過性基板

2 第1の電極

3 正孔輸送層

4 発光層

5 電子輸送層

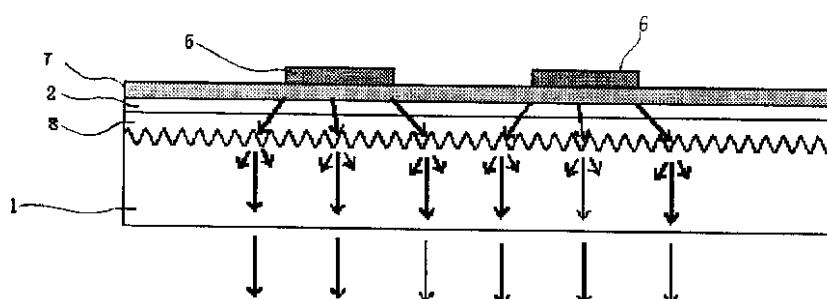
6 第2の電極

7 有機薄膜層(正孔輸送層3、発光層4、電子輸送層5)

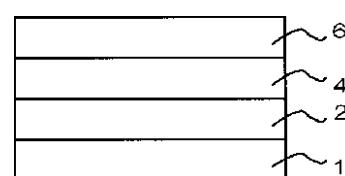
8 高屈折率層

* 10 9 低屈折率光透過性層

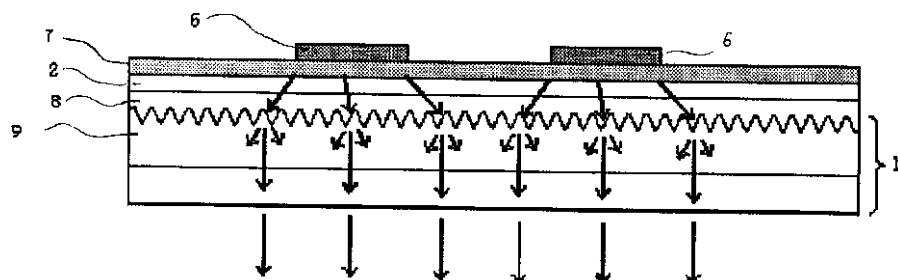
【図1】



【図3】



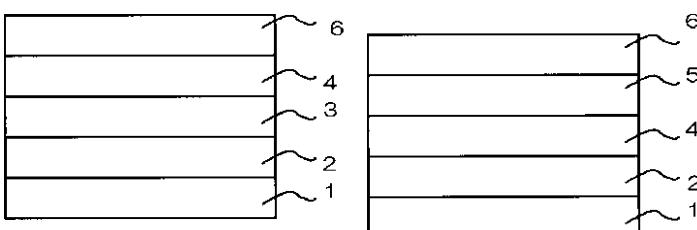
【図2】



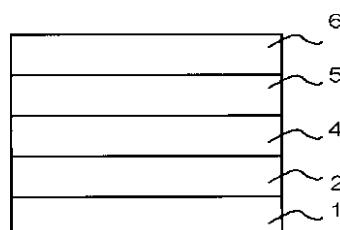
【図4】



【図5】



【図6】



フロントページの続き

(72)発明者 小田 敦

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株
式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB03 AB17 BB06 DB03 FA00

专利名称(译)	发光器件，其制造方法以及使用其的显示装置		
公开(公告)号	JP2003297572A	公开(公告)日	2003-10-17
申请号	JP2002096704	申请日	2002-03-29
申请(专利权)人(译)	NEC公司		
[标]发明人	東口達 石川仁志 小田敦		
发明人	東口 達 石川 仁志 小田 敦		
IPC分类号	H01L51/50 H01L51/52 H05B33/02 H05B33/10 H05B33/14 H05B33/22		
CPC分类号	H01L51/5275		
FI分类号	H05B33/14.A H05B33/02 H05B33/10 G09F9/30.365 G09F9/30.365.Z H01L27/32		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB17 3K007/BB06 3K007/DB03 3K007/FA00 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC05 3K107/EE28 3K107/FF06 3K107/FF08 3K107/FF15 3K107/GG05 3K107/GG12 3K107/GG22 5C094/AA10 5C094/AA16 5C094/BA27 5C094/DA13 5C094/EB01 5C094/ED20 5C094/JA01 5C094/JA08		
其他公开文献	JP4226835B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种具有高的光提取效率而不漏光的发光元件。一种有机层，其包括设置在透光基板上的高折射率层和夹在透明第一电极和设置在其上的第二电极之间的一个或多个有机薄膜层。至少提供电致发光元件，并且高折射率层由折射率大于发光层的折射率或折射率为1.65或更高，以及高折射率层与透光基板之间的界面的中心线平均粗糙度的材料构成。使表面粗糙化，使得厚度变为0.01μm以上且0.6μm以下。

