

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4564773号
(P4564773)

(45) 発行日 平成22年10月20日(2010.10.20)

(24) 登録日 平成22年8月6日(2010.8.6)

(51) Int.Cl.	F I
H05B 33/02 (2006.01)	H05B 33/02
G02B 1/11 (2006.01)	G02B 1/10 A
H05B 33/04 (2006.01)	H05B 33/04
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A
G09F 9/30 (2006.01)	G09F 9/30 365 Z
請求項の数 14 (全 17 頁) 最終頁に続く	

(21) 出願番号	特願2004-112634 (P2004-112634)	(73) 特許権者	502356528
(22) 出願日	平成16年4月7日(2004.4.7)		株式会社 日立ディスプレイズ
(65) 公開番号	特開2005-302336 (P2005-302336A)		千葉県茂原市早野3300番地
(43) 公開日	平成17年10月27日(2005.10.27)	(74) 代理人	110000154
審査請求日	平成18年6月30日(2006.6.30)		特許業務法人はるか国際特許事務所
		(72) 発明者	田中 俊明
			茨城県日立市大みか町七丁目1番1号
			株式会社 日立製作
			所 日立研究所内
		(72) 発明者	佐々木 洋
			茨城県日立市大みか町七丁目1番1号
			株式会社 日立製作
			所 日立研究所内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光素子及びその表示装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

第一の基板と、
 前記第一の基板上に形成された第一の電極と、
 第二の電極と、
 前記第一の電極と前記第二の電極との間に配置される発光層と、
 前記第二の電極上に形成された光学薄膜と、
 前記光学薄膜上に形成された第二の基板とを有する発光素子において、
 前記光学薄膜は誘電体材料を母材とし、
 前記光学薄膜は空隙を含有しており、
 前記空隙の大きさは50nm以上700nm以下の範囲であり、
 前記光学薄膜の膜厚方向における前記第一の基板と前記第一の電極の間の第一の界面から前記光学薄膜と前記第二の基板の間の第二の界面に向かって、または前記第二の界面から前記第一の界面に向かって前記空隙の割合が大きくなり、
 前記光学薄膜の膜厚方向において、前記光学薄膜の屈折率の変化が変わる部分が存在することを特徴とする発光素子。

【請求項2】

前記光学薄膜は、アルコールを含有することを特徴とする請求項1記載の発光素子。

【請求項3】

前記光学薄膜の膜厚方向における前記第一の界面から前記第二の界面に向かって、前記

空隙の長軸長さが増大していることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 4】

前記空隙の長軸は、前記第二の界面に対して平行な方向であることを特徴とする請求項 3 記載の発光素子。

【請求項 5】

前記光学薄膜の表面抵抗率が $10^{-10} / \text{cm}^2$ 以上 $10^{-11} / \text{cm}^2$ 以下であることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 6】

前記空隙の長軸の大きさが 5 nm 以上 200 nm 以下の範囲であることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

10

【請求項 7】

前記光学薄膜の膜厚は、前記光学薄膜を通過する可視光波長のピークの半分以下であることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 8】

前記光学薄膜は複数層積層されており、
かつ積層された各前記光学薄膜の膜厚が 10 nm 以上 700 nm 以下の範囲内であることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 9】

前記発光素子の構成材料が有機低分子材料或いは有機高分子材料である有機材料により構成され、

20

かつエレクトロルミネセンス光が発せられる発光層の光取り出し面方向に前記光学薄膜を積層してあることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 10】

前記第一の電極若しくは第二の電極は透明電極であり、
かつ前記光学薄膜に接して配置されていることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 11】

可視光波長域において透明な封止板が前記透明電極に接して配置されていることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 12】

前記封止板は前記光学薄膜を単層又は多層に積層して設けてあることを特徴とする請求項 9 記載の発光素子。

30

【請求項 13】

前記光学薄膜は、金属酸化物である SiO_2 又は Al_2O_3 又は TiO_2 或いは金属窒化物である SiN 又は AlN を母材とすることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 14】

前記光学薄膜を光取り出し方向に配置したことを特徴とする請求項 1 記載の発光素子を用いた発光ディスプレイ表示装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

40

自発光の素子を搭載した薄膜ディスプレイでは、有機分子材料によるエレクトロルミネセンス (EL) 発光を利用した有機 EL 発光素子が実用上期待されている。しかしながら、現在有機 EL 発光素子においては、従来光取り出し効率が 20 % 以下と小さいため、光取り出しの具体的な向上策が必要である。そこで以下に示す引例のように、有機 EL 発光素子の光取り出し効率を改善するために、サブミクロンやナノメートルオーダーの微細構造の適用が報告されている。

【0002】

例えば、公知例として特許文献 1 と 2 では、有機 EL 素子において 3 - 10 nm 厚みのシリカ粒子と 10 - 50 nm オーダーの多孔質を含んだエアロゲルを作製導入しており、基板と発光層の間に設けることにより、フォトルミネセンス発光強度の約 2 倍向上、電流効

50

率が約 1.6 倍になることが示されている。別の公知例では非特許文献 1 においては、薄膜トランジスタ基板と透明電極の間にエアロゲルを導入し、電流効率が約 60 % 改善できた結果について述べている。

【0003】

他の公知例の非特許文献 2 では、有機 EL 素子において、ガラス基板上で透明電極の下部にあたる領域に、シリコン窒化膜 SiN を設け、ガラス基板と SiN 膜の境界に深さ 70 - 400 nm で 200 - 900 nm 周期のパターンを設けたフォトニック結晶をベースとして、光取り出し効率の改善を試みている。その結果、パターン溝の深さを深くすることにより光取り出し効率が向上でき、光り取り出しを 50 % 増大できることが示されている。

10

【0004】

【特許文献 1】筒井 哲夫他，特開平 2001 - 202827 号公報

【特許文献 2】山木 健之他，特開平 2003 - 201443 号公報

【非特許文献 1】横川 弘、有機分子・バイオエレクトロニクス分科会第 9 回講習会 2001

【非特許文献 2】Yong-Jae Lee, et al. Appl.Phys.Lett, 82, 3779(2003).

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

従来発光素子では、発光層からの出射光が光取り出し面の全反射角に制約され反射光や導波光になってしまうため、外部に取り出せる光の割合が低いという課題を有している。外部に光を取り出す効率を改善するために、上記公知例のように、有機 EL 素子ではサブミクロンやナノメータオーダの微細構造が検討されているが、未だ十分な効果が得られているとは言い難い状況である。さらに引例に示される技術では、特殊な工程や複雑で精密な制御技術が必要であり、屈折率値や回折強度及び散乱強度を安定に得ることは難しく、光取り出し面での発光強度の安定性や制御性については改善する必要がある。特に、製品技術として見た場合は、生産性でスループットの低い状況であるので、改善の余地が大きいと考えられる。

20

【0006】

本発明では、新規な技術に基づいて、高効率で安定制御性に優れた光取り出しと、非常に簡便で製品技術に適用できる光学薄膜を考案作製し、その機能性や特徴を活用することによって上記課題の解決を試みた。本発明では、市販で得られる出発原料から簡便に形成できる低屈折率光学薄膜を構成し、有機 EL 発光素子の光取り出し効率を改善すると共に、それに伴って発光効率の増大や動作電流及び消費電力の低減を図ることによって、素子の性能向上を図ることを目的とした。

30

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明において導入した低屈折率の光学薄膜を説明し、有機 EL 発光素子の光取り出し効率を向上させ、電流効率の増大や動作電流及び消費電力の低減を図った内容について述べる。

40

【0008】

本発明において導入した光学薄膜について説明する。図 1 (a) は、ガラス基板上に本発明に導入した光学薄膜の概略断面図を描写してあり、図 1 (b) は実際に光学薄膜の断面構造を走査透過型電子顕微鏡により観察した写真を示す。本発明に用いた光学薄膜は、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを出発原料として膜を作製する手法により形成した。図 1 (a) (b) に示すように、母材が誘電体材料であり、その中にナノメータサイズの空隙を含有し、膜厚がナノメータオーダに制御できる光学薄膜を本発明の手法により形成できることを見出した。該当するナノメータサイズの空隙は、表面に向かって上方向に徐々に空隙の割合が増大し、かつ上方向で表面に近いほど空隙の大きさが増大していることが判明した。また、電子顕微鏡観察において空隙の中を選択的に元素分析

50

すると、ナノメータサイズの空隙中では、アルコール成分を示す炭素C，酸素O，水素Hが検出され、空隙以外の領域では、シリカSiO₂を示すシリコンSiと酸素Oのみが観測された。

【0009】

膜全体としての平均的な屈折率は、膜厚，空隙の割合や大きさの制御により、母材である誘電体材料がもつ屈折率より低い値に設定することが可能である。平均的な屈折率は、シリカ単体の場合よりも低い屈折率であることは光学的に分析評価して判明しており、膜の作製条件により、平均的な屈折率は1.09からシリカ単体の1.5まで変化させることが可能である。一例として、光学薄膜のある作製条件の場合において、屈折率と膜厚の関係を図2に示す。評価した膜の屈折率と膜厚のデータは、エリプソメトリー法により測定した結果に基づくものである。空隙を含まないように作製すると、シリカ単体となりその屈折率は1.5であった。これに対し、ナノメータサイズの空隙を含有させ、膜厚を制御すると、膜厚と共に屈折率を低下させることが判った。しかしながら、ある一定の膜厚より薄くしても、屈折率は大きく低下せず膜厚にあまり依存しなくなる傾向にあることも判明した。図2の作製条件では、膜厚が140 - 150 nmを境界にして、屈折率の変化が小さくなっていることが見出される。これは、この膜厚を境にして、膜全体に空隙が含まれるようになり、空隙の占有割合があまり変化しなくなることによって、屈折率の大きさが決まってしまうためであると考えられる。図2では、膜厚140 nm以下では、膜厚にあまり依存せず屈折率がほぼ一定の1.22 - 1.26の範囲に制御できるようになっている。このことは、光学薄膜の屈折率を制御する上では、重要な制御条件となっている。

【0010】

さらに、上記空隙の分布を電子顕微鏡写真において詳細に判定すると、表面に近い上部領域に向かって空隙の割合が大きく空隙のサイズが大きくなる傾向にある。このことは、膜厚により膜全体の平均的な屈折率が決まるとしても、膜厚方向には屈折率が低くなっていく分布を形成できることが特徴であることを示す。即ち、膜厚方向に滑らかな屈折率分布を持たせることができ、膜の作製条件により、膜厚，空隙の割合や大きさを制御することにより、屈折率分布を制御できることを示している。光学薄膜の膜厚方向で屈折率分布が滑らかに形成できることは、光が通過するときに、反射を大きく受ける界面がなく透過率を大きく減衰させずに光が透過できることを意味する。このため、本発明の光学薄膜のように、空隙の占有する割合が膜厚方向に徐々に変化して表面に向かって空隙の割合が増大していることは、滑らかに屈折率分布を形成し、屈折率を表面に向かって徐々に小さくさせ同時に表面近傍で散乱光強度を大きく生じさせる上で重要な効果を持つ。さらに、ガラス基板上に本発明の光学薄膜を形成したとき、空隙のほとんど無い領域がガラス基板との界面になるので、ガラス基板との界面で屈折率差を小さく抑え、反射による損失を最小限に抑制する効果がある。

【0011】

また電子顕微鏡観察写真の結果が示すように、光学薄膜における空隙の形状や大きさは様々であり、球状から扁平な楕円状などの形状がランダムに存在することが特徴である。空隙の大きさについては、およそ50 - 400 nmの範囲であり、可視光波長400 - 700 nmのうち青紫色波長と同程度からそれよりも短い波長に相当する、可視光波長程度以下である特徴を有していることが判った。この大きさの空隙を可視光が通過する場合には、光の波長と同程度の大きさの物体に光が当たったときに生じる散乱光、即ちMie散乱光を活用できることが特徴となる。本発明で導入する光学薄膜では、空隙の大きさを制御して、通過する光の散乱光がMie散乱となる条件を積極的に活用できるように設定することが本発明の素子構成の特徴となる。

【0012】

本発明の素子構成では、有機EL発光素子の発光層からの出射光をできるだけ外部へ取り出す効率を向上させるのが目的であるので、外部へ光を取り出すためには、光取り出し面に対する入射角を全反射角よりも小さくする必要がある。古典光学では通常の光の屈折により全反射角か或いはそれよりも大きい角度となる場合で外部に取り出せない光の成分

10

20

30

40

50

でも、上記光学薄膜の空隙における散乱光を利用すれば、光取り出し面に入射する角度を小さくでき外部へ取り出せる光の成分を増大させることができる。またM i e散乱光の分布形状は、物体に照射した後、放射状に大きく伸びる強度分布が特徴であるので、波長よりも微小な物体に衝突したときの散乱光、即ちRayleigh散乱光の球状となる強度分布よりも、外部へ取り出すときには有利に働くものと考えられる。

【0013】

ここで、入射光が物体に照射されたとき、M i e散乱において大きく反射や損失をできるだけ受けないように考える必要がある。反射や減衰を伴うことをできるだけ避け、散乱光強度が強く得られるようにするには、散乱の分布に対して波長程度に近い物体の大きさが必要としても、適度な大きさの範囲がある。光の反射や減衰を避けるには、物体の大きさが光の波長程度より小さい方が望ましい。光の反射や減衰を大きく受けたくないため、目安として波長の1/2程度までを考慮すると、M i e散乱光を有効に活用できるのはRayleigh散乱との境界となる50nmから入射光の半分の波長まで程度となる。これによると、本発明の光学薄膜に導入するナノメータサイズの空隙の大きさは、可視光波長程度を対象とするとき、50nmから200nm程度に制御することが望ましいことになる。

【0014】

次に、発光素子における光取り出しに関して、光散乱を利用することの有意性を説明する。まず図3(a)において、光取り出し面をガラス基板4として見ると、ガラス基板と空気の屈折率それぞれ n_{glass} 、1.0であるとするとき、光取り出し面では臨界角 θ_c が $\theta_c = \sin^{-1}(1/n_{\text{glass}})$ で求まり、これ以上の入射角となる光は外部へ取り出せなくなる。このため、光取り出し面における臨界角で外部への光取り出しが制限されることになる。光取り出し面において臨界角となる光線で見えていくと、立体角から計算される光取り出し効率を計算することができる。即ち、光取り出し面で臨界角となる場合の光線において、低屈折率層である光学薄膜5と透明電極6を通して、有機層7の発光点に到達したとき、発光点での出射角 θ_{st} を用いると、立体角は $2(1 - \cos \theta_{st})$ となるので、光取り出し効率 η_{ext} は $\eta_{\text{ext}} = 1 - \cos \theta_{st}$ で表される。この光取り出し効率は、低屈折率の光学薄膜5があっても、古典光学では屈折率だけで膜における光線の屈折が決まるので、変化しないことになる。

【0015】

これに対して、図3に示すような本発明の光学薄膜5は低屈折率層であるだけでなく、可視光波長程度以下のナノメータサイズの空隙を有するため、上記のM i e散乱光として上部へ取り出すことが可能となる。図3に示す光学薄膜5の空隙領域は、ガラス基板の光取り出し面で規定される入射角よりも大きな角度で入射する光を散乱光として、入射角度を変化させることになる。このため、散乱光の一部分が光取り出し面で臨界角より小さい入射角を有する光の成分として外部に取り出せる。この際、光取り出し効率は、光学薄膜5の空隙領域で散乱光にして光取り出しを向上させることができるので、光取り出しのための有効な立体角を広げることになる。このことは、光取り出しに寄与する立体角 θ_{st} が大きくなることを示し、光取り出し効率 $1 - \cos \theta_{st}$ を増大できる。上記により、本発明のナノメータサイズの空隙を有する光学薄膜を導入することによって、光取り出し効率を改善できることを示すことが説明できる。

【0016】

本発明で導入する光学薄膜は、膜厚がナノメータオーダのものであるが、複数層繰り返して積層することにより、ミクロンオーダの厚膜も構成できる。図3(b)に示すように、光学薄膜5を繰り返して積層し厚膜とすることにより、空隙領域も厚くできるので、全体で屈折率を制御したり、低屈折率層の膜厚を用途に応じて設定したりすることも可能である。また散乱光を利用する領域を長く設定する必要がある場合に適用対応できる。このため、必要に応じて、本発明の光学薄膜を仕様に応じて設計でき、所望の屈折率と膜厚に設定し制御できる汎用性の高い有効な膜であるということが出来る。

【0017】

以上により、本発明の光学薄膜を積層した発光素子では、ナノメータサイズの空隙にお

10

20

30

40

50

ける可視光波長程度の光に対してMie散乱光を利用することにより、光取り出し効率を改善できる特徴を有している。光取り出し効率を向上できると、それに応じて、より少ない注入電流及び印加電圧で高い発光輝度を得ることにつながる。図4、図5及び図6では、光取り出し効率に依存した、発光輝度電流特性と動作電流及び消費電力を定量的に計算によって見積もった結果を示す。図4の結果では、通常有機EL発光素子では光取り出し効率が約20%であることを基準として、そこからどれだけ光取り出し効率が改善できると、発光輝度電流特性が向上できるかを示している。通常の光取り出し効率20%から2倍の40%、3倍の60%へ改善できるとすると、素子に対して同じ注入電流でもそれぞれ発光輝度は2倍、3倍になることを示している。また図5に示した注入電流との関係では、同じ発光輝度で見た場合、光取り出し効率を20%から2倍の40%、3倍の60%へ改善すると、それぞれ動作電流は1/2、1/3に低減できることを示し、図6に示した消費電力との関係では、光取り出し効率を20%から2倍の40%、3倍の60%へ改善すると、それぞれ消費電力は約1/3、約1/4へ低減できることを計算により明らかにした。これにより、光取り出し効率の改善は、光学的に発光輝度や発光効率の向上だけではなく、電気的にも素子の動作電流や消費電力の低減、さらにはディスプレイ表示装置全体の低消費電力動作に貢献する。

【0018】

さらに本発明で示す光学薄膜は、表面から水分を吸収する吸湿性が高いため、有機EL発光素子を封止した雰囲気中の水分をグッタリングする機能を有する膜である。その上に、通常絶縁膜では表面抵抗率が $10^{15} - 10^{16} / \text{cm}^2$ の高い値であるために、吸収したイオン性のある分子の電荷が局在化しやすく、吸収できるイオン濃度も領域において飽和に到りやすい傾向にあったが、他方、本発明での光学薄膜は表面抵抗率が $10^{10} - 10^{11} / \text{cm}^2$ と低い値であるため、帯電防止性が高いことが判明した。このため、局所的な電荷が蓄積せず、また吸着したイオン性分子が局在せずイオン濃度も飽和レベルが高いことが特徴である。以上により、本発明での光学薄膜は、水分等に影響され変質しやすい有機膜や電極の劣化を抑制する効果があり、耐環境性に優れた膜であるということができ、素子の信頼性を確保するために重要な役割を果たす。

【0019】

上記に基づいて、高効率で長期安定動作が可能な信頼性の高い発光素子とディスプレイ表示装置が実現可能となる。

【0020】

課題を解決するための手段としては以下のものがある。

【0021】

まず、基板と、第一の電極と、第二の電極と、該第一の電極と該第二の電極間に配置される発光層と、光学薄膜とを有する発光素子において、前記光学薄膜は誘電体材料を母材とし、かつ空隙を含有しており、前記光学薄膜における前記空隙の占める割合が前記光学薄膜の膜厚方向に変化していることを特徴とする発光素子である。ここで、第一の電極、第二の電極とは、発光層を挟む一対の電極のそれぞれを第一、第二と示したものである。

【0022】

また、他の手段として、上記光学薄膜が膜厚方向に屈折率分布が形成されているものや、空隙の長軸の大きさが光学薄膜の膜厚方向に変化しており、光学薄膜の光取り出し面に向かって長軸の大きさが増大しているものである。ここで、光取り出し面とは、発光層から放出された光が外部へ取り出される面、つまり発光素子の最上面と外界の空気が接する面を意味している。また空隙の長軸の大きさとは、空隙の直径の最大値近傍を意味する。

【0023】

また、他の手段として、上記光学薄膜は表面抵抗率が $10^{10} / \text{cm}^2$ 以上 $10^{11} / \text{cm}^2$ 以下であるものである。

【0024】

また、上記空隙の直径が5nm以上700nm以下の範囲であり、その空隙に前記発光層からの出射光が当たったときに生じるMie散乱に基づく散乱光を、素子外部に取り出

10

20

30

40

50

す構成を有しているものである。

【0025】

また、上記光学薄膜の膜厚は、該膜を通過する可視光波長のピークの半分以下であることを特徴とするものである。

【0026】

また、上記光学薄膜が複数層積層されており、かつ積層された各光学薄膜の膜厚が10nm以上700nm以下の範囲内であることを特徴とするものである。

【0027】

また、上記発光素子の構成材料が有機低分子材料或いは有機高分子材料である有機材料により構成され、かつエレクトロルミネセンス光が発せられる発光層の光取り出し面方向に光学薄膜を積層してあることを特徴とするものである。

10

【0028】

また、上記の第一の電極若しくは第二の電極は透明電極であり、かつ光学薄膜に接して配置されていることを特徴とするものである。

【0029】

また、可視光波長域において透明な封止板が上記透明電極に接して配置されていることを特徴とするものである。

【0030】

また、上記封止板は光学薄膜を単層又は多層に積層して設けてあることを特徴とするものである。

20

【0031】

また、上記光学薄膜は、金属酸化物である SiO_2 又は Al_2O_3 又は TiO_2 或いは金属窒化物である SiN 又は AlN を母材とすることを特徴とするものである。

【0032】

また、光学薄膜を光取り出し方向に配置したことを特徴とする上記発光素子を用いた発光ディスプレイ表示装置である。

【発明の効果】

【0033】

本発明では、ナノメータサイズの空隙を有する低屈折率の光学薄膜を導入構成し、前記光学薄膜を通して発光層の出射光を取り出すことにより、通過する波長と同程度の大きさの空隙において生じるMie散乱光を上部へ取り込んで外部へ取り出すことが可能であり、従来の素子構成に比べて光取り出し効率を改善できることを見出した。本実施例では、光取り出し効率を約1.3倍向上させ、これにより動作電流を25%低減し消費電力を27%低減させることが可能であった。また本発明における低屈折率の光学薄膜は、光学的に安定な膜であり、上記の光学的特性が安定して得られるので、電気的特性の改善にも有効に作用する効果があった。また、本発明に適用した光学薄膜は、水分を吸収する吸湿性に富み、かつ局所的な電荷の蓄積のない帯電防止性があり、耐環境性に優れた膜であるので、有機EL発光素子を構成する有機膜や電極の劣化を抑制する効果があり、素子の信頼性向上にも寄与するものであった。

30

【0034】

本発明の光学薄膜は、光学的な反射率や水分等の吸湿性などを調整するために、図3に示すように、単層だけでなく複数層繰り返した多層の膜とすることもできる。また有機EL発光素子の封止基板の両側に、本発明の光学薄膜を構成して、外部光の反射率を低減した反射防止膜としても活用できる。

40

【0035】

本発明の光学薄膜は、白色の有機EL発光素子に適用しても有効であり、青色発光素子に黄橙色の発光層を挿入した場合や青色緑色赤色の三原色の発光層を導入した素子においても効果がある。

【0036】

また本発明の実施例では、光学薄膜に関して原料としてシリカ SiO_2 の場合を例にし

50

て説明したが、光学薄膜は、用途に応じて、原料に用いる材料に関しては、酸化物或いは窒化物の誘電体絶縁膜からなる材料であればよいので、金属酸化物である Al_2O_3 や TiO_2 等、金属窒化物 SiN や AlN 等に代表される誘電体材料で構成されている材料を用いてもよい。

【発明を実施するための最良の形態】

【0037】

本発明を実施するための具体例を以下に示す。

【実施例1】

【0038】

図7(a)(b)を用いて、本発明の一実施例を以下に説明する。本実施例では、トップエミッション型の有機EL発光素子に適用した場合を示し、図7(a)と(b)により、本発明で適用した空隙を含有する低屈折率の光学薄膜17の有無による違いを比較説明する。

【0039】

図7(a)(b)において、ガラス基板或いは薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板8の上に、 LiF/AlNd 電極9、電子輸送有機層10、発光有機層11、正孔輸送有機層12、正孔注入有機層13を蒸着し、インジウム亜鉛の酸化物であるIZO透明電極14の各パターンを形成する。その後、封止ガラス板15上に、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを原料に用いて、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜層17を形成した封止板を準備しておく。この際、光学薄膜中には、可視光波長程度以下のナノメータサイズの空隙が存在するように設定し、屈折率は1.3以下の値であり1.09から1.3の範囲に設定してある。光学薄膜の膜厚は、発光層の発光スペクトルピークを中心として、中心波長とすると、 $\lambda/4$ 程度の膜厚を設定した。次に、図7(a)では、前記光学薄膜を形成していない封止ガラス板15を準備し、封止シール剤16により固定する。図7(b)では、前記光学薄膜をIZO透明電極14に対向させ接するようにして、有機EL発光素子を閉じ込めるため、前記光学薄膜を形成した封止ガラス板15を封止シール剤16により固定する。図7(b)において、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜層を素子構成に導入した本実施例の有機EL発光素子を作製した。これにより、有機層や電極を全く同一にして同時に蒸着した有機EL発光素子において、素子特性を比較することにより、本発明の光学薄膜の有る素子での効果を明確にできるようにした。

【0040】

本実施例の光学薄膜を設けた図7(b)の構成により、以下に示す特性の改善及び効果を得ることができた。まず本実施例で用いた光学薄膜では、可視光波長以下で図2に示すように150nm以下の膜を設定し、屈折率を1.20から1.25の範囲に設定した。この光学薄膜を評価すると、反射率は3-4%であり透過率は96-97%を得た。これに対して、封止ガラス基板を評価すると、反射率は8-9%であり透過率は91-92%であった。この光学薄膜は、低屈折率であるため、反射防止膜としても適用でき、透過率の割合としては1.07倍大きくできることになる。さらに、この光学薄膜は、透過強度を大きくできるだけでなく、ナノメータサイズの空隙を含有するので、Mie散乱光を生じ散乱光の一部を外部へ取り出すことに有効に働くことになる。以下に評価結果をもとに、素子の光取り出し効率を算出し、素子の動作電流や消費電力を低減するのに有効であることを実験結果により示す。図8には、それぞれの素子における発光輝度と注入電流の関係を示す。ナノメータサイズの空隙を含有する前記光学薄膜を有する素子では、光学薄膜の無い素子に比べて高い発光輝度を達成でき、電流が2mAのとき発光輝度は33%向上していた。ここで両方の素子において、電流電圧特性は全く同じ特性を示していた。これに基づいて、同じ印加電圧及び同じ注入電流において、前記光学薄膜を有する素子は、光学薄膜の無い素子に比べて、高い発光効率を有していると結論付けられる。図9に示す電流効率と注入電流密度の関係で見ると、電流効率は全体の電流密の範囲にわたって30%以上の改善が見られていることが判った。また両方の素子において、同じ注入電流時に発光

10

20

30

40

50

スペクトルを測定し、両者の違いについて評価した。図 10 に示す発光スペクトルにおいて比較を行うと、光学薄膜を有する素子ではスペクトルピークが多少長波長へシフトしていることが見られているものの、全体的なスペクトル形状の観察では特異な干渉の影響はないことが判った。

【0041】

図 11, 図 12 及び図 13 では、前項で説明した発光輝度電流特性や素子の動作電流及び消費電力に対する光取り出し効率の依存性を示し、それぞれ図 4, 図 5 及び図 6 の計算結果に対比させて、測定評価した実験結果を掲載した。図 11 では、まず光学薄膜の無い素子に対して、光取り出し効率の基準となる 20% に設定してフィッティングした。この結果をもとに、光学薄膜の有る素子に対して、光取り出し効率に依存する発光輝度電流特性から光取り出し効率を相対的に算出した。図 11 の結果から、本光学薄膜を適用した有機 EL 発光素子は光取り出し効率を 26% に向上でき、本実施例の素子において 1.3 倍の改善効果を引き出すことができることを見出した。図 12 と図 13 では、素子を 1000cd/m² の発光輝度で動作させたときを想定し、光取り出し効率と共に相対動作電流と相対消費電力をプロットした。これにより、実験評価した素子において、光学薄膜の有無による違いがどのように現れるかを調べた。図 12 と図 13 において、光学薄膜を有する素子では、動作電流の値を相対的にプロットした結果、動作電流を 25% 低減でき、消費電力を 27% 低減できることが判った。これにより、図 11, 図 12 及び図 13 に示した実験結果が計算結果とよい一致を見出すことができたので、光取り出し効率の向上がどれだけ注入電流や消費電力に効果があるかを定量的に算出することが可能となった。

【0042】

さらに本実施例で示した光学薄膜は、表面から水分を吸収し吸湿性に富み、有機 EL 発光素子の封止雰囲気中にある水分をゲッタリングする機能を有する膜であること、かつ表面抵抗率が $10^{10} - 10^{11} / \text{cm}^2$ の低い値であるため高い帯電防止性を有している特徴を有する。通常の絶縁膜では表面抵抗率が $10^{15} - 10^{16} / \text{cm}^2$ の高い値であるため、吸収したイオンの電荷が局在化しやすく、吸収できるイオン濃度も飽和しやすい傾向にあったが、本実施例で示した光学薄膜は、局所的な電荷が蓄積し難い膜であり、吸収イオン濃度の飽和レベルの高い膜であることが特徴である。本発明の光学薄膜は、上記のように耐環境性に優れるので、水分等に影響され変質しやすい有機膜や電極の劣化を抑制する効果があり、素子の信頼性を確保するために重要な役割を果たす膜である。

【0043】

本発明の光学薄膜は、光学的な反射率や水分等の吸湿性などを調整するために、目的や仕様に応じて、単層だけでなく複数層繰り返した多層の膜とすることもできる。また有機 EL 発光素子の封止基板の両側に、本発明の光学薄膜を構成して、外部光の反射率を低減した反射防止膜としても活用できる。

【0044】

本実施例では、トップエミッション型の有機 EL 発光素子において、発光層からの出射光を光学薄膜に通過させることによって散乱光を取り出し、光学薄膜の無い場合に比べて、電流効率と外部への光取り出し効率を 1.3 倍程度改善できたことを示した。その光取り出し効率を向上できる割合に基づき、素子の動作電流及び消費電力を低減できる程度を示した。

【実施例 2】

【0045】

図 14 を用いて本発明の他実施例を以下に説明する。本実施例でも、トップエミッション型の有機 EL 発光素子に適用した場合を示すが、ナノメートルサイズの空隙を含有する光学薄膜の位置を変更して構成した。即ち、実施例 1 と同様に、ガラス基板或いは薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板 18 の上に、LiF/AlNd 電極 19, 電子輸送有機層 20, 発光有機層 21, 正孔輸送有機層 22, 正孔注入有機層 23 を蒸着した後、インジウム亜鉛の酸化物である IZO 透明電極 24 を形成する。その後、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを原料として、本発明の光学薄膜 25 を IZO 透明

電極上に接して形成する。この際、光学薄膜中には、可視光波長程度以下のナノメータサイズの空隙が存在するように設定し、屈折率は1.3以下の値であり1.09から1.3の範囲に設定してある。光学薄膜の膜厚は、発光層の発光スペクトルピークを中心として、中心波長とすると、 $\lambda/4$ 程度の膜厚を設定した。次に、有機EL発光素子を閉じ込め、封止ガラス板26を前記光学薄膜に接するように、封止シール剤27を用いて固定する。

【0046】

本実施例の光学薄膜を構成させることにより、トップエミッション型の有機EL発光素子において、発光層からの出射光を直接光学薄膜に通して、Mie散乱光を上部へ取り出し、光学薄膜の無い場合に比べて、外部への光取り出し効率を上記実施例1と同程度以上へ改善できた。さらに、光取り出し効率の向上に伴って、素子の動作電流及び消費電力を低減できた。

【実施例3】

【0047】

図15を用いて本発明の他実施例を以下に説明する。本実施例では、ボトムエミッション型の有機EL発光素子に適用した場合を示す。図15において、ガラス基板或いは薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板28の上に、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを原料として、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜29を形成した。次に、ITO透明電極30、正孔注入有機層31、正孔輸送有機層32、発光有機層33、電子輸送有機層34、LiF/Al電極35を形成する。これにより、前記光学薄膜をITO透明電極に接する形で設定した構成となる。その後、有機EL発光素子を閉じ込めるため、封止ガラス板36を封止シール剤37により固定する。

【0048】

本実施例の光学薄膜を構成させることにより、ボトムエミッション型の有機EL発光素子において、発光層からの出射光を直接光学薄膜に通して、Mie散乱光を下部へ取り出し、光学薄膜の無い場合に比べて、外部への光取り出し効率を上記実施例1と同程度以上へ改善できた。さらに、光取り出し効率の向上に伴って、素子の動作電流及び消費電力を低減できた。

【実施例4】

【0049】

図16、図17及び図18を用いて本発明の他実施例を以下に説明する。図16と図17では、トップエミッション型の有機EL発光素子により、ディスプレイ表示装置用のRGB画素を形成する。図16と図17において、薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板38の上に、LiF/AlNd電極39を設けた後、それぞれRGB画素を形成するためと画素間を分離するためのバンク層40を形成する。その後、それぞれ実施例1及び2と同様にして、発光層を赤色緑色青色の波長域に相当するように材料を選択して有機膜を蒸着し、RGB画素を図に示すように設ける。次に、図16では、実施例1と同様にして、封止ガラス板41上に、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを原料に用いて、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜42を形成した封止板を準備し、前記光学薄膜をIZO透明電極に対向させ接するようにして、有機EL発光素子を閉じ込めるため、前記光学薄膜42を形成した封止ガラス板41を封止シール剤43により固定する。また、図17では、実施例2と同様にして、IZO透明電極上に、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜42を形成し、その後、有機EL発光素子を閉じ込め、封止ガラス板41を前記光学薄膜42に接するように、封止シール剤43を用いて固定する。

【0050】

さらに、図18では、ボトムエミッション型の有機EL発光素子により、ディスプレイ表示装置用のRGB画素を形成する。図18において、薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板38の上に、シリカ分散ゾル、コロイダルシリカ及びアルコールを原料として、ナノメータサイズの空隙を含有する光学薄膜42を形成した。次に、ITO透明電極44を形成した後、それぞれRGB画素を形成するためと画素間を分離するためのバンク

層40を形成する。次に、それぞれ実施例3と同様にして、発光層を赤色緑色青色の波長域に相当するように材料を選択して有機膜を蒸着し、RGB画素を図に示すように設ける。その後、有機EL発光素子を閉じ込めるため、封止ガラス板41を封止シール剤43により固定する。

【0051】

本実施例では、トップエミッション型或いはボトムエミッション型の有機EL発光素子から構成される、それぞれRGB画素において、発光層からの出射光を光学薄膜に通して、Mie散乱光を取り出し、光学薄膜の無い場合に比べて、外部への光取り出し効率を実施例1と同程度以上に改善した。さらに、それぞれRGB画素の動作電流及び消費電力を低減できたので、ディスプレイ表示装置での消費電力も低減できる効果を得た。これによって、高効率で安定な長期動作の可能な高い信頼性を有するディスプレイ表示装置を構成できる。

【実施例5】

【0052】

図19を用いて本発明の他実施例を以下に説明する。実施例1から4までの有機EL発光素子をディスプレイ表示装置の画素に適用して、図19に示すパネル画面45を作製し、回路配線46を通して駆動電源47によりそれぞれの画素を駆動させた。個々のRGB画素では、前記光学薄膜が無い場合に比べて、光取り出し効率が改善し、動作電流及び消費電力を低減できることにより、ディスプレイ表示装置でも消費電力を低減できる効果を得た。これによって、長期間安定で高信頼性のディスプレイ表示装置を構成できる。

【実施例6】

【0053】

図20及び図21を用いて本発明の他実施例を以下に説明する。本実施例では、本発明の光学薄膜を導入し、有機EL発光素子については混色により白色となる発光層を導入して素子を構成する。これにより、本発明の光学薄膜を有した白色有機EL発光素子を液晶表示装置のバックライトとして適用することができる。

【0054】

図20において、液晶表示装置のパネル48と本発明の光学薄膜を導入した白色有機EL素子パネル53とを貼り合せた形の表示パネルモジュールを構成する。液晶表示装置のパネル48では、両側に偏光板49Aと49Bを貼り付けた一对の透明基板50Aと50Bの間に液晶層51を封止固定柱52で規定される空間に充填し、液晶層51に電圧を印加することにより光透過を制御する液晶表示装置パネル48を構成してある。本発明の光学薄膜を導入した白色有機EL素子パネル53では、透明ガラス基板54上に白色有機EL層55を形成し、透明封止板56を封止シール剤57で固定することにより、白色有機EL素子パネル53を構成してある。或いは図21に示すように、本発明の光学薄膜を導入した白色有機EL素子パネル53の構成は、透明封止板56を取り除き、封止シール剤57で直接液晶パネルに貼り合わせる形をとってもよい。液晶層51に電界を印加するためのスイッチとしての薄膜トランジスタ、及び電圧供給のための配線は省略した。またカラー表示においては、基板の内側にカラーフィルタを配置することでカラー表示ができることは言うまでも無い。

【0055】

本実施例では、白色の有機EL発光素子をバックライトに用いる構成により、液晶パネルを全面に白色光を照らすことができ、従来にない薄型のバックライト光源装置とそれを搭載する液晶ディスプレイ表示装置を構成するものである。従来の技術では、白色の無機発光ダイオード素子を点光源に用いて液晶パネルのバックライトとしているが、光源が点光源であるため光の拡がりをかせぐために、白色バックライト光源モジュールと液晶パネルの間に一定の距離を有する空間を設ける必要がある。本実施例のように、全面に点灯できる白色有機EL素子パネルを用いることによって、直接液晶パネルと貼り合わせることができ、白色有機EL素子パネルと液晶パネルの間に空間を設ける必要がなくなる。従来の技術では、白色の無機発光ダイオード素子の導波光を用いており、導光板や反射板及び光

10

20

30

40

50

学シートが必要であるために、バックライト光源装置の厚さとしては1.0 - 2.0 mmの厚さになっている。これに対して、本実施例における図20の白色有機EL素子パネル53では、0.6 - 0.9 mmの厚さに構成でき、図21の白色有機EL素子パネル53では、0.3 - 0.6 mmの厚さに構成できる。

【0056】

本実施例のように、白色有機EL発光素子を液晶表示装置のバックライトに用いることにより、従来技術の白色の無機発光ダイオード素子を用いる場合よりも低消費電力にできる上に、さらに本発明の光学薄膜を導入することにより、前記光学薄膜が無い場合に比べて光取り出し効率の改善ができ、全面における白色の光出力を同じ電流注入においても増大させることができるので、発光効率や電流効率を増大した素子特性を達成できる。白色有機EL発光素子の動作電流及び消費電力を低減できることにより、バックライト光源装置でも消費電力を低減できるので、携帯電話や情報端末機器及びデジタルビデオカメラの装置全体で消費電力を低減できる効果がある。上記により、長期間安定で高信頼性の液晶表示装置を構成できる。

【産業上の利用可能性】

【0057】

高効率で低消費電力の有機EL発光素子や照明、白色発光ダイオード素子や液晶バックライト素子などの光源装置及び信頼性が高く視野角の広いディスプレイ表示装置に適用できる。

【図面の簡単な説明】

【0058】

【図1】(a)本発明の基板上低屈折率光学薄膜の断面概略図。(b)本発明における低屈折率光学薄膜の構造断面電子顕微鏡写真。

【図2】本発明における低屈折率光学薄膜の屈折率と膜厚の関係を示す図。

【図3】(a)本発明における低屈折率光学薄膜を有する有機発光素子断面図と発光点からの光線追跡を示す図。(b)本発明における低屈折率光学積層薄膜を有する有機発光素子断面図と発光点からの光線追跡を示す図。

【図4】相対発光輝度電流特性と光取り出し効率の関係に対する計算結果を示す図。

【図5】相対動作電流と光取り出し効率の関係に対する計算結果を示す図。

【図6】相対消費電力と光取り出し効率の関係に対する計算結果を示す図。

【図7】(a)本発明の一実施例と比較する低屈折率光学薄膜の無いトップエミッション有機EL発光素子断面図。(b)本発明の一実施例における低屈折率光学薄膜を有するトップエミッション有機EL発光素子断面図。

【図8】本発明の一実施例素子における光学薄膜有無と発光輝度電流特性の関係を示す図。

【図9】本発明の一実施例素子における光学薄膜有無と電流効率電流密度特性の関係を示す図。

【図10】本発明の一実施例素子における光学薄膜有無とEL発光スペクトルの関係を示す図。

【図11】本発明の一実施例素子における相対発光輝度と光取り出し効率の関係を示す図。

【図12】本発明の一実施例素子における相対動作電流と光取り出し効率の関係を示す図。

【図13】本発明の一実施例素子における相対消費電力と光取り出し効率の関係を示す図。

【図14】本発明の他実施例における低屈折率光学薄膜を有するトップエミッション有機EL発光素子断面図。

【図15】本発明の他実施例における低屈折率光学薄膜を有するボトムエミッション有機EL発光素子断面図。

【図16】本発明の他実施例における低屈折率光学薄膜を有するトップエミッションRG

10

20

30

40

50

B有機EL発光画素断面図。

【図17】本発明の他実施例における低屈折率光学薄膜を有するトップエミッションRGB有機EL発光画素断面図。

【図18】本発明の他実施例における低屈折率光学薄膜を有するボトムエミッションRGB有機EL発光画素断面図。

【図19】本発明素子による表示装置。

【図20】本発明の白色有機EL素子をバックライトに用いた液晶表示装置。

【図21】本発明の白色有機EL素子をバックライトに用いた液晶表示装置。

【符号の説明】

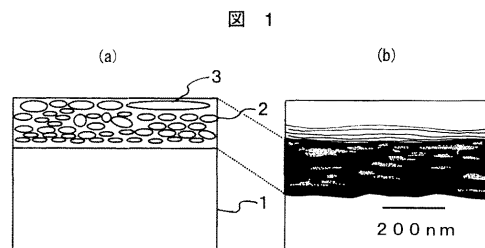
【0059】

1, 4, 54...透明ガラス基板、2, 5...空隙を含有する低屈折率光学薄膜、3...ナノメータサイズの空隙、6...透明電極、7...有機層、8, 18, 28...ガラス基板或いは薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板、9, 19, 39...LiF/AlNd電極、10...電子輸送有機層、11...発光有機層、12, 22, 32...正孔輸送有機層、13, 23, 31...正孔注入有機層、14, 24...IZO透明電極、15, 26, 36, 41...封止ガラス板、16, 27, 37, 43, 57...封止シール剤、17, 25, 29, 42...光学薄膜、20, 34...電子輸送有機層、21, 33...発光有機層、30, 44...ITO透明電極、35...LiF/Al電極、38...薄膜トランジスタ素子及び回路を有する基板、40...バンク層、45...パネル画面、46...回路配線、47...駆動電源、48...液晶表示装置パネル、49A, 49B...偏光板、50A, 50B...透明基板、51...液晶層、52...封止固定柱、53...本発明の白色有機EL素子パネル、55...白色有機EL層、56...透明封止板。

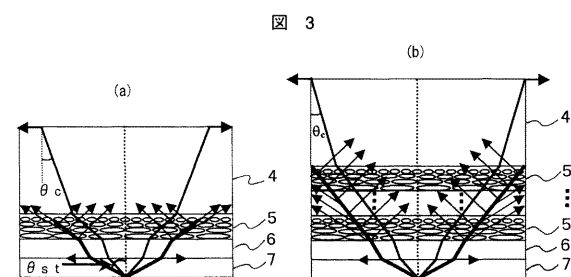
10

20

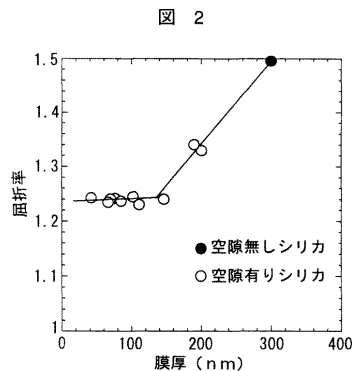
【図1】



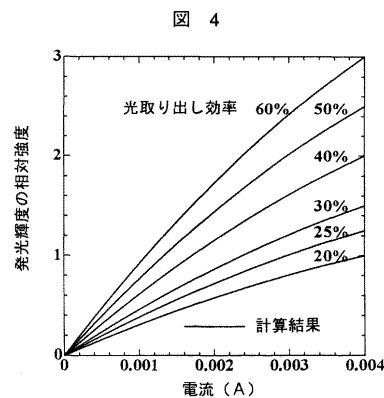
【図3】



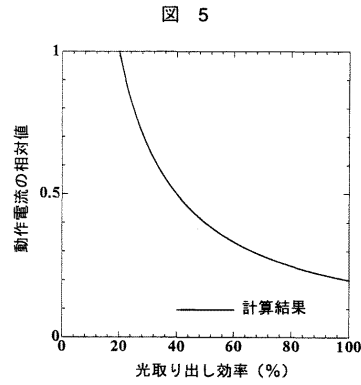
【図2】



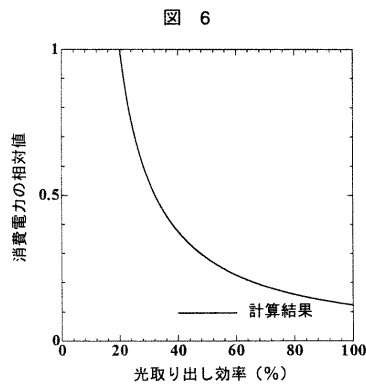
【図4】



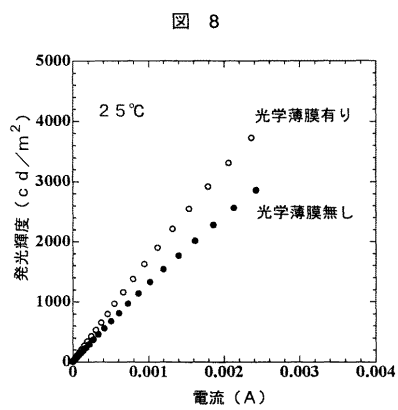
【図 5】



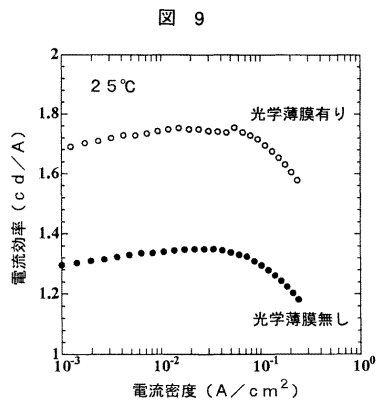
【図 6】



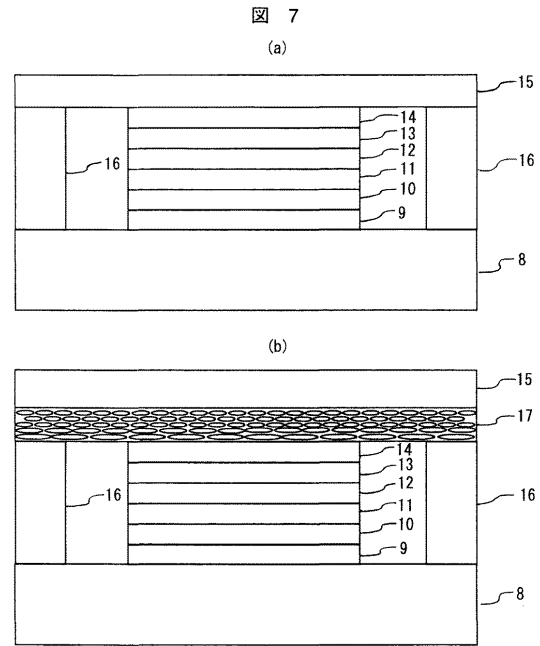
【図 8】



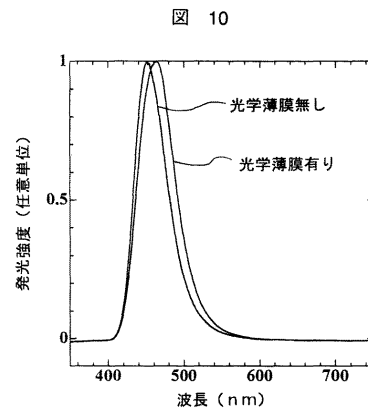
【図 9】



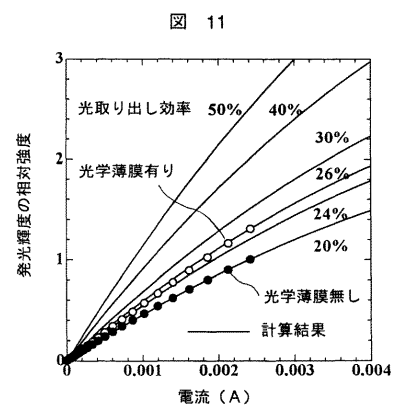
【図 7】



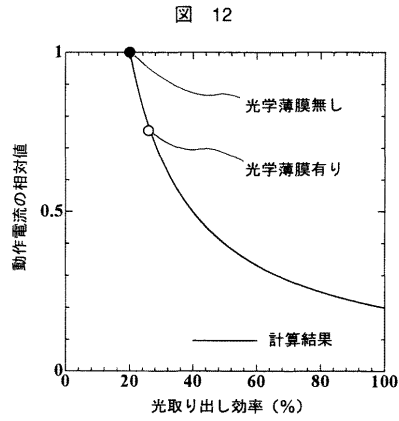
【図 10】



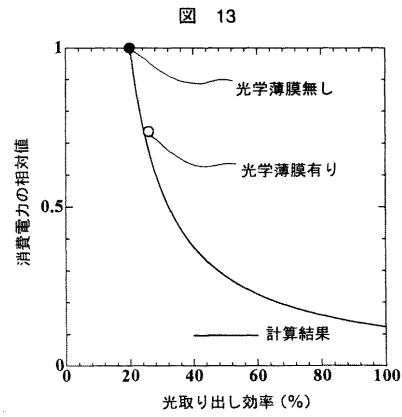
【図 11】



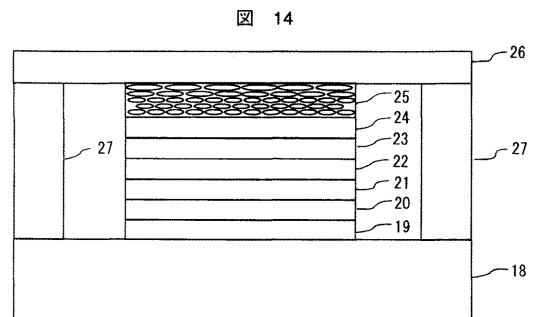
【図 12】



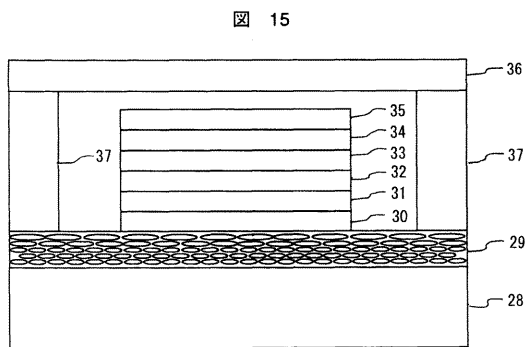
【図 13】



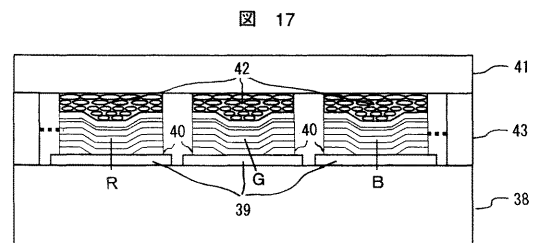
【図 14】



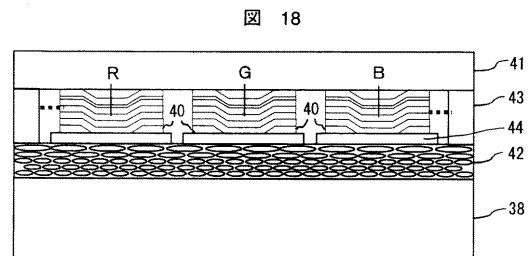
【図 15】



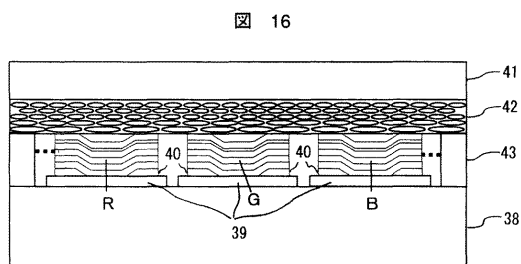
【図 17】



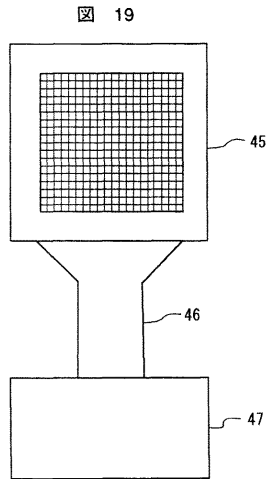
【図 18】



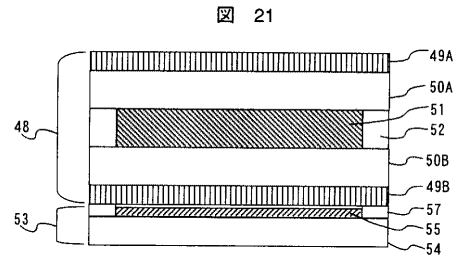
【図 16】



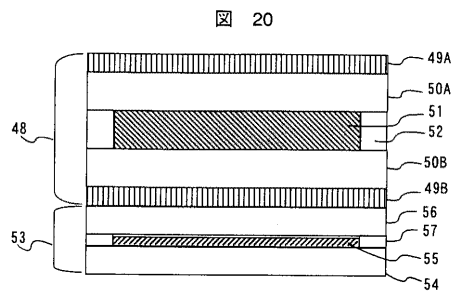
【図 19】



【図 21】



【図 20】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I

H 0 1 L 27/32 (2006.01)

- (72)発明者 村上 元
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号
所内 株式会社 日立製作所 日立研究
- (72)発明者 清水 政男
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号
所内 株式会社 日立製作所 日立研究
- (72)発明者 檜山 郁夫
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号
所内 株式会社 日立製作所 日立研究

審査官 池田 博一

- (56)参考文献 特開2003-142262(JP,A)
特開2004-087234(JP,A)
特開2003-279736(JP,A)
特開2001-313164(JP,A)
特開2002-050469(JP,A)
特開2000-019308(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0 - 5 1 / 5 6
H 0 5 B 3 3 / 0 0 - 3 3 / 2 8
H 0 1 L 2 7 / 3 2
G 0 2 B 1 / 1 1
G 0 9 F 9 / 3 0

专利名称(译)	发光装置及其显示装置		
公开(公告)号	JP4564773B2	公开(公告)日	2010-10-20
申请号	JP2004112634	申请日	2004-04-07
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社日立制作所		
申请(专利权)人(译)	株式会社日立制作所 日立显示器有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	日立显示器有限公司		
[标]发明人	田中俊明 佐々木洋 村上元 清水政男 檜山郁夫		
发明人	田中 俊明 佐々木 洋 村上 元 清水 政男 檜山 郁夫		
IPC分类号	H05B33/02 G02B1/11 H05B33/04 H01L51/50 G09F9/30 H01L27/32 G02B1/10 H01L51/52 H05B33/14		
CPC分类号	H01L51/5275 H01L27/3211 H01L51/5036 H01L51/524 H01L51/5268		
FI分类号	H05B33/02 G02B1/10.A H05B33/04 H05B33/14.A G09F9/30.365.Z G02B1/113 G02B1/16 G09F9/30.365 H01L27/32		
F-TERM分类号	2K009/AA04 2K009/BB01 2K009/BB02 2K009/CC02 2K009/CC03 2K009/CC09 2K009/DD02 2K009/DD06 3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB13 3K007/AB17 3K007/BB01 3K007/BB06 3K007/CB01 3K007/DB03 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB03 3K107/CC05 3K107/CC14 3K107/CC37 3K107/DD03 3K107/EE28 3K107/EE42 3K107/FF04 3K107/FF15 5C094/AA10 5C094/AA22 5C094/BA27 5C094/DA13 5C094/DA20 5C094/EA05 5C094/ED20 5C094/FA02 5C094/FB01 5C094/FB16 5C094/JA05 5C094/JA08 5C094/JA13 5C094/JA20		
审查员(译)	池田弘		
其他公开文献	JP2005302336A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：为了解决过去，尤其是有机EL元件中的问题，在有限层或透明电极的全反射角的限制下，取光效率保持低至20%作为组件，其阻碍了发光亮度的改善和取决于视场角的光学特性的改善。ŽSOLUTION：有机EL元件能够取出通常在全反射时将波导光或反射光转向的组件，作为在间隙中产生的散射光，通过层压低折射光学薄膜，引入间隙控制到小于可见光波长的尺寸，从而提高了取光效率，降低了工作电流和功耗。Ž

図 4

