

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2011-90942

(P2011-90942A)

(43) 公開日 平成23年5月6日(2011.5.6)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/02 (2006.01)	H05B 33/02	2K009
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A	3K107
H05B 33/22 (2006.01)	H05B 33/22 Z	
G02B 1/11 (2006.01)	G02B 1/10 A	

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2009-244573 (P2009-244573)
 (22) 出願日 平成21年10月23日 (2009.10.23)

(71) 出願人 502356528
 株式会社 日立ディスプレイズ
 千葉県茂原市早野3300番地
 (71) 出願人 000001007
 キヤノン株式会社
 東京都大田区下丸子3丁目30番2号
 (74) 代理人 100083552
 弁理士 秋田 収喜
 (74) 代理人 100103746
 弁理士 近野 恵一
 (72) 発明者 石原 慎吾
 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】 有機発光表示装置

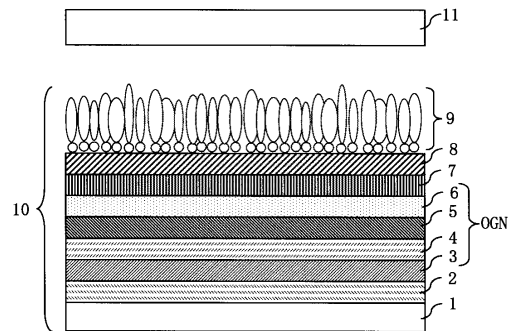
(57) 【要約】

【課題】 有機発光表示装置の光取出し効率向上を図る。

【解決手段】 反射電極（下部電極2）と透明電極（上部電極8）との間に、有機材料からなる発光層（5）が挟持された有機発光素子を有する有機発光表示装置であって、前記透明電極（上部電極8）の前記発光層（5）側の面とは反対側の面に、前記透明電極（上部電極8）よりも高屈折率の微粒子と柱状形状の酸化亜鉛とから構成された光取出し層（9）が設けられている。

【選択図】 図1

図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

反射電極と透明電極との間に、有機材料からなる発光層が挟持された有機発光素子を有する有機発光表示装置であって、

前記透明電極の前記発光層側の面とは反対側の面に、前記透明電極よりも高屈折率の微粒子と柱状形状の酸化亜鉛とから構成された光取出し層が設けられていることを特徴とする有機発光表示装置。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記光取出し層は、前記透明電極に接していることを特徴とする有機発光素子。

10

【請求項 3】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記光取出し層と前記透明電極との間に、前記透明電極と同等以上の屈折率の材料からなる絶縁膜が設けられていることを特徴とする有機発光素子。

【請求項 4】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記光取出し層の平均屈折率が 1.7 以上であることを特徴とする有機発光表示装置。

【請求項 5】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記酸化亜鉛と前記高屈折率の微粒子が層分離され、前記高屈折率の微粒子が前記酸化亜鉛よりも前記透明電極側に位置することを特徴とする有機発光表示装置。

20

【請求項 6】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記光取出し層の中に、少なくとも、酸化チタン、酸化ジルコニウム、チタン酸バリウムの中の何れか 1 種類の微粒子、或いは、複数の微粒子が含まれていることを特徴とする有機発光素子。

【請求項 7】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記高屈折率の微粒子の平均粒径が 75 nm 以上であることを特徴とする有機発光表示装置。

30

【請求項 8】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記柱状形状の酸化亜鉛の平均高さが 75 nm 以上、平均粒径が 150 nm 以上であることを特徴とする有機発光表示装置。

【請求項 9】

請求項 1 に記載の有機発光表示装置において、

前記有機発光素子は、複数有し、

前記複数の有機発光素子は、一の発光色を有する第一の有機発光素子と、前記第一の有機発光素子と異なる発光色を有する第二の有機発光素子と、前記第一及び前記第二の有機発光素子と異なる発光色を有する第三の有機発光素子とを含むことを特徴とする有機発光表示装置。

40

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、有機発光表示装置に関し、特に、トップエミッション構造の有機発光表示装置に適用して有効な技術に関するものである。

【背景技術】**【0002】**

自発光する有機エレクトロルミネセンス素子（以下「有機発光素子」という。）は、薄型表示装置、液晶表示装置の照明装置として期待されている。

50

【0003】

有機発光表示装置は、基板上に画素を構成する複数の有機発光素子と、その有機発光素子を駆動する駆動層からなる。

この有機発光素子は、下部電極と上部電極との間に複数の有機層が挟まれた構造を有している。また、複数の有機層としては、少なくとも、正孔を輸送する輸送層と、電子を輸送する輸送層と、正孔と電子が再結合する発光層とを有している。そして、有機発光素子は、両電極間に電圧を印加することにより、電極から注入された正孔と電子が発光層で再結合して発光するようになっている。

【0004】

この有機発光素子は、屈折率が2弱の発光層で発光した光を屈折率が1の空気層に取出す必要がある。屈折率の高い層から屈折率の低い層の界面では、界面法線方向に対して深い角度で入射した光が100%反射する臨界角を有する。すなわち、臨界角より深い角度で入射した光は、空気層へ出射されず、有機発光素子の内部に反射されてしまう。一般に、有機発光素子の空気層へ取り出せる光の割合は2割程度であり、8割の光は有機発光素子の内部に留まってしまう。

そのため、有機発光素子の空気層への光取出し向上が課題となっていた。

【0005】

この課題に対して、近年、光取出し側の電極と空気層との間に光取出し層を有する構造が開示されている（例えば、特許文献1参照。）。この特許文献1の光取出し層においては、平均粒径100から1000nmの透明粒子からなる透明粒子膜で構成される。同光取出し層により、正面方向での輝度が2倍程度向上した事が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2004-164902号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

特許文献1に記載の光取出し層を構成する透明粒子の形状は球形である。光取り出し層へ入射された光は、粒子と空気界面で複数回反射して、一部は空気層内に出射され、一部は有機発光素子内部に戻ってしまう。そのため、光取出し層を構成する材料の形状は、柱状粒のような長手方向を有する形状で、光取出し側電極面に対して長手方向が立った配置が望ましい。

そこで、本発明者は、光取出し層を構成する材料の形状に着目し、本発明を成した。

【0008】

本発明の目的は、有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能な技術を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本願において開示される発明のうち、代表的なものの概要を簡単に説明すれば、下記のとおりである。

【0010】

本発明は、光取出し効率の向上を図るため、柱状酸化亜鉛と高屈折率微粒子とで構成された光取出し層を有する有機発光素子構造を用いている。

具体的には、反射電極と透明電極との間に、有機材料からなる発光層が挟持された有機発光素子を有する有機発光表示装置であって、前記透明電極の前記発光層側の面とは反対側の面に、前記透明電極よりも高屈折率の微粒子と柱状形状の酸化亜鉛とから構成された光取出し層が設けられていることを特徴とする。

【0011】

本発明の前記並びにその他の目的と新規な特徴は、本明細書の記述及び添付図面によっ

10

20

30

40

50

て明らかになるであろう。

【発明の効果】

【0012】

本発明によれば、有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0013】

【図1】本発明の実施例1である有機発光素子の断面構造を示す断面図である。

【図2】本発明の実施例2である有機発光素子の断面構造を示す断面図である。

【図3】本発明の実施例3である有機発光表示装置の断面構造を示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0014】

以下、図面を参照して本発明の実施例を詳細に説明する。なお、本発明は、以下の例に限定されるものではない。

本明細書において、有機発光素子は、下記の構造をとるものをいう。すなわち、有機発光素子は、順次、基板/下部電極/第1注入層/第1輸送層/発光層/第2輸送層/第2注入層/上部電極/保護層又は封止基板(対向基板)から構成されている。

【0015】

下部電極と上部電極には、2通りの組合せがある。

まず、下部電極が陽極、上部電極が陰極の構成である。この場合、第1注入層、第1輸送層は、それぞれ、正孔注入層、正孔輸送層となり、第2輸送層、第2注入層は、それぞれ、電子輸送層、電子注入層となる。

他の組合せは、下部電極が陰極、上部電極が陽極の構成である。この場合、第1注入層、第1輸送層は、それぞれ、電子注入層、電子輸送層となり、第2輸送層、第2注入層は、それぞれ、正孔輸送層、正孔注入層となる。

また、前記構成において、第1注入層、或いは第2注入層を有さない構造も考えられる。さらに、第1輸送層、或いは第2輸送層が発光層に兼ねられる構造も考えられる。

【0016】

上部電極と下部電極には、一方の電極が発光光の透過性を有し、他方の電極が発光光の反射性を有する組合せが望ましい。その場合、透過性を有する電極から光を取出すため、同電極を光取出し電極と称する。

一方、反射性を有する電極を反射電極と称する。上部電極が光取出し電極となる場合を、トップエミッション構造と称している。一方、下部電極が光取出し電極となる場合を、ボトムエミッション構造と称している。

【0017】

基板は、絶縁性の材料であれば広い範囲から選択することが可能である。

具体的には、ガラス、アルミナ焼結体等の無機材料、ポリイミド膜、ポリエステル膜、ポリエチレン膜、ポリフェニルレンスルフィド膜、ポリパラキシレン膜等の各種絶縁性プラスチック等が使用可能である。

また、上記絶縁性の材料を表面上に形成すれば、金属材料(例えば、ステンレス、アルミ、銅、上記金属が含まれた合金等)でも問題ない。

【0018】

陽極は、正孔の注入効率を高める仕事関数の大きな導電膜が望ましい。

具体的には、金、白金、が挙げられるが、これらの材料に限定されるわけではない。また、陽極として、酸化インジウムスズ(ITO)、酸化インジウム亜鉛(IZO)、酸化インジウムゲルマニウム等の2元系、或いは酸化インジウムスズ亜鉛等の3元系であってもよい。また、酸化インジウム以外にも酸化スズ、酸化亜鉛等を主成分とした組成であってもよい。また、ITOであれば、酸化インジウムに対して5-10wt%の酸化スズを含む組成が良く用いられる。

酸化物半導体の製造法は、スパッタ法、EB蒸着法、イオンプレーティング法等が挙げられる。ITO膜、IZO膜の仕事関数は、それぞれ、4.6eV、4.6eVであるが

10

20

30

40

50

、UVオゾン照射、酸素プラズマ処理、等により、5.2 eV程度まで増大させることが可能である。

【0019】

ITO膜は、スパッタ法を用い、基板温度を200程度まで高めた条件で作製すると多結晶状態になる。この多結晶状態では、結晶粒により、表面平坦性が悪いため、表面を研磨したものが望ましい。

また、他の方法として、アモルファス状態で形成したものを加熱して多結晶状態にしたものが望ましい。

【0020】

また、陽極は、前記正孔注入層を設けることにより、仕事関数を大きい材料を用いる必要がなくなり、通常の導電膜でよくなる。具体的には、アルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル、等の金属や、これら金属を用いた合金や、ポリシリコン、アモルファスシリコン、錫酸化物、酸化インジウム、インジウム・錫酸化物（ITO）等の無機材料が望ましい。

10

【0021】

また、陽極を反射電極として用いる場合、金属膜の反射電極に透明導電膜を積層した積層膜も考えられる。各層は上記材料が望ましい。また、形成プロセスが簡便な塗布法を用いたポリアニリン、ポリチオフェン等の有機材料、導電性インクを用いてもよい。陽極はこれらの材料に限られるわけではなく、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

20

【0022】

正孔注入層は、陽極と正孔輸送層の注入障壁を下げる役割を果たしている。したがって、正孔注入層には、適当なイオン化ポテンシャルを有する材料が望ましい。また、正孔注入層は、下地層の表面凹凸を埋める役割を果たすことが望ましい。

具体的には、銅フタロシアニン、スターバーストアミン化合物、ポリアニリン、ポリチオフェン、酸化バナジウム、酸化モリブテン、酸化ルテニウム、酸化アルミニウム、等が挙げられるが、これらに限定されない。

【0023】

また、正孔輸送層は、正孔を輸送し、発光層へ注入する役割を有する。そのため、正孔輸送層は、正孔移動度が高い正孔輸送性材料からなることが望ましい。また、正孔輸送層は、化学的に安定であり、イオン化ポテンシャルが小さい、電子親和力が小さい、ガラス転移温度が高いなどの性質を備えることが望ましい。

30

具体的には、N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ピフェニル]-4, 4'-ジアミン(TPD)、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(-NPD)、4, 4', 4''-トリ(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(TCTA)、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼン(p-DPA-TDAB)、4, 4', 4''-トリス(N-カルバゾール)トリフェニルアミン(TCTA)、1, 3, 5-トリス[N, N'-ビス(2-メチルフェニル)-アミノ]-ベンゼン(o-MTDAB)、1, 3, 5-トリス[N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-アミノ]-ベンゼン(m-MTDAB)、1, 3, 5-トリス[N, N'-ビス(4-メチルフェニル)-アミノ]-ベンゼン(p-MTDAB)、4, 4', 4''-トリス[1-ナフチル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(1-TNATA)、4, 4', 4''-トリス[2-ナフチル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(2-TNATA)、4, 4', 4''-トリス[ピフェニル-4-イル-(3-メチルフェニル)アミノ]トリフェニルアミン(p-PMTDATA)、4, 4', 4''-トリス[9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(TFATA)、4, 4', 4''-トリス(N-カルバゾイル)トリフェニルアミン(TCTA)、1, 3, 5-トリス-[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼン(p-DPA-TDAB)、1, 3, 5-トリス{4-[メチルフェニル(フェニル)アミノ]フェニル}ベンゼン

40

50

(MTDAPB)、N, N'-ジ(ピフェニル-4-イル)-N, N'-ジフェニル[1, 1'-ピフェニル]-4, 4'-ジアミン(p-BPD)、N, N'-ビス(9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N, N'-ジフェニルフルオレン-2, 7-ジアミン(PFFA)、N, N, N', N'-テトラキス(9, 9-ジメチルフルオレン-2-イル)-[1, 1'-ピフェニル]-4, 4'-ジアミン(FFD)、(NDA)PP、4-4'-ビス[N, N'-(3-トリル)アミノ]-3-3'-ジメチルピフェニル(HMTPD)が例示される。もちろんこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

【0024】

また、正孔輸送層は、陽極との障壁を低下させる、或いは電気伝導度を向上させるなどの目的で、前記のような正孔輸送性材料に酸化剤を添加して用いることができる。

酸化剤の具体例としては、塩化第2鉄、塩化アンモニウム、塩化ガリウム、塩化インジウム、五塩化アンチモン等のルイス酸化合物であり、トリニトロフルオレン等の電子受容性化合物である。もちろんこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

【0025】

発光層は、注入された正孔、電子が再結合し、材料固有の波長で発光する層をさす。発光層には、発光層を形成するホスト材料自体が発光する場合とホストに微量添加したドーパント材料が発光する場合がある。

具体的なホスト材料としては、ジスチリルアアリーレン誘導体(DPVBi)、骨格にベンゼン環を有するシロール誘導体(2PSP)、トリフェニルアミン構造を両端に有するオキソジアゾール誘導体(EM2)、フェナンスレン基を有するペリノン誘導体(P1)、トリフェニルアミン構造を両端に有するオリゴチオフエン誘導体(BMA-3T)、ペリレン誘導体(tBu-PTC)、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体が挙げられる。

また、発光層に用いる具体的なドーパント材料としては、キナクリドン、クマリン6、ナイルレッド、ルブレン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(パラ-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM)、ジカルバゾール誘導体、ポルフィリン白金錯体(PtOEP)、イリジウム錯体(Ir(ppy)3)が挙げられる。発光層はこれらの材料に限られず、また、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

【0026】

電子輸送層は、電子を輸送し、発光層へ注入する役割を有する。そのため、電子輸送層は、電子移動度が高い電子輸送性材料からなることが望ましい。

具体的には、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、オキサジアゾール誘導体、シロール誘導体、亜鉛ベンゾチアゾール錯体、バソキュプロイン(BCP)が望ましい。

【0027】

電子輸送層では、前記電子輸送性材料に還元剤を含有して陰極との障壁を低くしたり、電気伝導度を向上させることが望ましい。

還元剤の具体例としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物、アルカリ金属と芳香族化合物で形成される錯体が挙げられる。特に、好ましいアルカリ金属はCs、Li、Na、Kである。

【0028】

電子注入層は、陰極から電子輸送層への電子注入効率を向上させるために用いるものである。

具体的には、電子注入層の材料としては、弗化リチウム、弗化マグネシウム、弗化カルシウム、弗化ストロンチウム、弗化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウムが望ましい。

【0029】

10

20

30

40

50

陰極には、電子の注入効率を高める仕事関数の小さな導電膜を使用することが望ましい。

具体的には、陰極の材料としては、マグネシウム・銀合金、アルミニウム・リチウム合金、アルミニウム・カルシウム合金、アルミニウム・マグネシウム合金、金属カルシウムが挙げられる。

【0030】

一方、陰極に前述の電子注入層を設ければ、陰極の条件として、低仕事関数の材料を用いる必要がなくなり、一般的な金属材料を用いることが可能となる。

この場合の陰極の材料としては、具体的には、アルミニウム、インジウム、モリブテン、ニッケル、等の金属や、これら金属を用いた合金や、ポリシリコン、アモルファスシリコンを使用することができる。

10

【0031】

保護層は、上部電極上に形成され、大気内 H_2O 、 O_2 が上部電極、或いはその下の有機層に入りこむことを防ぐ役割を有する。

具体的には、保護層の材料としては、 SiO_2 、 $SiNx$ 、 Al_2O_3 等の無機材料やポリクロロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリビニルクロライド、ポリフッ化ビニリデン、シアノエチルプルラン、ポリメチルメタクリレート、ポリサルフォン、ポリカーボネート、ポリイミド等の有機材料を使用することができる。

【0032】

前記の有機発光素子を各画素に用いることにより、有機発光表示装置とすることができる。ここで有機発光表示装置といているのは、有機発光素子を画素に用いた表示装置を指している。この有機発光表示装置には、単純マトリクス有機発光表示装置とアクティブマトリクス有機発光表示装置がある。

20

単純マトリクス有機発光表示装置は、複数の陽極ラインと陰極ラインが交差した位置に正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の有機発光素子を構成する有機層が形成されており、各画素は1フレーム期間中、選択時間のみ点灯する。この選択時間は、1フレーム期間を陽極ライン数で除した時間幅となる。

アクティブマトリクス有機発光表示装置では、各画素を構成する有機発光素子に、2～4個の薄膜トランジスタのスイッチング素子及び容量から構成される駆動素子が接続されており、1フレーム期間中の全点灯が可能となる。そのため、輝度を高くする必要がなく、有機発光素子の寿命を長くすることが可能となる。有機発光表示装置には、色変換層を用いることが望ましい。

30

【0033】

画素は、表示装置の画面の縦横に多数配置されて、表示領域において文字やグラフィックを表示する最小単位のものである。

また、サブ画素というのは、カラー表示を行う表示装置において、画素をさらに分割する最小単位のものである。カラー画像においては、緑、赤、青の3色のサブ画素で構成される構造が一般的である。

また、表示領域というのは、表示装置において、画像が表示される領域をいっている。

【0034】

電流供給線は、有機発光素子と電源を接続する配線である。アクティブマトリクス有機発光表示装置において、第1の電流供給線は、電源とスイッチング素子のソース、ドレイン電極を介して、有機EL素子の下部電極を接続する配線のことである。また、アクティブマトリクス有機発光表示装置において、第2の電流供給線は、電源と各画素の共通電極となる上部電極を接続する配線のことである。

40

【0035】

〔実施例1〕

本発明に係る有機発光素子の実施形態を図面に基づいて説明する。図1は、本発明の実施例1である有機発光素子の断面構造を示す断面図である。

本実施例1では、有機発光表示装置の画素を構成するトップエミッション構造の有機発

50

光素子に本発明を適用した例について説明する。

【0036】

本実施例1の有機発光素子は、図1に示すように、ガラス基板1上に、陽極として機能する下部電極2と、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6を含む有機層OGNと、電子注入層として機能するバッファ層7と、陰極として機能する上部電極8とをこの順番で備えて構成されている。ここで、下部電極2は、例えば発光層5で発光した光を反射する機能を有する反射電極であり、上部電極8は、例えば発光層で発光した光を透過する機能を有する透明電極である。即ち、本実施例1の有機発光素子は、上部電極8が光取出し電極となるトップエミッション構造になっており、更に反射電極である下部電極2と透明電極である上部電極8との間に、有機材料からなる発光層5が挟持された構造

10

【0037】

透明電極である上部電極8の発光層5側の面と反対側の面には、上部電極8よりも屈折率が高い高屈折率微粒子と柱状形状の酸化亜鉛とから構成された光取出し層9が設けられている。本実施例において、光取出し層9は、透明電極である上部電極8に接して設けられている。また、本実施例の光取出し層9は、柱状形状の酸化亜鉛と高屈折率微粒子とが層分離され、高屈折率微粒子が酸化亜鉛よりも上部電極8側（透明電極側）に位置している。また、高屈折率微粒子としては、例えば酸化チタンの微粒子が用いられている。

【0038】

次に、本実施例1の有機発光素子の構成について、その製造方法と共に説明する。

20

まず、ガラス基板1の上に、スパッタ法を用いて、AgとIZOとの積層からなる下部電極2を形成する。膜厚は、それぞれ、150nm、20nmである。

【0039】

次に、下部電極2上に、真空蒸着法により4,4'-ビス〔N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ〕ピフェニル（以下、-NPDと称する。）と五酸化バナジウム（ V_2O_5 ）とを共蒸着して膜厚が50nm程度の第1の共蒸着膜を形成する。-NPDと V_2O_5 の混合比は、モル比で1:1となるよう、それぞれの蒸着速度を決定した。この第1の共蒸着膜は正孔注入層3として機能する。

【0040】

次に、正孔注入層3上に、真空蒸着法により膜厚50nmの-NPD膜を形成する。-NPDの蒸着速度は0.5nm/secとした。この-NPD膜は正孔輸送層4として機能する。

30

【0041】

次に、正孔輸送層4上に、真空蒸着法により4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ピフェニル（以下「CBP」という。）及びビス〔2-(2'-ベンゾ〔4,5-a〕チエニル)ピリジネイト-N,C3'〕イリジウム（アセチラセトネイト）（以下「Brp₂Ir(acac)」という。）を共蒸着して膜厚が40nm程度の第2の共蒸着膜を形成する。このCBP、Brp₂Ir(acac)の蒸着速度は、それぞれ0.20nm/sec、0.02nm/secとした。この第2の共蒸着膜は、発光層5として機能する。また、発光層5の中で、Brp₂Ir(acac)が発光色を決定するドーパントとして機能する。

40

【0042】

次に、発光層5の上に、真空蒸着法により、膜厚60nmのトリス(8-キノリノール)アルミニウム（以下「Alq₃」という。）膜を形成する。Alq₃の蒸着速度を0.2nm/secとした。このAlq₃膜は電子輸送層6として機能する。

【0043】

次に、電子輸送層6の上に、バッファ層7としてMgとAgの共蒸着膜を形成する。この場合、2元同時真空蒸着法を用いて蒸着速度を、それぞれ0.14nm/sec、0.01nm/secに設定し、膜厚10nmの膜を蒸着した。MgとAgの共蒸着膜は、その上の上部電極形成時の下地有機膜保護と電子注入の両方の機能を有する。

50

【0044】

次に、スパッタリング法により、膜厚50nmのIn-Zn-O膜（以下「IZO膜」という。）を形成する。この膜は上部電極8として機能し、非晶酸化物膜である。このときのターゲットには、 $In / (In + Zn) = 0.83$ であるターゲットを用いた。成膜条件は、Ar:O₂混合ガスを雰囲気として、真空度0.2Pa、スパッタリング出力を2W/cm²とした。Mg:Ag/IZO積層膜の透過率は65%であった。

【0045】

次に、上部電極8上に、この上部電極8よりも高屈折率の微粒子と柱状の酸化亜鉛とからなる光取出し層9を形成する。形成方法は以下の通りである。硫酸亜鉛六水和物、平均粒径が150nmの酸化チタンの微粒子（高屈折率の微粒子）、シリカゾルからなる水溶液に、エチレンジアミンを添加し、基板を60℃に加熱した状態で、スピコート法を用いて形成する。硫酸亜鉛六水和物はエチレンジアミンと反応し酸化亜鉛となる。酸化亜鉛は基板に垂直な方向に長手方向がむく柱状結晶となる（柱状形状の酸化亜鉛）。柱状結晶の平均高さは500nm、平均直径は150nmとなった。ここで、柱状結晶の高さとは、柱状結晶の長手方向において一番長い部分を指す。また、柱状結晶の直径とは、同結晶の長手方向に対して垂直の断面において、全ての断面が内側にはいる円の最小直径を指す。また、平均とは複数ある柱状結晶の高さ、直径の平均値の事をさす。柱状結晶の平均直径は、75nm~500nmの範囲が望ましい。また、柱状結晶の平均高さは、平均直径に対して2倍以上の長さが必要であり、150nm~1000nmの範囲が望ましい。硫酸亜鉛六水和物以外には、塩化亜鉛、硫酸亜鉛を用いてもよい。また、エチレンジアミン以外には、ブチレンジアミン、プロピレンジアミン、ヘキシレンジアミン等が挙げられる。水溶液に添加した酸化チタンの微粒子は比重が大きいため、柱状結晶となる酸化亜鉛と層分離して、酸化亜鉛よりも上部電極8側に選択的に形成される。シリカゾルは酸化チタン微粒子の表面をコートするバインダーとして機能する。酸化チタン微粒子は光取り出し層9の平均屈折率を高くさせる事が目的であり、屈折率が2以上の微粒子材料であればどんな材料でもよい。例えば、チタン酸バリウム、ジルコニア酸が挙げられる。微粒子の平均粒径は、75nm~500nmの範囲が望ましい。

【0046】

以上より、OLED基板10が完成する。次に、OLED基板10を大気に曝すことなく、乾燥窒素ガスを循環させて、高露点を保った封止室に移動させる。封止室にガラス基板を導入する。このガラス基板は、対向基板11（封止基板）となる。ガラス基板による対向基板11のエッジ部分に、シールドスペンサ装置を用いて光硬化樹脂を描画した（図示省略）。この対向基板11とOLED基板10を封止室内で貼り合せて圧着させた。対向基板11の外側に、発光素子全体にUV光が当たらないよう遮光板を置き、対向基板11側からUV光を照射させて光硬化樹脂を硬化させた。以上のような構成、製造方法により、有機発光素子を提供できる。

【0047】

上記の有機発光素子では、上部電極8の上、即ち上部電極8の発光層5側の面とは反対側の面に、酸化チタン、酸化亜鉛からなる光取出し層9が形成されている。酸化チタンの屈折率は2.7であり、酸化亜鉛の屈折率は1.8である。そのため、光取出し層9の平均屈折率は1.7程度になる。発光層5であるCBPとBrp₂Ir(acac)の共蒸着膜の屈折率は1.8である。そのため、発光層5で発光した光は、透明電極である上部電極8と光取出し層9との界面で全反射を起こさず、光取出し層9の中に入射される。

【0048】

一方、光取出し層9を構成する酸化チタンの平均粒径が150nm程度の球状形状であり、酸化亜鉛は平均径が150nm、平均高さが500nm程度の柱状形状であった。また、図1に示した様に、比重の高い酸化チタンが下側に配置し、酸化亜鉛が上側に配置する相分離構造となった。光取出し層9に入射された光は、酸化チタン微粒子、柱状形状の酸化亜鉛内を伝播して、光取出し層9と対向基板11の間にある空気層へ取出された。正面方向における輝度、電流密度、電圧特性、及び定電流におけるELスペクトル放射パタ

10

20

30

40

50

ーンの極角角度依存性を測定し、量子効率を算出した。その結果、光取出し層9を積層しない素子に比べて2.1倍の光取出し効率が向上した。

【0049】

ここで、光取出し層に適用する記述はないが、光取り出し層として形状が最適な酸化亜鉛の構造が例えば非特許文献(Crystal Growth & Design, Vol. 8, p.p. 2633-2637 (2008年))に開示されている。この非特許文献では、硝酸亜鉛六水和物とエチレンジアミンを混合して、加熱することにより、高さが1 μ m以下の柱状の酸化亜鉛が形成される事が開示されている。

【0050】

上記の非特許文献に記載の柱状酸化亜鉛は、光取り出し層を構成する材料として望ましい形状である。しかし、酸化亜鉛の屈折率は1.8程度であり、酸化亜鉛と空気が混在する柱状酸化亜鉛では、平均屈折率が1.5程度まで低下してしまう。その場合、光取出し側電極と光取出し層との界面で全反射が起こり、光取出し層へ入射される発光光量が低下し、その結果、光取出し効率が低下するという問題が生じる。

10

【0051】

これに対し、本実施例の光取出し層9は、高屈折率微粒子である酸化チタンと、柱状形状の酸化亜鉛とで構成されている。酸化チタンの屈折率は2.7であり、酸化亜鉛の屈折率は1.8であるため、光取出し層9の平均屈折率は1.7程度になる。発光層5であるCBPとBrp₂Ir(acac)の共蒸着膜の屈折率は1.8である。そのため、発光層5で発光した光は、透明電極である上部電極8と光取出し層9との界面で全反射を起こさず、光取出し層9の中に入射される。即ち、本実施例のように、透明電極である上部電極8よりも高い屈折率の高屈折率微粒子である酸化チタンと、柱状形状の酸化亜鉛とで光取出し層9を構成することにより、非特許文献に記載の柱状酸化亜鉛で光取出し層を構成した場合と比較して、有機発光素子の光取出し効率向上、換言すれば有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能となる。

20

【0052】

また、前述の特許文献1に記載の光取出し層を構成する透明粒子の形状は球形である。この場合、光取り出し層へ入射された光は、粒子と空気界面で複数回反射して、一部は空気層内に出射され、一部は有機発光素子内部に戻ってしまう。

【0053】

これに対し、本実施例の光取出し層9は、高屈折率微粒子である酸化チタンと柱状形状の酸化亜鉛とが層分離され、前記酸化チタンが前記酸化亜鉛よりも透明電極である上部電極8側に位置した構成になっている。このような構成とすることにより、特許文献1の場合と比較して、光取出し層へ入射した光が有機発光素子内部に戻ってしまうという不具合を抑制できるため、有機発光素子の光取出し効率向上、換言すれば有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能となる。

30

【0054】

〔実施例2〕

実施例2においては、上部電極と光取出し層の間に、封止機能を有する絶縁膜を設けた有機発光素子の例について説明する。図2は、本発明の実施例2である有機発光素子の断面構造を示す断面図である。

40

【0055】

ガラス基板1上の下部電極2、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、バッファ層7、上部電極8の形成法は、実施例1と同様である。

【0056】

上部電極の上に、プラズマCVD法を用いて、厚さ50nmの窒化シリコン膜を形成する。この窒化シリコン膜は絶縁膜(保護層)21として機能する。

【0057】

保護層の上に、光取出し層9を形成する。形成方法は、実施例1と同様である。これにより、OLED基板20が形成される。実施例1と同様に、OLED基板20と対向基板

50

を用いた封止構造を用いてもよい。また、絶縁膜（保護層）21を用いているため、OLED基板20を最終構造として用いてもよい。

【0058】

本実施形態の有機発光素子は、実施例1の有機発光素子と比べて、上部電極8と光取出し層9の間に、透明電極である上部電極8と同等若しくはそれ以上の屈折率の材料からなる絶縁膜21が設けられている事が異なる。絶縁膜21としては、例えば窒化シリコン膜が用いられている。絶縁膜21を構成する窒化シリコン膜の屈折率は2.0である。そのため、発光層5で発光した光は、実施例1と同様、光取出し層9の中に入射される。光取出し層9の中に入射された光は、実施例1と同様、空気層へ取り出され、光取出し効率が向上した。正面方向における輝度、電流密度 電圧特性、及び定電流におけるELスペクトル放射パターンの極角角度依存性を測定し、量子効率を算出した。その結果、光取出し層を積層しない素子に比べて2.1倍の光取出し効率が向上した。

10

【0059】

また、絶縁膜21を設ける事により、光取出し層形成時に、溶媒等が有機層、上部電極内にしみこむ事が防止され、発光画素全体で均一に発光するようになった。

【0060】

本実施例においても、前述の実施例1と同様に、前述の非特許文献や特許文献1の場合と比較して、有機発光素子の光取出し効率向上、換言すれば有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能となる。

【0061】

20

〔実施例3〕

本発明に係る有機発光表示装置の実施形態を図面に基づいて説明する。図3は、本発明の実施例3である有機発光表示装置の画素の断面図である。

【0062】

図3に示すように、ガラス基板1と各有機発光素子の下部電極33~35との間には、駆動層32が形成されている。すなわち、図3には示されていないが、複数の走査線が一定の間隔で配置されているとともに、各走査線に対して交差する方向に、画像情報を伝送するための信号線（映像信号線）が一定の間隔で配置されている。すなわち、各走査線と各信号線は格子状に配置され、各走査線と各信号線で囲まれた領域が、1画素分或いは1サブ画素分の表示領域になっている。

30

さらに、ガラス基板1上には、電源に接続された複数の第1電流供給線が、信号線と平行になって配置されている。走査線、信号線、第1電流供給線は、配線層に属する配線として、層間絶縁膜を介してガラス基板1上に形成されている。

【0063】

また、この駆動層32には、駆動素子としての第1トランジスタと第2トランジスタと容量とを備えて構成されている。

第1トランジスタのゲート電極は、走査線に接続され、ソース電極は信号線に接続され、ドレイン電極は、第2トランジスタのゲート電極と容量の下部電極に接続されている。

第2トランジスタのドレイン電極は、容量の上部電極と第1電流供給線に接続され、ソース電極は、下部電極33~35に接続されている。

40

【0064】

また、基板上には、第1のトランジスタ及び第2のトランジスタのソース電極、ドレイン電極、信号線、及び第1電流供給線の上に、平坦化機能を有する層間絶縁膜として、膜厚2 μ mのアクリル絶縁膜を形成する。なお、本実施例では層間絶縁膜にアクリル絶縁膜を用いたが、これに限定されず、ポリクロロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリビニルクロライド、ポリフッ化ビニリデン、シアノエチルプルラン、ポリメチルメタクリレート、ポリサルフォン、ポリカーボネート、ポリイミド等の他の有機絶縁材料を用いることができる。

また、SiO₂、SiNx、Al₂O₃等の無機材料を用いることも可能である。また、これらを適宜組み合わせ、有機絶縁膜上に無機絶縁膜を積層した構成も可能である。

50

【0065】

配線層の上部側には、カラー画像の最小単位となる画素を構成する複数の有機発光素子が配置されている。

各有機発光素子は、サブピクセル（サブ画素）として、図3に示すように、正孔注入層37、正孔輸送層38～40と発光層41～43と電子輸送層44～46を含む有機層と、有機層を挟む下部電極33～35、バッファ層47と上部電極48の積層膜を備えて構成されている。

各画素に属する有機発光素子の下部電極3～5は、駆動素子としてのトランジスタを介して、第1電流供給線に接続され、各画素に属する有機発光素子の上部電極48は、電源に接続された第2電流供給線に接続されている。

10

【0066】

まず、層間絶縁膜の上に、下部電極33～35を形成する。作製方法並びに作製条件は、実施例1と同様である。次に、下部電極のエッジを隠すために、バンク層36を形成する。なお、このバンク層36には、層間絶縁膜同様、アクリル絶縁膜を用いたが、層間絶縁膜で述べた他の材料を採用する事も可能である。

【0067】

次に、下部電極33～35上に正孔注入層37を形成した。作製方法並びに作製条件は、実施例1と同様である。

【0068】

次に、下部電極33上の赤色発光色のサブ画素（以下「Rサブ画素」という。）での、正孔輸送層38から電子輸送層44までの形成について説明する。正孔注入層37上に、正孔輸送層38、赤色発光層41、電子輸送層44を形成した。各層の成膜法は真空蒸着法であり、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させ、各有機層をパターン化した。各有機層の作製条件は、実施例1と同様である。

20

【0069】

次に、下部電極34上に形成された、緑色発光色のサブ画素（以下「Gサブ画素」という。）の正孔輸送層39から電子輸送層45までの形成について説明する。正孔注入層37の上に真空蒸着法により膜厚30nmの-NPD膜を形成した。-NPDの蒸着速度は0.5nm/secとし、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させパターン化した。この-NPD膜は正孔輸送層39として機能する。

30

【0070】

次に、正孔輸送層39の上に、真空蒸着法により膜厚40nmのCBP及びイリジウム錯体（以下「Ir(pppy)₃」という。）を共蒸着して膜厚が40nm程度の第1の共蒸着膜を形成する。このCBP、Ir(pppy)₃の蒸着速度は、それぞれ0.20nm/sec、0.02nm/secとした。上記第1の共蒸着膜は緑色発光層42として機能する。また、緑色発光層42の中で、Ir(pppy)₃が発光色を決定するドーパントとして機能する。また、CBPとIr(pppy)₃の第1の共蒸着膜は、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを用いてパターン化した。

【0071】

次に、緑色発光層42の上に、真空蒸着法により、膜厚が60nm程度のAlq₃膜を形成する。Alq₃の蒸着速度を0.15nm/secとし、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させパターン化した。このAlq₃膜は電子輸送層45として機能する。

40

【0072】

次に、下部電極35上に形成された、青色発光色のサブ画素（以下「Bサブ画素」という。）の正孔輸送層40から電子輸送層46までの形成について説明する。

正孔注入層37の上に真空蒸着法により膜厚10nmの-NPD膜を形成した。-NPDの蒸着速度は0.5nm/secとし、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させパターン化した。この-NPD膜は正孔輸送層40

50

として機能する。

【0073】

次に、正孔輸送層40の上に、真空蒸着法により、膜厚が30nm程度の9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセン(以下「ADN」という。)と2,5,8,11-テトラ-t-ブチルペリレン(以下「TBP」という。)からなる第2の共蒸着膜を形成する。このADNとTBPの蒸着速度は、それぞれ、0.20nm/sec、0.01nm/secとしサブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させパターン化した。この第2の共蒸着膜は青色発光層43として機能する。

【0074】

次に、青色発光層43の上に、真空蒸着法により、膜厚が60nm程度のAlq₃膜を形成する。Alq₃の蒸着速度を0.2nm/secとし、サブ画素と同等のサイズの開口パターンを有する精密マスクを基板に密着させパターン化した。このAlq₃膜は電子輸送層46として機能する。

10

【0075】

次に、電子輸送層44~46の上に、バッファ層47、上部電極48、及び光取出し層49を形成した。作製方法及び作製条件は、実施例1と同様である。以上より、OLED基板30が形成された。

【0076】

次に、OLED基板30を、対向基板31を用いて封止した。作製方法及び作製条件は、実施例1と同様である。以上のような構成、製造方法により、カラー有機発光表示装置を提供できる。

20

【0077】

上記の有機発光表示装置では、上部電極48の上に、酸化チタン、酸化亜鉛からなる光取出し層49が形成されている。酸化チタンの屈折率は2.7であり、酸化亜鉛の屈折率は1.8である。そのため、光取出し層49の平均屈折率は1.7程度になる。発光層41、42、43の屈折率は1.8程度である。そのため、発光層で発光した光は、発光波長によらず、上部電極48と光取出し層49の界面で全反射を起こさず、光取出し層の中に入射される。

【0078】

一方、光取出し層49を構成する酸化チタンの平均粒径が150nm程度の球状形状であり、酸化亜鉛は平均径が150nm、平均高さが500nm程度の柱状形状であった。また、図3に示した様に、比重の高い酸化チタンが下側に配置し、酸化亜鉛が上側に配置する相分離構造となった。光取出し層に入射された光は、柱状形状の酸化亜鉛内を伝播して、光取出し層49と対向基板31の間にある空気層へ取り出され、光取出しが向上した。正面方向における輝度、電流密度 電圧特性、及び定電流におけるELスペクトル放射パターンの極角角度依存性を測定し、量子効率を算出した。その結果、各画素を発光させて得られた白色光は、光取出し層49を積層しない素子に比べて、1.6倍光取出し効率が向上した。

30

【0079】

本実施例においても、前述の実施例1と同様に、前述の非特許文献や特許文献1の場合と比較して、有機発光素子の光取出し効率向上、換言すれば有機発光表示装置の光取出し効率向上を図ることが可能となる。

40

【符号の説明】

【0080】

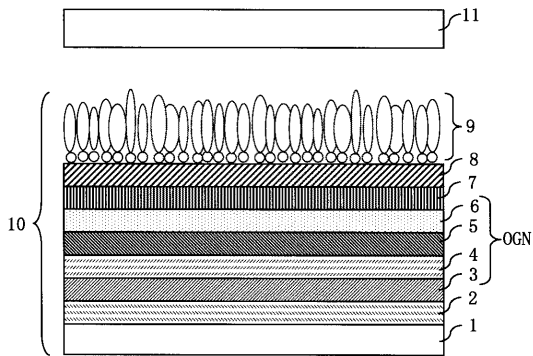
- 1 ガラス基板
- 2, 33, 34, 35 下部電極
- 3, 37 正孔注入層
- 4, 38, 39, 40 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6, 44, 45, 46 電子輸送層

50

- 7, 47 バッファ層
- 8, 48 上部電極
- 9, 49 光取出し層
- 10, 20, 30 O L E D 基板
- 11, 31 対向基板
- 21 絶縁膜
- 32 駆動層
- 36 バンク層
- 41 赤色発光層
- 42 緑色発光層
- 43 青色発光層

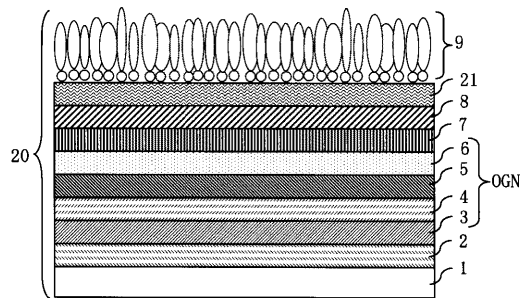
【 図 1 】

図1



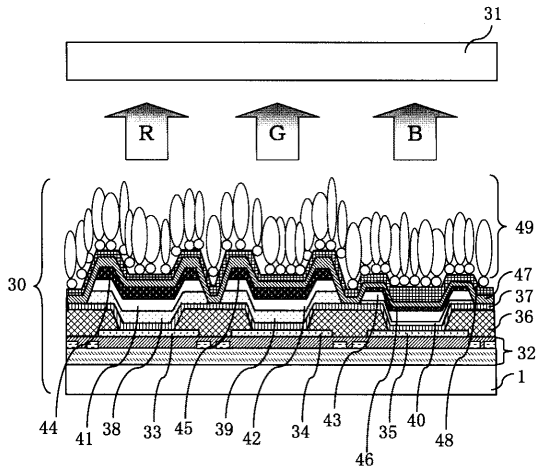
【 図 2 】

図2



【 図 3 】

図 3



フロントページの続き

(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

Fターム(参考) 2K009 AA01 BB11 CC03 CC09 DD03 DD04

3K107 AA01 BB01 CC05 DD03 EE21 EE28 FF06 FF15

专利名称(译)	有机发光表示装置		
公开(公告)号	JP2011090942A	公开(公告)日	2011-05-06
申请号	JP2009244573	申请日	2009-10-23
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社日立制作所 佳能株式会社		
申请(专利权)人(译)	日立显示器有限公司 佳能公司		
[标]发明人	石原慎吾 佐々木洋		
发明人	石原 慎吾 佐々木 洋		
IPC分类号	H05B33/02 H01L51/50 H05B33/22 G02B1/11 G02B1/118		
FI分类号	H05B33/02 H05B33/14.A H05B33/22.Z G02B1/10.A G02B1/118		
F-TERM分类号	2K009/AA01 2K009/BB11 2K009/CC03 2K009/CC09 2K009/DD03 2K009/DD04 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC05 3K107/DD03 3K107/EE21 3K107/EE28 3K107/FF06 3K107/FF15		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提高有机发光显示装置的光提取效率。一种具有有机发光元件的有机发光显示装置，其中由有机材料制成的发光层（5）夹在反射电极（下部电极2）和透明电极（上部电极8）之间，在与发光层（5）侧的透明电极（上部电极8）的表面相反的表面，具有比透明电极（上部电极8）的折射率高的微粒和柱状氧化锌。提供了光提取层（9）。[选型图]图1

