

(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2010-55926
(P2010-55926A)

(43) 公開日 平成22年3月11日(2010.3.11)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/28 (2006.01)	H05B 33/28	3K107
H05B 33/02 (2006.01)	H05B 33/02	
H05B 33/10 (2006.01)	H05B 33/10	
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14	A

審査請求 有 請求項の数 7 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2008-219438 (P2008-219438)	(71) 出願人	504265754 財団法人山形県産業技術振興機構 山形県山形市松栄二丁目2番1号
(22) 出願日	平成20年8月28日 (2008. 8. 28)	(74) 代理人	100101878 弁理士 木下 茂
		(74) 代理人	100113561 弁理士 石村 理恵
		(72) 発明者	小田 敦 山形県山形市松栄二丁目2番1号 財団法人山形県産業技術振興機構内
		(72) 発明者	河合 崇 山形県山形市松栄二丁目2番1号 財団法人山形県産業技術振興機構内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】光透過性を有する陰極材料を用いた場合においても、低い印加電圧で駆動し、しかも、発光スペクトルの角度依存性がなく、発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子およびその製造方法を提供する。

【解決手段】透明基板 1 上に、陽極層 2 と、少なくとも一層の発光層を有する発光ユニット 3 と、陰極層 4 とが積層されており、前記陽極層 2、前記発光ユニット 3 および前記陰極層 4 がいずれも、光透過性を有し、前記陰極層 4 が、少なくとも電子受容性物質を含む第 1 の電荷発生層 4 a と、陰極 4 c とを含む積層構成からなる有機エレクトロルミネッセンス素子を、前記陰極 4 c を対向ターゲット型スパッタ法により形成することにより作製する。

【選択図】図 1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

透明基板上に、陽極層と、少なくとも一層の発光層を有する発光ユニットと、陰極層とが積層されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記陽極層、前記発光ユニットおよび前記陰極層がいずれも、光透過性を有し、

前記陰極層が、少なくとも電子受容性物質を含む第 1 の電荷発生層と、陰極とを含む積層構成からなることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】

前記陰極層は、前記第 1 の電荷発生層と前記陰極との間に金属酸化物層を備えていることを特徴とする請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 3】

前記陰極が仕事関数 4.0 eV 以上の金属からなることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

前記金属酸化物層が、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物およびタングステン酸化物のうちのいずれかからなることを特徴とする請求項 2 または 3 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記発光ユニットが、第 2 の電荷発生層を介して直列に複数層接続されたマルチフォトン構造であることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【請求項 6】

前記陽極層側または前記陰極層側のいずれか一方から光が取り出され、該光取り出し側とは反対側に位置する陰極層または陽極層の外側に、光拡散反射層を備えていることを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を製造する方法において、対向ターゲット型スパッタ法により、前記陰極層の陰極を形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、照明に好適に用いることができる光透過性を有する有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

有機 EL 素子は、有機化合物を発光材料とする自己発光型素子であり、高速度での発光が可能であるため、動画の表示に好適であり、また、素子構造が簡単でディスプレイパネルの薄型化が可能である等の特性を有している。このような優れた特性を有していることから、有機 EL 素子は、携帯電話や車載用ディスプレイとして、日常生活において普及しつつある。

40

さらに、近年では、上記のような薄型面発光という特長を活かして、次世代の照明としても注目されている。

【0003】

一般的な有機 EL 素子は、一方の電極が金属からなる反射電極で形成されているため、該反射電極とは反対側の電極から外側に、一方向に光を取り出す構造となっており、しかも、鏡面になっている。

このような有機 EL 素子においては、その構造上、デバイス内で光干渉の影響を受けることは避けられず、外部への光の取り出し効率の低下および発光スペクトルの角度依存性が大きくなる等の弊害を生じる。さらに、反射電極での光吸収も発光効率の低下を招いて

50

いる。特に、マルチフォトン構造の素子においては、その影響が顕著である。

【0004】

これに対しては、従来から、従来の反射電極を透明電極で形成すること、さらに、拡散反射により光を取り出す構造とすることにより、光干渉の影響を受けない有機EL素子を構成することが可能であると考えられている（例えば、特許文献1, 2参照）。

【0005】

【特許文献1】特開2002-231054号公報

【特許文献2】特開2007-200597号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0006】

しかしながら、従来の素子構造のまま、単に、反射電極を透明電極に換えて形成した場合、透明電極からの電子注入が困難であり、また、透明電極形成時のスパッタ等によるプラズマダメージにより、陰極も透明電極で形成した素子においては、従来の反射電極を用いたものと同程度の素子特性を得ることができなかった。

【0007】

したがって、有機EL素子を、特に、照明等の光源として用いる場合において、有機EL素子から外部への光の取り出し効率の向上を図ることができる手法が求められている。

【0008】

本発明は、上記技術的課題を解決するためになされたものであり、光透過性を有する陰極材料を用いた場合においても、低い印加電圧で駆動し、しかも、発光スペクトルの角度依存性がなく、発光効率が高い有機EL素子およびその製造方法を提供することを目的とするものである。

20

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明に係る有機EL素子は、透明基板上に、陽極層と、少なくとも一層の発光層を有する発光ユニットと、陰極層とが積層されてなる有機EL素子において、前記陽極層、前記発光ユニットおよび前記陰極層がいずれも、光透過性を有し、前記陰極層が、少なくとも電子受容性物質を含む第1の電荷発生層と、陰極とを含む積層構成からなることを特徴とする。

30

このような素子構成によれば、両方の電極面から発光させることができ、発光ユニットの設計変更を要することなく、外部への光の取り出し効率の向上を図ることができる。

【0010】

前記有機EL素子においては、前記陰極層は、前記第1の電荷発生層と前記陰極との間に金属酸化物層を備えていることが好ましい。

前記金属酸化物層は、透明電極形成時のプラズマダメージ緩和層としての役割を果たすものである。

【0011】

前記陰極は、前記第1の電荷発生層により、高電圧化が抑制されるため、仕事関数4.0 eV以上の金属で構成することができる。

40

【0012】

また、前記金属酸化物層は、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物およびタンゲステン酸化物のうちのいずれかからなることが好ましい。

【0013】

前記有機EL素子は、前記発光ユニットが、第2の電荷発生層を介して直列に複数層接続されたマルチフォトン構造としてもよい。

【0014】

さらにまた、前記陽極層側または前記陰極層側のいずれか一方から光が取り出され、該光取り出し側とは反対側に位置する陰極層または陽極層の外側に、光拡散反射層を備えていることが好ましい。

50

この光拡散反射層を設けることにより、発光ユニットの各層の構成材料の設計変更をしなくても、角度依存性をなくし、光取り出し効率をより向上させることができ、また、発光ユニットの各層の膜厚を最小限で構成することが可能となり、低電圧化が望める。

【0015】

また、本発明に係る有機EL素子の製造方法は、上記有機EL素子を製造する方法において、対向ターゲット型スパッタ法により、前記陰極層の陰極を形成することを特徴とする。

対向ターゲット型スパッタ法によれば、発光ユニットの有機層に与えるプラズマダメージを抑制することができる。

【発明の効果】

10

【0016】

本発明に係る有機EL素子は、光透過性を有する陰極材料を用いた場合においても、低い印加電圧で駆動し、しかも、発光スペクトルの角度依存性が抑制され、外部への光の取り出し効率の向上を図ることができる。

また、本発明に係る製造方法によれば、発光層を含む発光ユニットの構成材料を設計し直さなくても、電極形成時に有機層等にダメージを与えることなく、光透過性を有する有機EL素子を作製することができる。

したがって、本発明に係る有機EL素子は、従来のディスプレイ用途のみならず、照明等の光源用途においても、高演色性に優れた面発光体としての特性をより活用することが可能となる。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0017】

以下、本発明について、図面を参照しながら、より詳細に説明する。

図1に、本発明に係る有機EL素子の層構成の一例を示す。図1に示す有機EL素子は、透明基板1上に、陽極層2と、少なくとも一層の発光層を有する発光ユニット3と、陰極層4とが積層されてなる有機EL素子である。

そして、前記陽極層2、前記発光ユニット3および前記陰極層4が、いずれも、光透過性を有している。すなわち、発光ユニット3で発光した光を、陽極層2側および陰極層4側の両方から、取り出すことが可能である。

さらに、前記陰極層4は、少なくとも電子受容性物質を含む第1の電荷発生層4aと、陰極4cとを含む積層構成からなる。

30

【0018】

前記陽極層2は、透明基板1上に、透明電極として、仕事関数大きい(4.0eV以上)電極材料により形成される。

このような透明電極は、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属等の薄膜により形成することもできるが、一般には、酸化インジウム錫(ITO)、酸化インジウム亜鉛、酸化亜鉛等の金属酸化物が用いられ、特に、透明性や導電性等の観点から、ITOが好適に用いられる。

この透明電極の膜厚は、必要とされる光透過性の程度により異なるが、可視光の透過率を、通常、60%以上とすることが好ましく、より好ましくは、80%以上とする。このような光透過性および導電性の確保のため、膜厚は、通常、5~1000nm、好ましくは、10~500nm程度とする。

40

陽極の形成は、通常、CVD法、スパッタ法、真空蒸着法等により行われ、透明導電性薄膜として形成されることが好ましい。

【0019】

本発明に係る有機EL素子においては、前記陰極層4を構成する陰極4cも、前記陽極層2と同様の透明電極として形成する。

通常のボトムエミッション素子においては、前記陰極4cは、例えば、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等の仕事関数の小さい(4.0eV以下)金属、合金、導電性化合物により構成されるが、本発明においては、透明電極とす

50

るため、これらの従来の電極材料の金属等よりも仕事関数が大きい(4.0 eV以上)電極材料が用いられる。

このため、従来の層構成では、陰極と発光ユニットの界面で注入障壁が形成され、上記のような透明電極による陰極4cからの電子注入が困難であるため、本発明においては、前記電荷発生層4aを挿入し、該電荷発生層4aからのキャリア注入により、高電圧化を抑制する。

なお、本発明において、陰極層4を構成する電荷発生層4aを、マルチフォトン構造の発光ユニット間に介在する電荷発生層(第2の電荷発生層)と区別する場合に、第1の電荷発生層と言う。

【0020】

前記電荷発生層4aは、少なくとも電子受容性物質を含むものであり、さらに、電子供与性物質を含んでいてもよく、例えば、特許第3933591号公報に記載されているような構成を適用することができる。第2の電荷発生層についても、同様である。

また、前記電子受容物質および電子供与性物質は、それぞれ、単一化合物であっても、あるいはまた、混合物であってもよい。

この電荷発生層5全体の膜厚は、通常、1nm以上200nm以下であり、好ましくは、5nm以上100nm以下である。

【0021】

なお、前記ITO等の金属酸化物による陰極4cの成膜は、CVD法や真空蒸着法では、基板が高温に曝されるため、発光ユニット3または前記陰極層4の有機材料からなる電荷発生層5にダメージを与えることとなる。イオンプレーティング法でも、イオン衝撃による発光ユニット3等へのダメージは大きい。また、スパッタ法でも、通常の反応性スパッタ法やマグネトロンスパッタ法では、放電に伴う荷電粒子(電子、イオン)やラジカル酸素が発生し、既に基板上に形成されている発光ユニット3または前記陰極層4の有機材料からなる電荷発生層4bにダメージを与え、有機EL素子が高電圧化する。

このため、既に発光ユニット3等が形成されている基板上に陰極4cを成膜する場合には、上記のような熱やプラズマ等によるダメージを低減させるため、対向ターゲット型スパッタ法により行うことが好ましい。

【0022】

さらに、対向ターゲット型スパッタ法により、前記陰極4cを形成する際に、発光ユニット3または前記陰極層4の有機材料からなる電荷発生層4aに与えるプラズマダメージを抑制するために、前記発光ユニット3等の上に金属酸化物層4bをダメージ緩和層として形成しておくことが好ましい。

このようなスパッタダメージ緩和層としての役割を果たす金属酸化物層6は、例えば、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物、タンゲステン酸化物等により形成されることが好ましい。具体的には、三酸化モリブデン(MoO_3)、五酸化バナジウム(V_2O_5)等が挙げられる。

この金属酸化物層4bの膜厚は、上記のようなスパッタ緩衝層としての効果を奏する程度であれば足り、光透過性確保の観点からは、できる限り薄いことが好ましく、1nm以上100nm以下であることが好ましい。

【0023】

本発明に係る有機EL素子の構成要素のうち、透明基板1は、有機EL素子の支持体かつ発光面となるため、光透過率は80%以上であることが好ましく、より好ましくは、90%以上である。

前記透明基板としては、一般に、BK7、BaK1、F2等の光学ガラス、石英ガラス、無アルカリガラス、ホウケイ酸ガラス、アルミノケイ酸ガラス等のガラス基板、PMM A等のアクリル樹脂、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホネート、ポリスチレン、ポリオレフィン、エポキシ樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル等のポリマー基板が用いられる。

前記基板の厚さは、通常、0.1~1.0mm程度のものが用いられるが、機械的強度、

10

20

30

40

50

重量等を考慮して、0.3 ~ 5 mmであることが好ましく、0.5 ~ 2 mmであることがより好ましい。

【0024】

また、本発明に係る有機EL素子における発光ユニット3は、少なくとも一層の発光層を有するものであれば、単層でも複層でもよく、公知の有機EL素子の層構造とすることができる。前記発光ユニット3の具体的な層構造としては、発光層のみ、正孔輸送層/発光層、発光層/電子輸送層、正孔輸送層/発光層/電子輸送層等の構造が挙げられる。

さらに、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子注入層、電子輸送層等をも含む公知の積層構造とすることもできる。

【0025】

前記発光ユニット3の各層を構成する材料は、特に制限されるものではなく、公知のものを用いることができ、低分子系または高分子系のいずれであってもよい。

これらの各層の形成は、真空蒸着法、スパッタリング法等などの乾式法、インクジェット法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ブレードコート法、ロールコート法、グラビアコート法、フレキソ印刷法、スプレーコート法等の湿式法により行うことができる。好ましくは、真空蒸着により成膜する。

また、前記各層の膜厚は、各層同士の適応性や求められる全体の層厚さ等を考慮して、適宜状況に応じて定められるが、通常、5 nm ~ 5 μmの範囲内であることが好ましい。

上記のように、本発明においては、発光ユニットの層構成および構成材料は、改めて設計し直す必要はなく、従来の素子構成および形成方法を適用することができる。

【0026】

前記有機EL素子は、前記発光ユニットが、第2の電荷発生層を介して直列に複数層接続されたマルチフォトン構造にも適用することができる。

反射電極を備えた鏡面素子の場合は、光干渉の影響を受け、取り出せる光量に限界があり、特に、マルチフォトン構造ではその影響が顕著である。

これに対して、マルチフォトン構造の透明素子と光拡散反射層とを組み合わせることにより、光干渉の影響をより抑制することができ、長寿命で高効率な有機EL素子の作製が可能となる。

【0027】

また、前記有機EL素子は、陽極層2または陰極層4のいずれか一方の外側に、光拡散反射層を設けてもよい。

前記光拡散反射層を設けると、前記陽極層2側または前記陰極層4側のいずれか一方からのみ光が取り出されるような構成となるが、光取り出しのために必要な発光ユニットの各層の膜厚を最小で構成することが可能となり、低電圧化が望める。また、スペクトルの角度依存性がなくなり、光の取り出し効率の向上を図ることができる。

【0028】

前記光拡散反射層は、前記陽極層2（または陰極層4）と直接接するように設けることが好ましい。

両者の間に、前記陽極層2（または陰極層4）より屈折率の低い樹脂等の封止部材や空気層が存在すると、発光ユニットで発光した光のうち、前記陽極層2（または陰極層4）と封止部材または空気との屈折率差で生じる全反射成分の大半が外部へ取り出されない。

このため、光の取り出し効率をより向上させる観点から、光拡散反射層への入射光口スを低減させるために、陽極層2（または陰極層4）と屈折率の高い光拡散反射層とを直接積層させることが好ましい。

【0029】

前記光拡散反射層は、例えば、酸化チタン、酸化アルミニウム、硫酸バリウム、ゼオライト等の単体粒子またはこれらの混合物を分散させた液体、樹脂、ゲル等を塗布することにより形成することができる。

そして、このような光拡散反射層を基板に塗布または印刷したものと、有機EL素子の残りの素子構造部との真空貼り合わせにより、有機EL素子パネルを作製することができ

10

20

30

40

50

る。

前記光拡散反射層の膜厚は、光の拡散反射の効果が得られる厚さがあれば十分であり、 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $1\ \text{mm}$ 以下であることが好ましい。

【実施例】

【0030】

以下、本発明を実施例に基づきさらに具体的に説明するが、本発明は下記の実施例により制限されるものではない。

[実施例1]

以下の方法により、図1に示すような層構成からなる有機EL透明素子を作製した。

(透明基板1・陽極層2)

まず、パターンニング済みの透明導電膜(ITO)が膜厚 $300\ \text{nm}$ で成膜されたガラス基板を、純水と界面活性剤による超音波洗浄、純水による流水洗浄、純水とイソプロピルアルコールの1:1混合溶液による超音波洗浄、イソプロピルアルコールによる煮沸洗浄の順で洗浄処理した。この基板を沸騰中のイソプロピルアルコールからゆっくり引き上げ、イソプロピルアルコール蒸気中で乾燥させ、最後に、紫外線オゾン洗浄を行った。

この基板を陽極1とし、真空チャンパ内に配置し、 $1 \times 10^{-6}\ \text{Torr}$ まで真空排気し、該真空チャンパ内には、蒸着材料をそれぞれ充填した各モリブデン製ポートと、所定のパターンで成膜するための蒸着用マスクを設置しておき、前記ポートを通電加熱し、蒸着材料を蒸発させることにより、順次、発光ユニット3、陰極層4の電荷発生層5および金属酸化物層6の成膜を行った。

【0031】

(発光ユニット3)

前記基板上に、三酸化モリブデン(MoO_3)を膜厚 $5\ \text{nm}$ で成膜し、正孔注入層を形成した。

次に、正孔輸送性材料としてNS-21(新日鉄化学株式会社製)を用い、 MoO_3 とともに、各ポートを同時に通電加熱して、共蒸着した。NS21: $\text{MoO}_3 = 90:10$ を膜厚 $20\ \text{nm}$ で成膜し、さらに、NS21を膜厚 $5\ \text{nm}$ で成膜し、正孔輸送層を形成した。

そして、発光層は、白色発光素子となるように、NS21:EY52(e-Ray Optoelectronics Technology社(以下、e-Ray社という)製) $= 98.7:1.3$ を膜厚 $20\ \text{nm}$ で成膜し、さらに、EB43(e-Ray社製):EB52(e-Ray社製) $= 98.8:1.2$ を膜厚 $30\ \text{nm}$ で成膜して形成した。

前記発光層の上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(p-フェニルフェノラート)アルミニウム(BAlq)を膜厚 $5\ \text{nm}$ で成膜し、正孔阻止層を形成した。

【0032】

(陰極層4)

電子供与性物質としてLiqを用い、DPB:Liq $= 75:25$ を膜厚 $35\ \text{nm}$ で成膜し、その上に、アルミニウム(Al)を膜厚 $1.5\ \text{nm}$ で成膜し、さらに、電子受容性物質として MoO_3 を用い、NS21: $\text{MoO}_3 = 75:25$ を膜厚 $10\ \text{nm}$ で成膜して、電荷発生層4aを形成した。

その上に、金属酸化物層4bとして、 MoO_3 を膜厚 $5\ \text{nm}$ で成膜した。

そして、陰極4cとして、ITOを対向ターゲット型スパッタ法により膜厚 $100\ \text{nm}$ で成膜した。

これを、UV硬化樹脂を用いて、別のガラス板により封止し、透明素子を得た。

【0033】

この素子の層構成を簡略化して示すと、ITO($300\ \text{nm}$)/ MoO_3 ($5\ \text{nm}$)/NS21: MoO_3 ($10\ \text{nm}$, $90:10$)/NS21($5\ \text{nm}$)/NS21:EY52($20\ \text{nm}$, $98.7:1.3$)/EB43:EB52($30\ \text{nm}$, $98.8:1.2$)/BAlq($5\ \text{nm}$)/DPB:Liq($35\ \text{nm}$, $75:25$)/Al($1.5\ \text{nm}$)/NS21: MoO_3 ($10\ \text{nm}$, $75:25$)/ MoO_3 ($5\ \text{nm}$)/ITO(100

10

20

30

40

50

nm)である。

【0034】

[比較例1]

反射電極Alを備えた従来の鏡面構造のボトムエミッション素子を作製した。

実施例1において、陰極層の電荷発生層をDPB:Liq(35nm, 75:25)のみとし、金属酸化物層を形成せずに、真空チャンバを真空に保ったまま、マスクを交換し、陰極蒸着用のマスクを設置し、Alを膜厚60nmで成膜し、陰極を形成した。

それ以外は、実施例1と同様にして、鏡面素子を作製した。

【0035】

この素子の層構成を簡略化して示すと、ITO(300nm)/MoO₃(5nm)/NS21:MoO₃(10nm, 90:10)/NS21(5nm)/NS21:EY52(20nm, 98.7:1.3)/EB43:EB52(30nm, 98.8:1.2)/BALq(5nm)/DPB:Liq(35nm, 75:25)/Al(60nm)である。

10

【0036】

[比較例2]

実施例1の透明電極ITO(100nm)を反射電極Al(60nm)に換えて、それ以外は、実施例1と同様にして、鏡面素子を作製した。

この素子の層構成を簡略化して示すと、ITO(300nm)/MoO₃(5nm)/NS21:MoO₃(10nm, 90:10)/NS21(5nm)/NS21:EY52(20nm, 98.7:1.3)/EB43:EB52(30nm, 98.8:1.2)/BALq(5nm)/DPB:Liq(35nm, 75:25)/Al(1.5nm)/NS21:MoO₃(10nm, 75:25)/MoO₃(5nm)/Al(60nm)である。

20

図2に、この素子のスペクトルの角度依存性を評価した結果のグラフを示す。

【0037】

電流密度100A/m²時の各素子の電圧は、実施例1の素子は3.7Vであり、比較例1の素子が3.8V、比較例2の素子が3.4Vであった。

このことから、実施例1の素子構成により、透明素子でも、従来の鏡面素子と同等の電圧上昇が抑制された透明素子が得られることが認められた。

30

【0038】

[実施例2]

実施例1で作製した透明素子の陰極層のITO(100nm)上に、酸化チタン(関東化学株式会社製 アナターゼ型:粒径0.1~0.3μm)とフッ素系オイル(ダイキン工業株式会社製 デムナムS-20)を低露点中で脱水・混練脱泡したものを直接塗布し、膜厚200μmの光拡散反射層を形成した。

これを、UV硬化樹脂を用いて、別のガラス板により封止し、有機EL素子を得た。

図3に、この素子のスペクトルの角度依存性を評価した結果のグラフを示す。

【0039】

図2, 3の比較から明らかなように、光拡散反射層を設けた場合(実施例2、図2)は、スペクトルの角度依存性が抑制され、あらゆる角度からでも同じ色に見えることが認められた。

40

また、電流密度100A/m²での外部量子効率、鏡面素子(比較例2)では、4.4%であったのに対して、透明素子に光拡散反射層を形成した場合(実施例2)は、5.0%であり、光を外部に取り出す効率が向上することが認められた。

【0040】

[実施例3]

実施例1と同様の手法により、各電極層および発光ユニットを形成し、第2の電荷発生層を介して、発光ユニットを4ユニット積層させ、さらに、実施例2と同様な手法で光拡散反射層を形成し、マルチフォトン構造の有機EL素子を作製した。

50

前記第2の電荷発生層は、電子供与性物質としてLi_qを用い、DPB : Li_q = 75 : 25を膜厚17 nmで成膜し、その上に、アルミニウム(Al)を膜厚0.5 nmで成膜し、さらに、電子受容性物質としてMoO₃を単独で膜厚2 nmで成膜して、各ユニット間に形成した。

この素子の層構成を簡略化して示すと、ITO(300 nm) / MoO₃(5 nm) / / 第1ユニット(青) [NS21(15 nm) / EB43 : EB52(30 nm, 98.8 : 1.2) / BA1q(5 nm)] / / DPB : Li_q(17 nm, 75 : 25) / Al(0.5 nm) / MoO₃(2 nm) / / 第2ユニット(黄+青) [NS21(15 nm) / NS21 : EY52(20 nm, 98.7 : 1.3) / EB43 : EB52(30 nm, 98.8 : 1.2) / BA1q(5 nm)] / / DPB : Li_q(17 nm, 75 : 25) / Al(0.5 nm) / MoO₃(2 nm) / / 第3ユニット(緑) [NS21(15 nm) / Alq₃ : C545t(30 nm, 98.5 : 1.5) / BA1q(5 nm)] / DPB : Li_q(17 nm, 75 : 25) / Al(0.5 nm) / MoO₃(2 nm) / / 第4ユニット(赤) [NS21(15 nm) / BA1q : Ir(pi_q)₃(30 nm, 90 : 10)] / / DPB : Li_q(17 nm, 75 : 25) / Al(0.5 nm) / MoO₃(5 nm) / ITO(100 nm) / 光拡散反射層(200 μm)である。

図4に、この素子のスペクトルの角度依存性を評価した結果のグラフを示す。

【0041】

[比較例3]

実施例3の陰極層の電荷発生層をDPB : Li_q(17 nm, 75 : 25)のみとし、金属酸化物層を形成せず、また、透明電極ITO(100 nm)に換えて反射電極Al(60 nm)に換えて、陰極を形成し、それ以外は、実施例3と同様にして、発光ユニットを4ユニット備えたマルチフォトン構造の鏡面素子を作製した。

図5に、この素子のスペクトルの角度依存性を評価した結果のグラフを示す。

【0042】

上記実施例3および比較例3におけるマルチフォトン構造の素子と、各ユニットごとに作製した光拡散反射層を備えた素子について、電流密度100 A/m²での外部量子効率の評価結果を表1に示す。

【0043】

【表1】

素子構成	外部量子効率(%) (電流密度100A/m ²)
実施例3	19.0
比較例3	11.3
第1ユニット	8.6
第2ユニット	3.6
第3ユニット	5.4
第4ユニット	4.2

【0044】

表1に示したように、マルチフォトン構造の透明素子に光拡散反射層を形成した場合(実施例3)、外部量子効率は、発光ユニットのほぼ段数倍(各ユニットの合計)となるこ

とが認められた。

また、図 4 , 5 の比較から明らかなように、光拡散反射層を設けた場合（実施例 3、図 4）は、スペクトルの角度依存性が抑制されることが認められた。

【 0 0 4 5 】

[実施例 4]

実施例 3 の発光ユニットの第 1 ~ 第 4 ユニットの積層順序を逆にして、第 4 ユニットから積層し、それ以外は、実施例 3 と同様にして、発光ユニットを 4 ユニット備えたマルチフォトン構造の鏡面素子を作製した。

図 6 に、この素子のスペクトルの光束密度（積分スペクトル）を評価した結果のグラフを、実施例 3 と併せて示す。

【 0 0 4 6 】

この素子の電流密度 $100 \text{ A} / \text{m}^2$ での外部量子効率 25.1% であり、実施例 3 の素子よりも高いことが認められた。

また、図 6 から明らかなように、実施例 3 の発光ユニットを逆に積層させた場合（実施例 4）、特に、長波長成分の光取り出し量が大きくなることが認められた。これは、光拡散反射層と波長の異なる光を発する各発光ユニットとの間の距離に依存するものであり、いわゆるキャビティ効果に基づくものと考えられる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 4 7 】

【 図 1 】 本発明に係る有機 EL 素子の層構成を模式的に示した断面図である。

【 図 2 】 比較例 2 の有機 EL 素子のスペクトルの角度依存性の評価結果のグラフである。

【 図 3 】 実施例 2 の有機 EL 素子のスペクトルの角度依存性の評価結果のグラフである。

【 図 4 】 実施例 3 の有機 EL 素子のスペクトルの角度依存性の評価結果のグラフである。

【 図 5 】 比較例 3 の有機 EL 素子のスペクトルの角度依存性の評価結果のグラフである。

【 図 6 】 実施例 3 , 4 の有機素子のスペクトルの光束密度（積分スペクトル）の評価結果のグラフである。

【 符号の説明 】

【 0 0 4 8 】

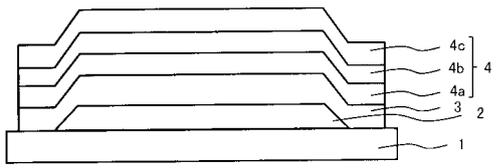
- | | |
|-----|--------|
| 1 | 透明基板 |
| 2 | 陽極 |
| 3 | 発光ユニット |
| 4 | 陰極層 |
| 4 a | 電荷発生層 |
| 4 b | 金属酸化物層 |
| 4 c | 陰極 |

10

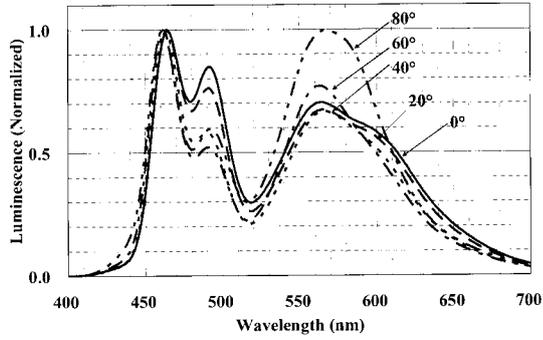
20

30

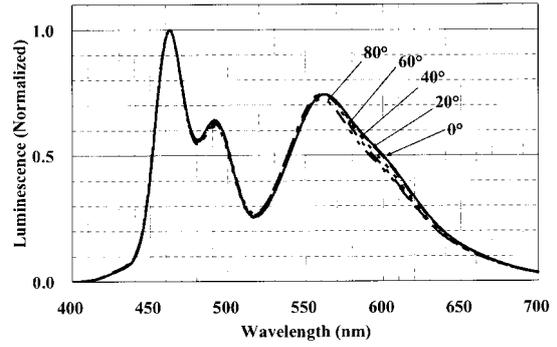
【 図 1 】



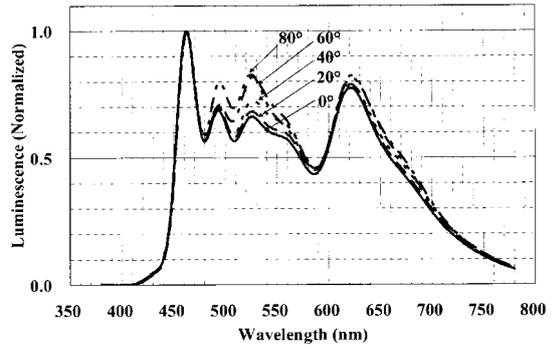
【 図 2 】



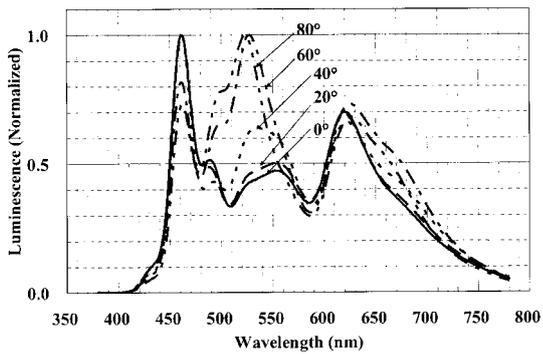
【 図 3 】



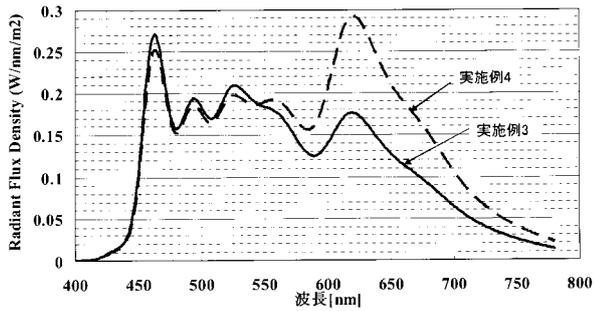
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



フロントページの続き

(72)発明者 田中 純一

山形県山形市松栄二丁目2番1号 財団法人山形県産業技術振興機構内

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB02 CC01 CC04 CC05 CC12 DD22 DD27 DD29 DD44Y
DD51 DD52 EE28 FF19 GG05