

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4393249号
(P4393249)

(45) 発行日 平成22年1月6日(2010.1.6)

(24) 登録日 平成21年10月23日(2009.10.23)

(51) Int. Cl.	F I
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B
H05B 33/12 (2006.01)	H05B 33/12 C
	H05B 33/22 B
	H05B 33/22 D

請求項の数 29 (全 42 頁)

(21) 出願番号	特願2004-101796 (P2004-101796)	(73) 特許権者	502356528
(22) 出願日	平成16年3月31日 (2004. 3. 31)		株式会社 日立ディスプレイズ
(65) 公開番号	特開2005-285708 (P2005-285708A)		千葉県茂原市早野3300番地
(43) 公開日	平成17年10月13日 (2005.10.13)	(74) 代理人	100100310
審査請求日	平成17年11月2日 (2005.11.2)		弁理士 井上 学
		(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
		(72) 発明者	荒谷 介和
			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】有機発光素子、画像表示装置、及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

陽極と、

陰極と、

前記陽極と前記陰極とに挟まれる発光層とを有する白色有機発光素子において、

前記発光層は、少なくとも2層以上の発光混合層からなり、

前記発光混合層は正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントとからなり、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-ETL} と前記ドーパントのイオン化ポテンシャル I_{dop} が、

$$I_{dop} - I_{EM-HTL} < I_{EM-ETL}$$

の関係を満たし、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料の電子親和力 A_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} と前記ドーパントの電子親和力 A_{dop} が、

$$A_{EM-HTL} < A_{EM-ETL} - A_{dop}$$

の関係を満たし、

前記陽極側に一番近い前記発光混合層を第1の発光混合層、前記陰極側に一番近い前記発光混合層を第2の発光混合層とし、

10

20

前記第 1 の発光混合層を構成する正孔輸送性材料の正孔移動度を前記第 2 の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子移動度以上とし、

前記第 1 の発光混合層のドーパント濃度を前記第 2 の発光混合層のドーパント濃度以上とすることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 2】

陽極と、

陰極と、

前記陽極と前記陰極とに挟まれる発光層とを有する白色有機発光素子において、

前記発光層は、少なくとも 2 層以上の発光混合層からなり、

前記発光混合層は正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントと
10 10

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-ETL} と前記ドーパントのイオン化ポテンシャル I_{dop} が、

$$I_{dop} \quad I_{EM-HTL} < I_{EM-ETL}$$

の関係を満たし、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料の電子親和力 A_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} と前記ドーパントの電子親和力 A_{dop}
15 15

$$A_{EM-HTL} < A_{EM-ETL} \quad A_{dop}$$

の関係を満たし、

前記陽極側に一番近い前記発光混合層を第 1 の発光混合層、前記陰極側に一番近い前記発光混合層を第 2 の発光混合層とし、

前記第 2 の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子移動度を前記第 1 の発光混合層を構成する正孔輸送性材料の正孔移動度以上とし、

前記第 2 の発光混合層のドーパント濃度を前記第 1 の発光混合層のドーパント濃度以上とすることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 3】

陽極と、

陰極と、

前記陽極と前記陰極とに挟まれる発光層とを有する白色有機発光素子において、

前記発光層は、少なくとも 2 層以上の発光混合層からなり、

前記発光混合層は正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントと
20 20

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-ETL} と前記ドーパントのイオン化ポテンシャル I_{dop} が、

$$I_{dop} \quad I_{EM-HTL} < I_{EM-ETL}$$

の関係を満たし、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料の電子親和力 A_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} と前記ドーパントの電子親和力 A_{dop}
25 25

$$A_{EM-HTL} < A_{EM-ETL} \quad A_{dop}$$

の関係を満たし、

前記 2 層以上の発光混合層は、正孔輸送性材料、及び電子輸送性材料からなる輸送混合層を介して積層されており、

前記陽極側に一番近い前記発光混合層を第 1 の発光混合層、前記陰極側に一番近い前記発光混合層を第 2 の発光混合層とし、

前記第 1 の発光混合層を構成する正孔輸送性材料の正孔移動度を前記第 2 の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子移動度以上とし、
30 30

前記第 1 の発光混合層のドーパント濃度を前記第 2 の発光混合層のドーパント濃度以上とすることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 4】

陽極と、

陰極と、

前記陽極と前記陰極とに挟まれる発光層とを有する白色有機発光素子において、

前記発光層は、少なくとも 2 層以上の発光混合層からなり、

前記発光混合層は正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントとからなり、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-ETL} と前記ドーパントのイオン化ポテンシャル I_{dop} が、

$$I_{dop} - I_{EM-HTL} < I_{EM-ETL}$$

の関係を満たし、

前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料の電子親和力 A_{EM-HTL} と前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} と前記ドーパントの電子親和力 A_{dop} が、

$$A_{EM-HTL} < A_{EM-ETL} - A_{dop}$$

の関係を満たし、

前記 2 層以上の発光混合層は、正孔輸送性材料、及び電子輸送性材料からなる輸送混合層を介して積層されており、

前記陽極側に一番近い前記発光混合層を第 1 の発光混合層、前記陰極側に一番近い前記発光混合層を第 2 の発光混合層とし、

前記第 2 の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子移動度を前記第 1 の発光混合層を構成する正孔輸送性材料の正孔移動度以上とし、

前記第 2 の発光混合層のドーパント濃度を前記第 1 の発光混合層のドーパント濃度以上とすることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 5】

請求項 1 または 2 に記載の白色有機発光素子において、

前記 2 層以上の発光混合層は、連続して積層されていることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記 2 層以上の発光混合層のうち、

前記陽極に一番近い前記発光混合層の前記陽極側に正孔輸送層が形成され、

前記陰極に一番近い前記発光混合層の前記陰極側に電子輸送層が形成されることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 7】

請求項 6 に記載の白色有機発光素子において、

前記電子輸送層を構成する電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{ETL} と、隣接する前記発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} が

$$I_{EM-HTL} < I_{ETL}$$

の関係を満たし、

前記正孔輸送性材料の電子親和力 A_{HTL} と、隣接する前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} が、

$$A_{HTL} < A_{EM-ETL}$$

の関係を満たすことを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 8】

請求項 1, 2, 5, 6 及び 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記陽極側から前記陰極側に従い、前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイ

10

20

30

40

50

オン化ポテンシャルが等しくなること或いは小さくなること、

または、

前記陽極側から前記陰極側に従い、前記発光混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力が等しくなること或いは小さくなることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 9】

請求項 3, 4 及び 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記陽極側から前記陰極側に従い、前記発光混合層及び前記輸送混合層を構成する前記正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルが等しくなること或いは小さくなること、

または、

前記陽極側から前記陰極側に従い、前記発光混合層及び前記輸送混合層を構成する前記電子輸送性材料の電子親和力が等しくなること或いは小さくなることを特徴とする白色有機発光素子。

10

【請求項 10】

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記発光混合層の膜厚が、それぞれ、1 nm 以上 10 nm 以下であることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

青色を発光する発光混合層と黄色～赤色を発光する発光混合層を有することを特徴とする白色有機発光素子。

20

【請求項 12】

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記陽極と前記陰極の何れかが発光光の透過性を有する取出し電極であり、他方が発光光を反射する反射電極であり、

前記取出し電極に近い位置に配置された発光混合層の発光色の中心波長が、前記反射電極に近い位置に配置された発光混合層の発光色の中心波長に比べて、長波長側にあることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 13】

請求項 1, 2, 5, 6 及び 7 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記正孔輸送性材料又は前記電子輸送性材料のいずれか一方の材料が、前記 2 層以上の発光混合層において共通することを特徴とする白色有機発光素子。

30

【請求項 14】

請求項 3 または 4 に記載の白色有機発光素子において、

前記正孔輸送性材料又は前記電子輸送性材料のいずれか一方の材料が、前記 2 層以上の発光混合層及び前記輸送混合層において共通することを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 15】

請求項 13 または 14 に記載の白色有機発光素子において、

前記共通輸送性材料が電子輸送性材料であることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 16】

請求項 3 または 4 に記載の白色有機発光素子において、

隣接する前記発光混合層と前記輸送混合層を構成する前記正孔輸送性材料と前記電子輸送性材料が共通の材料で構成することを特徴とする白色有機発光素子。

40

【請求項 17】

請求項 3 または 4 に記載の白色有機発光素子において、

前記輸送混合層が隣接する前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料と前記電子輸送性材料からなる層と、別の隣接する前記発光混合層を構成する前記正孔輸送性材料と前記電子輸送性材料からなる層の 2 層で構成されていることを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 18】

請求項 1 ~ 17 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

50

前記正孔輸送層が酸化剤を含み、

前記電子輸送層が還元剤を含むことを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 19】

請求項 18 に記載の白色有機発光素子において、

前記正孔輸送層が、少なくとも、酸化剤を含んだ正孔輸送性材料からなる層と正孔輸送性材料からなる層で構成され、前記陽極に近い配置に酸化剤を含んだ正孔輸送性材料が形成され、

前記電子輸送層が、少なくとも、電子輸送性材料からなる層と還元剤を含んだ電子輸送性材料からなる層で構成され、前記陰極に近い配置に還元剤を含んだ電子輸送性材料が形成されることを特徴とする白色有機発光素子。

10

【請求項 20】

請求項 1 ~ 19 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子において、

前記陽極と前記陰極が発光光の透過性を有する電極であり、何れか一方の電極を光取出し電極、他方を透過電極とし、前記透過電極の外側に拡散反射層を設け、

前記透過電極を透過した発光光を前記拡散反射層により前記光取出し電極の方向に反射することを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 21】

請求項 20 に記載の白色有機発光素子において、

少なくとも 2 層の発光層を有することを特徴とする白色有機発光素子。

【請求項 22】

請求項 1 ~ 21 のいずれか一項に記載の白色有機発光素子を画素に用いることを特徴とする有機発光画像表示装置。

20

【請求項 23】

請求項 22 に記載の有機発光画像表示装置において、

色変換層を用いることを特徴とする有機発光画像表示装置。

【請求項 24】

光変調素子及び前記光変調素子に照射する照明光を発生する照明装置から構成される画像表示装置において、

前記照明装置が請求項 1 ~ 21 のいずれか 1 項に記載の白色有機発光素子を用いることを特徴とする画像表示装置。

30

【請求項 25】

請求項 1 ~ 21 のいずれか 1 項に記載され、フレキシブル基材を基板として用いる白色有機発光素子を用いることを特徴とする照明装置。

【請求項 26】

請求項 1 ~ 25 に記載の白色有機発光素子または有機発光画像表示装置を製造するに際して、

少なくとも、正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントからなる発光混合層を 2 層以上積層する工程を含むことを特徴とする白色有機発光素子並びに有機発光画像表示装置の製造方法。

【請求項 27】

請求項 1 ~ 25 に記載の白色有機発光素子並びに有機発光画像表示装置を製造するに際して、

少なくとも、正孔輸送性材料、電子輸送性材料及び発光色を決定するドーパントからなる発光混合層を 2 層以上含み、

前記発光混合層が正孔輸送性材料及び電子輸送性材料からなる輸送混合層を介して積層される工程を含む事を特徴とする白色有機発光素子並びに有機発光画像表示装置の製造方法。

40

【請求項 28】

請求項 26 または 27 に記載の白色有機発光素子並びに有機発光画像表示装置製造方法に関して、

50

少なくとも、前記発光混合層及び前記輸送混合層からなる積層膜を連続形成する工程を含む事の特徴とする白色有機発光素子並びに有機発光画像表示装置の製造方法。

【請求項 29】

請求項 3 または 4 に記載の白色有機発光素子において、
前記輸送混合層を構成する前記正孔輸送材料及び前記電子輸送材料が、

$$I M_{HTL} < I M_{ETL} \text{ 及び } A M_{HTL} > A M_{ETL}$$

の関係を満たす事の特徴とする白色有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、自発光を特徴とする有機発光素子、上記有機発光素子を用いた画像表示装置、及びその製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

白色発光する有機エレクトロルミネセンス素子（以下、白色有機発光素子と略する。）は、薄型表示装置、表示装置の照明装置、或いは照明として期待されている。

【0003】

下記特許文献 1 では、白色有機発光素子の構成が開示されている。同素子では、発光色を決定するドーパントを含んだ発光層を 2 層積層しており、陽極側に青色系の発光層を陰極側に黄色～赤色系の発光層を配置している。同発明の実施例 1 では、青色系発光層の膜厚を 10 nm、黄色～赤色系発光層の膜厚を 40 nm としている。このことは、青色系発光層を構成する材料の正孔輸送性が低い事を示唆している。

【0004】

一般に、発光層を構成する材料は、正孔輸送性、電子輸送性のどちらかが高い。そのため、輸送性の低いキャリアが注入する電極側の発光層端で電子と正孔が結合する。

【0005】

また、下記特許文献 2 では、発光層に正孔輸送性材料、電子輸送性材料、及びドーパントを混合した混合層を用いた有機エレクトロルミネセンス素子が開示されている。この発光層では、正孔、電子が、それぞれ、輸送性の高い輸送性材料を伝播するため、材料の分解が抑制される。同発明を用いた白色有機発光素子の構成も開示されている。すなわち、発光層に隣接する輸送層にドーパントを添加し、発光層及びドーパントを添加した輸送層で発光する事により白色スペクトルを達成する。

【0006】

【特許文献 1】特開 2003 - 272857 号公報

【特許文献 2】特開 2002 - 043063 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

上記特許文献 1 では、発光層を 2 層積層しているため、輸送性の低いキャリアが発光層を伝播して、隣接発光層に注入される必要があり、そのため、発光材料の分解性が起こり、素子の信頼性が問題となる。また、上記特許文献 2 では、ドーパントを添加した輸送層において、輸送性の低いキャリアが輸送性材料を伝播する事となり、素子の信頼性が低下する問題を有する。

【0008】

本発明が解決しようとする課題は、白色有機発光素子において高信頼性の素子構造を提供する事にある。また、高信頼性素子構造を有する白色有機発光素子を表示装置に適用する事にある。また、上記白色有機発光素子を液晶表示装置の照明装置に適用する事にある。また、白色有機発光素子において、積層膜厚を厚くすると問題となる光干渉効果の影響を低減させる構造を提供する事にある。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

【0009】

本発明の課題を解決するための手段を以下に示す。

【0010】

本発明では、陽極と陰極に挟まれる発光層は、少なくとも2層以上の発光混合層からなり、かつこの発光混合層は正孔輸送性材料、電子輸送性材料、及び発光色を決定するドーパントとからなる構成をとる。

【0011】

また、上記2層以上の発光混合層は、連続して積層され、若しくは、正孔輸送性材料、及び電子輸送性材料からなる輸送混合層を介して積層されている構成をとる。

【0012】

また、上記2層以上の発光混合層のうち、上記陽極に一番近い発光混合層の陽極側に正孔輸送層が形成され、上記陰極に一番近い発光混合層の陰極側に電子輸送層が形成される構成をとる。

10

【0013】

ここで有機発光素子としては、以下の構造をとるものがある。

(1) 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 / 保護層或いは封止(対向)基板

(2) 基板 / 下部電極 / 第1注入層 / 第1輸送層 / 発光混合層 / 発光混合層 / 第2輸送層 / 第2注入層 / 上部電極 / 保護層或いは封止(対向)基板

(3) 基板 / 下部電極 / 第1注入層 / 第1輸送層 / 発光混合層 / 輸送混合層 / 発光混合層 / 第2輸送層 / 第2注入層 / 上部電極 / 保護層或いは封止(対向)基板

20

【0014】

(2)は発光混合層を2層積層した構造であるか、3層以上積層した構造でもよい。また、(3)は2層の発光混合層の間に1層の輸送混合層が積層された構造であるが、更に、輸送混合層 / 発光混合層からなる積層構造を1層以上形成した構造でもよい。

【0015】

また、ここでいう下部電極、上部電極とは、発光層を挟む一对の電極のうち、ガラス基板に近いものを下部電極、遠いものを上部電極としたものである。

【0016】

下部電極と上部電極は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、正孔輸送層となる。また、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。

30

【0017】

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、電子輸送層となる。また、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。

【0018】

上記構成において、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。また、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。

40

【0019】

上部電極と下部電極では、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。

【0020】

上部電極が光取出し電極となる場合、トップエミッション構造と称する。一方、下部電極が光取出し電極となる場合、ボトムエミッション構造と称する。

【0021】

ここでいう基板とは、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

50

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。

【0022】

また、上記絶縁性の材料を表面上に形成すれば、金属材料でも問題ない。具体的には、ステンレス，アルミ，銅，上記金属が含まれた合金が挙げられるが、これらの材料に限定されるわけではない。

【0023】

また、本発明の基板は、携帯性，軽量性，薄型性を有するため、フレキシブル基板である事が望ましい。具体的には、厚みが0.5mm以下の薄型ガラス基板表面上に絶縁性プラスチックを形成したもの、上記絶縁性プラスチック，上記金属等が挙げられるが、これらの材料に限定されるわけではない。

10

【0024】

ここでいう陽極とは、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。

【0025】

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ATING法等が挙げられる。

20

【0026】

$In_2O_3-SnO_2$ 系透明導電膜， In_2O_3-ZnO 系透明導電膜の仕事関数は、それぞれ、4.6eV，4.6eVであるが、UVオゾン照射，酸素プラズマ処理、等により、5.2eV程度まで増大させることが可能である。

【0027】

$In_2O_3-SnO_2$ 系透明導電膜では、スパッタ法において、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。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。

30

【0028】

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。

【0029】

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。

【0030】

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，導電性インクが望ましい。また、もちろん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。

40

【0031】

ここでいう正孔注入層とは、陽極と正孔輸送層の注入障壁を下げるため、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、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、これらに限定される訳ではない。

【0032】

ここでいう正孔輸送層とは、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、化学的に安定である

50

ことが望ましい。また、イオン化ポテンシャルが小さいことが望ましい。また、電子親和力が小さいことが望ましい。また、ガラス転移温度が高いことが望ましい。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 - ビフェニル] - 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(MTDAPB)、N, N - ジ(ピフェニル - 4 - イル) - N, N - ジフェニル[1, 1 - ビフェニル] - 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 - ビフェニル] - 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)が望ましい。もちろん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。

【0033】

また、正孔輸送層は、上記正孔輸送性材料に酸化剤を含有して、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事が望ましい。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。

【0034】

ここでいう発光層とは、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望ましい。また、もちろん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。

【0035】

次に、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)

10

20

30

40

50

、イリジウム錯体 ($\text{Ir}(\text{ppy})_3$) が望ましい。また、もちろん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。

【0036】

ここでいう電子輸送層とは、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。また、もちろん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。

【0037】

また、電子輸送層は、上記電子輸送性材料に還元剤を含有して、陽極との障壁を低くする事、或いは電気伝導度を向上させる事が望ましい。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である。特に、好ましいアルカリ金属はCs, Li, Na, Kである。もちろん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。

10

【0038】

ここでいう発光混合層とは、正孔輸送性材料、電子輸送性材料、及びドーパント材料を混在させた層をさす。具体的な輸送性材料、電子輸送性材料、及びドーパント材料は、上記正孔輸送性材料、前記電子輸送性材料、上記ドーパント材料に記されている。

20

【0039】

また、発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} 、電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{EM-ETL} 、及びドーパントのイオン化ポテンシャル I_{dop} は以下の関係である事が望ましい。

【0040】

(数式1)

$$I_{dop} < I_{EM-HTL} < I_{EM-ETL}$$

また、発光混合層を構成する正孔輸送性材料の電子親和力 A_{EM-HTL} 、電子輸送性材料の電子親和力 A_{EM-ETL} 、及びドーパントの電子親和力 A_{dop} は以下の関係である事が望ましい。

30

【0041】

(数式2)

$$A_{dop} < A_{EM-HTL} < A_{EM-ETL}$$

数式1を満たす事により、発光混合層に注入される正孔は、ドーパントにトラップされる過程と正孔輸送性材料を伝播される過程が支配的となる。

【0042】

また、数式2を満たす事により、発光混合層に注入される電子は、ドーパントにトラップされる過程と電子輸送性材料を伝播する過程が支配的となる。

【0043】

その結果として、同一ドーパントにトラップされた正孔と電子により、ドーパントは励起状態になり、 $I_{dop} - A_{dop}$ の発光エネルギーを有する光を放出して基底状態に戻る。

40

【0044】

ここでいうイオン化ポテンシャルは、物質から1個の電子を取り去るのに必要なエネルギー値を指す。金属の場合は、上記エネルギー値を仕事関数と定義する。イオン化ポテンシャルの測定法としては、大気光電子分光法、紫外光電子分光法が挙げられる。

【0045】

ここでいう電子親和力は、物質に1個の電子を付与した際、放出するエネルギー値を指す。電子親和力の測定法としては、吸収スペクトルのバンド端からエネルギーギャップを求めて、上記イオン化ポテンシャルと足して求める測定法、逆光電子分光法が挙げられる。

50

【 0 0 4 6 】

発光混合層の膜厚は、1 ~ 1 0 0 nmの範囲をとる事が可能である。しかし、発光混合層では、キャリアがドーパントにトラップされるため、膜厚を厚くすると発光混合層のキャリア輸送性が低くなる。そのため、発光混合層の膜厚は、1 ~ 1 0 nmである事が望ましい。

【 0 0 4 7 】

発光混合層では、1重量% ~ 99重量%の正孔輸送性材料と、99重量% ~ 1重量%の電子輸送性材料と、0.01重量% ~ 33重量%もドーパントから構成される事が出来る。その中で、30重量% ~ 70重量%の正孔輸送性材料と、70重量% ~ 30重量%の電子輸送性材料と、0.01重量% ~ 30重量%のドーパントから構成される事が望ましい

10

【 0 0 4 8 】

発光混合層の製法には、真空蒸着法，スピコート法，キャスト法，印刷法，キャリアガス輸送法が挙げられるが、これらの製法に限定される訳ではない。

【 0 0 4 9 】

また、発光混合層において、正孔，電子は、それぞれ、正孔輸送性材料，電子輸送性材料を伝播するため、各材料の分解が抑制された状態で、隣接発光混合層或いは後述する隣接輸送混合層にキャリアが注入される。

【 0 0 5 0 】

ここでいう輸送混合層とは、正孔輸送性材料、及び電子輸送性材料を混在させた層をさす。具体的な正孔輸送性材料、及び電子輸送性材料は、上記正孔輸送性材料，前記電子輸送性材料に記されている。

20

【 0 0 5 1 】

また、輸送混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{M-HTL} と電子輸送性材料のイオン化ポテンシャル I_{M-ETL} は、以下の関係である事が望ましい。

【 0 0 5 2 】

(数式3)

$$I_{M-HTL} < I_{M-ETL}$$

また、輸送混合層を構成する正孔輸送性材料の電子親和力 A_{M-HTL} と電子輸送性材料の電子親和力 A_{M-ETL} は、以下の関係である事が望ましい。

30

【 0 0 5 3 】

(数式4)

$$A_{M-HTL} \geq A_{M-ETL}$$

数式3を満たす事により、輸送混合層に注入される正孔は、正孔輸送性材料を伝播される過程が支配的となる。

【 0 0 5 4 】

また、数式4を満たす事により、輸送混合層に注入される電子は、電子輸送性材料を伝播する過程が支配的となる。

【 0 0 5 5 】

その結果として、輸送混合層において、正孔，電子は、それぞれ、正孔輸送性材料，電子輸送性材料を伝播するため、各材料の分解が抑制された状態で、隣接発光混合層にキャリアが注入される。

40

【 0 0 5 6 】

輸送混合層の膜厚は、1 ~ 1 0 0 0 nmの範囲をとる事が可能である。その中でも、1 ~ 5 0 nmである事が望ましい。

【 0 0 5 7 】

輸送混合層では、1重量% ~ 99重量%の正孔輸送性材料と、99重量% ~ 1重量%の電子輸送性材料から構成される事が出来る。その中で、10重量% ~ 90重量%の正孔輸送性材料と、90重量% ~ 10重量%の電子輸送性材料から構成される事が望ましい。

【 0 0 5 8 】

50

発光混合層の製法には、真空蒸着法，スピンコート法，キャスト法，印刷法，キャリアガス輸送法が挙げられるが、これらの製法に限定される訳ではない。

【0059】

本発明の有機発光素子では、発光混合層が2層以上積層される。(以下、発光混合層積層型と称す。)始めに、2層積層発光混合層を考える。陽極側の発光混合層を第1の発光混合層、陰極側の発光混合層を第2の発光混合層を称する。

【0060】

始めに、第1の発光混合層と第2の発光混合層の界面では、正孔の注入に際して、エネルギー障壁がない事が望ましい。

【0061】

具体的には、第1の発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルを $I_{EM1-HTL}$ 、第2の発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルを $I_{EM2-HTL}$ とした場合、以下の関係である事が望ましい。

【0062】

(数式5)

$$I_{EM1-HTL} \leq I_{EM2-HTL}$$

次に、第1の発光混合と第2の発光混合層の界面では、電子の注入に際して、エネルギー障壁がない事が望ましい。

【0063】

具体的には、第1の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力を $A_{EM1-HTL}$ 、第2の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力を $A_{EM2-HTL}$ とした場合、以下の関係である事が望ましい。

【0064】

(数式6)

$$A_{EM1-HTL} \leq A_{EM2-HTL}$$

3層以上積層した発光混合層の場合も2層積層構造における関係と同様である事が望ましい。具体的には、陽極側から陰極側に従い、発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルが等しくなる事或いは小さくなる事が望ましい。また、陽極側から陰極側に従い、発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力が等しくなる事或いは小さくなる事が望ましい。

【0065】

以上の関係を満たす事で、発光混合層間の界面において、電圧を印加しない状態で、正孔及び電子のエネルギー障壁がなくなり、より低電圧で発光が開始する。

【0066】

本発明の有機発光素子では、2層の発光混合層の間に輸送混合層が形成された積層構造を有する。陽極から陰極に向かって、第1の発光混合層、第1の輸送混合層、及び第2の発光混合層が積層されるとする。

【0067】

第1の発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルを $I_{EM1-HTL}$ 、第1の輸送混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルを $I_{MIX1-HTL}$ 、第2の発光混合層を構成する正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルを $I_{EM2-HTL}$ とした場合、以下の関係である事が望ましい。

【0068】

(数式7)

$$I_{EM1-HTL} \leq I_{MIX1-HTL} \leq I_{EM2-HTL}$$

第1の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力を $A_{EM1-ETL}$ 、第1の輸送混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力を $A_{MIX1-ETL}$ 、第2の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子親和力を $A_{EM2-ETL}$ とした場合、以下の関係である事が望ましい。

【0069】

(数式8)

10

20

30

40

50

$A_{EM1-ETL}$ $A_{MIX1-ETL}$ $A_{EM2-ETL}$

また、本発明の有機発光素子では、上記2層の発光混合層の間に輸送混合層が形成された積層構造に輸送混合層と発光混合層からなる積層構造を1層以上形成する構造となる。(以下、発光混合層/輸送混合層積層型と称す。)その場合も、上記積層構造と同様な関係となる事が望ましい。具体的には、陽極側から陰極側に従い、発光混合層或いは輸送混合層のイオン化ポテンシャルが等しくなる事或いは小さくなる事が望ましい。また、陽極側から陰極側に従い、発光混合層或いは輸送混合層の電子親和力が等しくなる事或いは小さくなる事が望ましい。

【0070】

以上の関係を満たす事で、発光混合層と輸送混合層の界面において、電圧を印加しない状態で、正孔及び電子のエネルギー障壁がなくなり、より低電圧で発光が開始する。

10

【0071】

本発明の目的の一つである白色発光を得るためには、赤色、緑色、青色の3波長からの発光を混色させる方式(3色方式)と、青色+黄色、或いは青緑色+橙色の2波長からの発光を混色させる方式(補色方式)である事が望ましい。

【0072】

発光層積層型では、数式5、及び数式6を満たす事が望ましい。また、発光光の発光エネルギーは、 $I_{dop} \cdot A_{dop}$ となる。上記関係、並びに数式1及び数式2から、発光エネルギーが大きい、例えば、青色発光を発する発光混合層が、発光エネルギーの小さい、例えば、黄色~赤色発光を発する発光混合層より、陽極側に位置する事が望ましい。

20

【0073】

本発明の発光混合層を2層積層した構造、或いは2層の発光混合層の間に輸送混合層を積層した構造を有する有機発光素子において、陽極側に位置する発光混合層を第1の発光混合層と称し、他方の発光混合層を第2の発光混合層と称すると、第1の発光混合層を構成する正孔輸送材料の正孔移動度と第2の発光混合層を構成する電子輸送性材料の電子移動度を比べて、大きい値を有する発光混合層のドーパント濃度を他方の発光混合層のドーパント濃度より大きくする事が望ましい。

【0074】

ここでいう移動度とは、有機分子間を伝導する際のキャリアの流れやすさを表す物性値である。測定手法としては、Time-of-Flight(TOF)法が挙げられる。測定試料に電圧を印加した状態で、試料表面にパルス光を照射し、生成したキャリアが移動することで生じる光電流を測定し、移動度を決定する。

30

【0075】

ここでいう移動度とは、有機分子間を伝導する際のキャリアの流れやすさを表す物性値である。測定手法としては、Time-of-Flight(TOF)法が挙げられる。測定試料に電圧を印加した状態で、試料表面にパルス光を照射し、生成したキャリアが移動することで生じる光電流を測定し、移動度を決定する。

【0076】

本発明の発光混合層では、ドーパントがキャリアをトラップするため、高移動度の輸送材料からなる発光混合層のドーパント濃度を高くすることにより、発光混合層でのチャージバランスを高め、発光効率を向上させる事ができる。

40

【0077】

また、発光混合層と正孔輸送層の界面では、発光輸送層を伝播した電子がブロックされる事が望ましい。具体的には、発光混合層の電子親和力 A_{EM-HTL} と正孔輸送層の電子親和力 A_{HTL} は、以下の関係である事が望ましい。

【0078】

(数式9)

$$A_{EM-HTL} < A_{HTL}$$

また、発光混合層と電子輸送層の界面では、発光輸送層を伝播した正孔がブロックされる事が望ましい。具体的には、発光混合層のイオン化ポテンシャル I_{EM-HTL} と正孔輸送層

50

のイオン化ポテンシャル I_{HTL} は、以下の関係である事が望ましい。

【0079】

(数式10)

$$I_{EM-HTL} < I_{HTL}$$

ここでいう電子注入層とは、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。具体的には、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。また、もちろん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。

【0080】

ここでいう陰極は、電子の注入効率を高める仕事関数の小さな導電膜が望ましい。具体的には、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が、これらの材料に限定されるわけではない。

【0081】

また、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。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が望ましい。

【0082】

ここでいう保護層とは、第2電極上に形成され、大気内 H_2O 、 O_2 が第2電極、或いはその下の有機層に入りこむことを防ぐことを目的とする。

【0083】

具体的に、 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。

【0084】

本発明の有機発光素子では、前述した反射電極を有する。そのため、発光混合層で発光した光は、直接前述した光取出し電極から射出する光と反射電極で反射されて、光取出し電極から射出される光により光の干渉効果が起こる。

【0085】

2層発光混合層積層型で検討する。反射電極側の発光混合層における発光光の中心波長を λ_1 、他方の発光光の中心波長を λ_2 とする。第1の発光混合層における発光点から反射電極までの光路長の2倍となる L_1 が、以下の関係を満たす時、正の干渉条件となり、光取出し電極から射出する光強度が増大する。ここでいう光路長とは、光路長を構成する層の膜厚に屈折率をかけて足したものである。

【0086】

(数式11)

$$L_1 = (m + 1/2) \times \lambda_1 \quad , \quad m \text{ は整数}$$

次に、第2の発光混合層における発光を考える。第2の発光混合層における発光点から反射電極までの光路長の2倍となる L_2 が、以下の関係を満たす時、正の干渉条件となり、光取出し電極から射出する光強度が増大する。

【0087】

(数式12)

$$L_2 = (n + 1/2) \times \lambda_2 \quad , \quad n \text{ は整数}$$

$L_1 < L_2$ である事から、 m と n が同じ値をとる場合、 $\lambda_1 < \lambda_2$ の関係となる事が望ましい。すなわち、取出し電極に近い位置の発光混合層における発光色の中心波長が、反射電極に近い位置の発光混合層における発光色の中心波長に比べて、長波長側にある事が望ま

10

20

30

40

50

しい。

【0088】

上記説明では、反射電極からの反射光による光干渉効果のみを考えているが、実際には、光取出し電極或いは保護層とその上にある不活性ガス層或いは空気層との界面の反射が存在するため、同界面からの反射光による光干渉効果も検討する必要がある。但し、その場合でも、取出し電極に近い位置の発光混合層における発光色の中心波長が、反射電極に近い位置の発光混合層における発光色の中心波長に比べて、長波長側にある事が望ましい。

【0089】

また、本発明の有機発光素子は、陽極と陰極が発光光の透過性を有する導電膜であり、何れか一方の電極を光取出し電極、他方を透過電極とし、前記透過電極の外側に拡散反射層を設け、前記陽極と前記陰極の間に形成された少なくとも1層の有機層で発光した光の内、前記透過電極を透過した光を前記拡散反射層により前記光取出し電極の方向に反射する構造であることが望ましい。

10

【0090】

ここでいう拡散反射層とは、 μm オーダの凹凸が不規則に配置された構造体であり、凹凸の表面が反射率の高い金属で覆われている事が望ましい。また、拡散反射層上に有機発光素子を形成するため、拡散反射層と有機発光素子の間には、透明な平坦化層が設けられている事が望ましい。

【0091】

ここでいう少なくとも1層の有機層とは、上記(1)、(2)、(3)の構造に加えて、発光層を2層以上積層させた構造であることが望ましい。

20

【0092】

本発明の有機発光表示装置は、上記有機発光素子を画素に用いる事が望ましい。また、本発明の有機発光表示装置は、色変換層を用いる事が望ましい。

【0093】

ここでいう有機発光表示装置とは、有機発光素子を画素に用いた表示装置をさす。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。

【0094】

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。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。

30

【0095】

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EL(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。

【0096】

ここでいう画素とは、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ことをいう。また、サブ画素とは、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ことをいう。カラー画像では、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、表示領域とは、表示装置において、画像が表示される領域をいう。

40

【0097】

ここでいう色変換層とは、画素、或いはサブ画素となる有機発光素子において発光した光を他の色の光に変換する層をさす。

【0098】

色変換層の構成は、有機発光素子の上に積層する構造と対向基板上に積層する構造に分

50

けられる。

【0099】

有機発光素子の上に積層する構造では、画素或いはサブ画素部分となる有機発光素子の上に、直接、或いは保護層を介して色変換層を形成する。画素或いはサブ画素の間には、隣接画素或いはサブ画素からの発光により、色変換層が発光することを防止するために、ブラックマトリクスを形成する。ブラックマトリクスと色変換層の形成順は、特に指定がない。その上に、必要に応じて、保護層を形成する。

【0100】

色変換層を対向基板に形成する構造では、上述した対向基板上に、ブラックマトリクス、色変換層、保護層を形成して、有機EL基板と貼り合わせる。その際、画素或いはサブ画素上に所定の色変換層が位置するよう、調整して、貼り合わせる。

10

【0101】

色変換層には、大別して、カラーフィルタ層とカラー変換層が挙げられる。

【0102】

カラーフィルタ層は、入射しは光のスペクトルの一部を出射するものを指す。カラーフィルタの材料は、色素とバインダー樹脂を含有する。色素としては、赤色色素、青色色素、緑色素、等が挙げられる。

【0103】

前記赤色色素の具体例としては、ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラセン系顔料、イソシンドリン系顔料、イソインドリノン系顔料、等が望ましい。また、もちろん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

【0104】

前記青色色素の具体例としては、銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料、等が望ましい。また、もちろん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。

【0105】

前記緑色色素の具体例としては、クマリン系顔料等が望ましい。

【0106】

前記バインダー樹脂としては、可視光領域における透過率が50%以上の透明な材料が望ましい。具体的には、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシエチルセルロース、等が挙げられる。また、もちろん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。

30

【0107】

カラーフィルタの形成方法には、染色法、顔料分散法、印刷法、電着法が挙げられるが、特にこれらに限定される訳ではない。

【0108】

ここでいうカラー変換層は、入射した光により励起されて蛍光光を発する色変換蛍光層と出射スペクトルを補正する補正カラーフィルタ層からなる。

40

【0109】

色変換蛍光層は、蛍光色素とバインダー樹脂を含有する。蛍光色素としては、赤色蛍光色素、緑色蛍光色素、等が挙げられる。

【0110】

赤色蛍光色素の具体例としては、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-ピラン等のシアニン系色素、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]-ピリジウム-パークロレート等のピリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G等のローダミン系色素、或いはオキサジン系色素、等が挙げられる。また、もちろんこれらの材料に限られるわけではなく、また

50

、これらの材料を2種以上併用しても差し支えない。

【0111】

緑色蛍光色素の具体例としては、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ノ(9,9a,1-gh)クマリン、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン、3-(2-ベンズイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン等のクマリン色素、ベーシックイエロー等のクマリン色素系染料、ソルベントイエロー、等が挙げられる。また、もちろん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。

【発明の効果】

【0112】

本発明の有機発光素子は、正孔、電子の両キャリアにおける輸送性の高い混合層を積層するため、各発光層を構成する材料の分解が低減されて、高信頼性を有する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0113】

本発明を実施するための最良の形態を以下に例示する。

【実施例1】

【0114】

始めに、2種類の発光混合層を積層した本実施形態について、図1を用いて説明する。1はガラス基板、2は下部電極、3は正孔輸送層、4は第1の発光混合層、5は第2の発光混合層、6は電子輸送層、7は電子注入層、8は上部電極、9は有機EL基板、10は封止基板である。

【0115】

ガラス基板1上にスパッタリング法を用いて、厚さ150nmのITO膜を形成し、ホトリソグラフィ法を用いて下部電極2を形成する。

【0116】

次に、下部電極2上に、真空蒸着法により膜厚50nmの4,4-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下、NPDと称する。)膜を形成する。

【0117】

Mo製昇華ボードにNPDの原料を入れ、蒸着速度を 0.15 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着する。このNPD膜は正孔輸送層3として機能する。

【0118】

次に、正孔輸送層3上に、真空蒸着法により膜厚5nmの4,4-ビス[N,N-(3-トリル)アミノ]-3,3-ジメチルビフェニル(以下、HMTPDと称する。)、バソキュプロイン(以下、BCPと称する。)、及びスチリルアミン化合物1,4-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-4-アミノフェニルビニレン]-2,5-ジメトキシベンゼン(以下、DSAと称する。)を共蒸着した膜を形成する。

【0119】

3個のMo製昇華ボードにHMTPD,BCP,DSAの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0.20 ± 0.01 nm/sec, 0.20 ± 0.01 nm/sec, 0.01 ± 0.005 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第1の発光混合層4として機能する。また、第1の発光混合層4の中で、DSAが発光色を決定するドーパントとして機能する。

【0120】

次に、第1の発光混合層4上に、真空蒸着法により膜厚5nmのNPD,トリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下、Alq3と称する。)、及びルブレンを共蒸着した膜を形成する。

【0121】

3個のMo製昇華ボードにNPD,Alq3,ルブレンの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0.20 ± 0.01 nm/sec, 0.20 ± 0.01 nm/sec, 0.01 ± 0.005 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の発光混合層5として機能する。ま

10

20

30

40

50

た、第2の発光混合層5の中で、ルブレングが発光色を決定するドーパントとして機能する。

【0122】

次に、第2の発光混合層5上に、真空蒸着法により膜厚20nmのAlq3膜を形成する。このとき、Mo製昇華ボードにAlq3の原料を入れ、蒸着速度を、 0.15 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着した。このAlq3膜は電子輸送層6として機能する。

【0123】

次に、電子輸送層6の上に、電子注入層7としてLiF膜を形成する。真空蒸着法を用いて蒸着速度を 0.05 ± 0.01 nm/secに設定し、膜厚0.5nmを蒸着した。

【0124】

次に、電子注入層7の上に、上部電極8としてAl膜を形成する。真空蒸着法を用いて、蒸着速度を 1 ± 0.05 nm/secに設定し、膜厚150nmを蒸着した。

【0125】

次に、有機発光素子を形成した基板(有機EL基板)9を大気に曝すことなく、乾燥窒素ガスを循環させて、露点を-90以下に保った封止室に移動させる。

【0126】

次に、封止室にガラス基板を導入する。このガラス基板は封止基板(対向基板)10となる。ガラス基板による封止基板のエッジ部分に、シールディスペンサ装置を用いて光硬化樹脂を描画した(図示省略)。

【0127】

光硬化樹脂のシール幅は200 μ mとした。光硬化樹脂の中には、直径10 μ mのガラスビーズを1重量%混入させた。この封止基板10と有機EL基板9を封止室内で貼り合せ、0.5kg重/cm²の荷重で圧着させた。封止基板10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、封止基板10側からUV光を照射させて光硬化樹脂を硬化させた(図示省略)。

【0128】

本実施形態における有機発光素子の発光過程を説明する。下部電極2と上部電極8の間に、発光開始電圧以上の電圧を印加する。

【0129】

始めに、正孔輸送過程を説明する。下部電極2であるITO電極から正孔輸送層3に正孔が注入される。正孔は正孔輸送層3を伝播し、第1の発光混合層4に注入される。第1の発光混合層4を構成する材料HMTPD, BCPのイオン化ポテンシャルは、それぞれ、5.6eV, 6.4eVとなる。そのため、注入された正孔は、選択的に正孔輸送性材料であるHMTPDを伝播する。また、正孔の一部は第1の発光混合層4に含まれるドーパントDSAにトラップされる。

【0130】

次に、HMTPDを伝播した正孔は、第2の発光混合層5に注入される。第2の発光混合層5を構成する材料-NPD, Alq3のイオン化ポテンシャルは、それぞれ、5.3eV, 5.7eVである。そのため、正孔は-NPDを選択的に伝播する。また、HMTPDのイオン化ポテンシャルは、-NPDのイオン化ポテンシャルに比べて大きいいため、第1の発光混合層4から第2の発光混合層5への正孔注入には、両電極に電圧を印加しない状態で、エネルギー障壁がない。また、電子輸送層6を構成する材料Alq3のイオン化ポテンシャルは、-NPDに比べて大きいいため、正孔は第2の発光混合層5内部に存在する。

【0131】

次に、電子輸送過程を説明する。上部電極8から電子注入層7, 電子輸送層6の順に電子が注入される。電子は電子輸送層6を伝播し、第2の発光混合層5に注入される。第2の発光混合層5を構成する材料-NPD, Alq3の電子親和力は、それぞれ、2.5eV, 2.9eVである。そのため、電子は電子輸送性材料であるAlq3を選択的に伝播する。また、電子の一部は第2の発光混合層5に含まれるドーパントとして機能するル

10

20

30

40

50

ブレンにトラップされる。

【0132】

A1q3を伝播した電子は、第1の発光混合層4に注入される。第1の発光混合層4を構成する材料HMTPD, BCPの電子親和力は、それぞれ、 2.3 eV , 2.9 eV となる。そのため、注入された電子は、選択的に電子輸送性材料であるBCPを伝播する。

A1q3の電子親和力とBCPの電子親和力は等しいため、第2の発光混合層5から第1の発光混合層4への電子注入には、両電極に電圧を印加しない状態でエネルギー障壁が存在しない。また、正孔輸送層3を構成する材料 - NPDの電子親和力は、BCPに比べて大きいため、正孔は、正孔輸送層3に注入されず、第1の発光混合層4内部に存在する。

10

【0133】

次に、発光過程を説明する。第1の発光混合層4では、正孔がトラップされているドーパントDSAに、BCPを伝播した電子がトラップされ、その結果として、DSAが励起状態となる。励起状態となったDSAは、第1励起状態と基底状態のエネルギー差に対応した波長の光を発光し基底状態に戻る。上記発光過程以外にも、電子がトラップされたDSAに、正孔がトラップされた励起状態から基底状態への発光過程、及び正孔と電子がDSAに同時にトラップされた励起状態から基底状態への発光過程が含まれる。

【0134】

第2の発光混合層5では、電子がトラップされたドーパントであるルブレンに、 - NPDを伝播する正孔がトラップされ、ルブレンが励起状態となる。励起状態となったルブレンは、第1励起状態と基底状態のエネルギー差に対応した波長の光を発光し、基底状態に戻る。上記発光過程以外にも、正孔がトラップされたルブレンに、電子がトラップされて励起状態となる過程、及び正孔と電子が、ルブレンに同時にトラップされて励起状態となる過程が含まれる。

20

【0135】

以上まとめると、正孔は正孔輸送性材料であるHMTPD, - NPDを伝播する。また、電子は、電子輸送性材料であるA1q3, BCPを伝播する。そのため、発光混合層を構成する輸送性材料の分解が抑制され、素子の信頼性が向上する。

【0136】

本発明の有機素子は、中心波長 480 nm 及び中心波長 560 nm の発光が重なった白色発光を示した。 8 V 印加において輝度 1000 cd/m^2 を達成した。また、初期輝度 1000 cd/m^2 の定電流駆動における寿命(輝度半減時間)は 3000 時間程度と良好な寿命特性を得た。

30

【0137】

本実施形態では、発光混合層4, 5の膜厚を 5 nm としたが、膜厚を厚くしても問題ない。但し、キャリアをトラップするドーパントを含む領域が増大するため、隣接する発光混合層へのキャリア輸送性が低下する。

【0138】

また、本実施形態では、第1の発光混合層4と第2の発光混合層5の界面において、正孔, 電子とも、両電極に電圧を印加しない状態で、エネルギー障壁のない構成であった。正孔と電子のキャリア注入バランスをとるために、キャリアのどちらかにエネルギー障壁を設ける材料構成にすることは問題ない。

40

【実施例2】

【0139】

次に、2層の発光混合層の間に輸送混合層を形成した本実施形態について、図2を用いて説明する。11は輸送混合層である。

【0140】

ガラス基板1上にスパッタリング法を用いて、厚さ 150 nm のCr膜を形成し、ホトリソグラフィ法を用いて下部電極2を形成する。

【0141】

50

下部電極 2 上に、正孔輸送層 3 , 第 1 の発光混合層 4 を形成する。作製条件は、実施例 1 と同様である。

【 0 1 4 2 】

次に、第 1 の発光混合層 4 上に、真空蒸着法により膜厚 1 5 n m の H M T P D , B C P を共蒸着した膜を形成する。2 個の M o 製昇華ボードに H M T P D , B C P の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0 . 2 0 ± 0 . 0 1 n m / sec , 0 . 2 0 ± 0 . 0 1 n m / sec に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は輸送混合層 1 1 として機能する。

【 0 1 4 3 】

次に、輸送混合層 1 1 上に、第 2 の発光混合層 5 を形成する。作製条件は、実施例 1 と同様である。

【 0 1 4 4 】

次に、輸送混合層 1 1 上に、膜厚 5 n m の - N P D , A l q 3、及びルブレ共蒸着膜を形成する。形成条件は、実施例 1 と同様である。上記共蒸着膜は第 2 の発光混合層 5 として機能する。

【 0 1 4 5 】

次に、第 2 の発光混合層 5 上に電子輸送層 6 を形成する。作製条件は、実施例 1 と同様である。

【 0 1 4 6 】

次に、電子輸送層 6 上に、真空蒸着法を用いて、膜厚 1 0 n m の M g と A g の混合膜を形成する。2 元同時蒸着法を用いて、蒸着速度を、それぞれ、0 . 1 4 ± 0 . 0 1 n m / sec , 0 . 0 1 ± 0 . 0 0 5 n m / sec に制御して蒸着した。M g : A g 混合膜は、電子注入層 7 として機能する。

【 0 1 4 7 】

次に、電子注入層 7 上に、スパッタリング法により、膜厚 8 0 n m の I n - Z n - O 膜 (以下、I Z O 膜と称する。) 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、I n / (I n + Z n) = 0 . 8 3 であるターゲットを用いた。成膜条件は、A r : O 2 混合ガスを雰囲気として、真空度 0 . 2 P a、スパッタリング出力を 2 W / cm 2 とした。M g : A g / I n - Z n - O 積層膜の透過率は 6 5 % であった。

【 0 1 4 8 】

次に、有機 E L 基板 9 と封止基板 1 0 を封止する。封止条件は、実施例 1 と同様である。

【 0 1 4 9 】

実施例 1 同様、正孔は正孔輸送性材料である H M T P D , - N P D を伝播し、電子は電子輸送性材料である A l q 3 , B C P を伝播する。また、実施例 1 同様、第 1 の発光混合層 4 のドーパントであるルブレにキャリアがトラップされた発光過程が起こる。発光層並びに輸送層を構成する輸送性材料の分解が低減され、素子の信頼性が向上する。

【 0 1 5 0 】

また、第 1 の発光混合層 4 と輸送混合層 1 1 の界面では、両電極に電圧を印加しない状態で、正孔、電子ともエネルギー障壁が存在しない。そのため、発光のための印加電圧を低くすることができる。

【 0 1 5 1 】

本実施形態における有機発光素子では、第 1 の発光混合層 4 で発光した青色の発光色と第 2 の発光混合層 5 で発光した黄色の発光色が混色され白色光を発光する。第 1 の混合層 4 で発光した青色発光光は以下に示した経路で射出される。そのため、各経路の光の干渉効果により、発光中心波長及び光強度が変化する。

第 1 の発光混合層 輸送混合層 第 2 の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

第 1 の発光混合層 正孔輸送層 (下部電極反射) 正孔輸送層 第 1 の発光混合層 輸送混合層 第 2 の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

10

20

30

40

50

第1の発光混合層 輸送混合層 第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極 (封止雰囲気反射) 上部電極 電子注入層 電子輸送層 第2の発光混合層 輸送混合層 第1の発光混合層 正孔輸送層 (下部電極反射) 正孔輸送層 第1の発光混合層 輸送混合層 第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

第2の混合層5で発光した黄色発光光も以下に示した各経路の重ね合せの光干渉効果により、発光中心波長及び光強度が変化する。

第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

第2の発光混合層 輸送混合層 第1の発光混合層 正孔輸送層 (下部電極反射) 正孔輸送層 第1の発光混合層 輸送混合層 第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

10

第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極 (封止雰囲気反射) 上部電極 電子注入層 電子輸送層 第2の発光混合層 輸送混合層 第1の発光混合層 正孔輸送層 (下部電極反射) 正孔輸送層 第1の発光混合層 輸送混合層 第2の発光混合層 電子輸送層 電子注入層 上部電極

【0152】

本実施形態の層構成並びに各層の膜厚では、第1の発光混合層4で発光した青色発光光で正の光干渉条件となる。また、第1の発光混合層4と第2の発光混合層5の間に膜厚15nmの輸送混合層11を形成したため、第2の発光混合層5で発する黄色の発光でも正の光干渉条件となり、光強度が増大する。青色発光の第1の発光混合層4と黄色発光の第2の発光混合層5を隣接させた積層構造では、第2の発光混合層5で発光する黄色の光は、負の光干渉条件に近づいてしまい、光強度が0.88程度に減衰した。

20

【0153】

本発明の有機発光素子は、中心波長480nm及び中心波長560nmの発光が重なった白色発光を示した。また、7V印加において輝度1000cd/m²を達成した。また、初期輝度1000cd/m²の定電流駆動における寿命(輝度半減時間)は3000時間程度と良好な寿命特性を得た。

【0154】

また、本発明の有機発光素子では、輸送混合層を設けて、発光領域と輸送領域を分離した事を特徴とする。そのため、発光領域として機能する第1の発光混合層4、及び第2の発光混合層5の膜厚を厚くする事なく、全有機層の膜厚を厚くする事ができるため、陽極と陰極間の短絡が防止され、素子の信頼性が向上する。

30

【0155】

また、本実施例では、反射電極となる下部電極2に近い位置に青色の第1の発光混合層4を形成した。また、光取り出し電極となる上部電極の近い位置に黄色発光の第2の発光混合層5を形成した。後述する光干渉の影響を受けない素子構造等では、青色発光の発光混合層と黄色発光の発光混合層の位置を逆にした構造でもよい。

【0156】

また、本実施例では、第1発光混合層と輸送混合層の界面、及び輸送混合層と第2発光混合層の界面において、正孔、電子とも、両電極に電圧を印加しない状態で、エネルギー障壁が存在しない。そのため、発光のための印加電圧を低減する事が可能となる。但し、各発光混合層への正孔、電子の注入バランスが崩れている場合は、上記界面において、エネルギー障壁を有する事が有効な場合もある。

40

【実施例3】

【0157】

次に、3層の発光混合層の間に輸送混合層を形成した本実施形態について、図3を用いて説明する。12は第1の輸送混合層、13は第2の輸送混合層、14は第3の発光混合層である。

【0158】

ガラス基板1上に、下部電極2、正孔輸送層3、及び第1の発光混合層4を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

50

【0159】

次に、第1の発光混合層4上に、真空蒸着法により膜厚15nmのHMTPD、BCPを共蒸着した膜を形成する。2個のMo製昇華ボードにHMTPD、BCPの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第1の輸送混合層12として機能する。

【0160】

次に、第1の輸送混合層12上に、真空蒸着法により、膜厚5nmの-NPD、Alq3、及びクマリン6を共蒸着した膜を形成する。3個のMo製昇華ボードに-NPD、Alq3、及びクマリン6の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、及び $0.01 \pm 0.005 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の発光混合層5として機能する。

10

【0161】

次に、第2の発光混合層5上に、真空蒸着法により膜厚15nmの-NPD、Alq3を共蒸着した膜を形成する。2個のMo製昇華ボードに-NPD、Alq3の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の輸送混合層13として機能する。

【0162】

次に、第2の輸送混合層13上に、膜厚5nmの-NPD、Alq3、及びDCM2を共蒸着した膜を形成する。3個のMo製昇華ボードに-NPD、Alq3、及びDCM2の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.008 \pm 0.002 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第3の発光混合層14として機能する。

20

【0163】

次に、第3の発光混合層14上に、電子輸送層6、電子注入層7、上部電極8を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

【0164】

次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

【0165】

本実施形態における有機発光素子では、第1の発光混合層4、第2の発光混合層5、及び第3の発光混合層14において、添加されているドーパントに正孔並びに電子がトラップされて発光する。

30

【0166】

また、キャリアをトラップするドーパントが含まれる発光混合層の膜厚を5nmと薄膜化し、また、第1の発光混合層4と第2の発光混合層5の間には、第1の輸送混合層12が、第2の発光混合層5と第3の発光混合層14の間には、第2の輸送混合層13が、形成されている。輸送混合層はドーパントを含まないため、キャリアがトラップされずに輸送されて、隣接発光混合層に注入される。

【0167】

本発明の有機発光素子は、中心波長480nm、中心波長520nm、及び中心波長620nmの発光が重なった白色発光を示した。同発光スペクトルは、発光表示装置のサブ画素の赤、緑、青色のスペクトルを有しているため、発光表示装置に適している。また、9V印加において輝度 1000 cd/m^2 を達成した。

40

【0168】

また、本実施例の有機発光素子では、下部電極側から、青色発光する第1の発光混合層4、緑色発光する第2の発光混合層5、赤色発光する第3の発光混合層14の順に形成したが、発光混合層の順番を変えても問題ない。その場合、両電極に電圧を印加しない状態で、正孔或いは電子においてエネルギー障壁が発生する。各発光混合層への正孔、電子の注入バランスが崩れている場合は、エネルギー障壁を有する事が有効な場合もある。

【0169】

50

また、第1の発光混合層4と第1の輸送混合層12を構成する正孔輸送性材料と電子輸送性材料は、それぞれ、HMTPD、BCPであり、共通である。各材料の蒸発源において、射出部に開閉シャッターを有する構造、或いは蒸発する部位と射出する部位が分離されてその間にバルブが設けられた構造で、所定の蒸発速度と蒸発速度0nm/secを切替えられる事が望ましい。

【0170】

その場合、第1の発光混合層4として、HMTPD、BCP、及びDSAを所定の蒸発速度で蒸着する。次に、DSAの蒸発速度を0nm/secにした上で、第1の輸送混合層12を蒸着して形成する。

【0171】

以上より、第1の発光混合層4と第1の輸送混合層12の連続形成が可能となる。

【0172】

また、第2の発光混合層5、第2の輸送混合層、及び第3の発光混合層は、正孔輸送性材料が-NPD、電子輸送性材料がAlq3と共通の材料である。そのため、-NPD、Alq3、ルブレン、及びDCM2の蒸発源を有して、蒸発源が所定の蒸発速度と蒸発速度0nm/secを切替えられる構造になっていれば、第2の発光混合層5、第2の輸送混合層13、及び第3の発光混合層14の連続形成が可能となる。

【実施例4】

【0173】

次に、2種類の発光混合層を構成する正孔輸送性材料と電子輸送性材料の移動度に対応して各発光混合層のドーパント濃度を定めた本実施形態について、図4を用いて説明する。

【0174】

基板1上に下部電極2、正孔輸送層3を形成する方法は、実施例1と同様である。

【0175】

次に、正孔輸送層3上に、真空蒸着法により膜厚5nmの-NPD、バソフェナントロリン(以下、Bphenと称する。)、及びルブレンを共蒸着した膜を形成する。3個のMo製昇華ボードに-NPD、Bphen、及びルブレンの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0.20 ± 0.01 nm/sec、 0.20 ± 0.01 nm/sec、 0.08 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第1の発光混合層4として機能する。

【0176】

次に、第1の発光混合層4上に、真空蒸着法により膜厚5nmの-NPD、Alq3、及びDCM2を共蒸着した膜を形成する。3個のMo製昇華ボードに-NPD、Alq3、及びDCM2の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0.20 ± 0.01 nm/sec、 0.20 ± 0.01 nm/sec、 0.008 ± 0.002 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の発光混合層5として機能する。

【0177】

第2の発光混合層5上に、電子輸送層6、電子注入層7、上部電極8を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

【0178】

本実施形態における有機発光素子では、第1の発光混合層4で発光した黄色の発光色と第2の発光混合層5で発光した赤色の発光色が混色された光を発光する。電界強度 5.5×10^5 V/cmにおける、-NPDの正孔移動度(以下、 μ_H と称する。)は 9×10^{-4} cm²/V/secである。また、電界強度 5.5×10^5 V/cmにおける、Bphenの電子移動度(以下、 μ_e と称する。)は 5.2×10^{-4} cm²/V/secである。また、電界強度 5.5×10^5 V/cmにおける、Alq3の μ_e は 0.02×10^{-4} cm²/V/secである。各材料の移動度は電界強度依存性が低いため、本実施形態の有機発光素子に印加する電圧領域では、上記移動度の値が指標となる。

【0179】

10

20

30

40

50

上記構成材料の中で Alq3 の μ_e が 2 桁以上低い。このため、正孔輸送層 3 から注入された正孔と電子輸送層 6 から注入された電子のチャージバランスが、第 1 の発光混合層 4 及び第 2 の発光混合層 5 とともに悪くなり、発光効率が低下する。本実施形態における有機発光素子では、ドーパントはキャリアをトラップする。そのため、第 1 の発光混合層 4 のドーパントであるルブレンのドーパント濃度を、第 2 の発光混合層 5 のドーパントである DCM2 のドーパント濃度の 10 倍にする事で、第 1 の発光混合層 4 における正孔の輸送性を低下させ、第 1 の発光混合層 4、第 2 の発光混合層 5 でのチャージバランスを向上させた。

【0180】

本発明の素子は、中心波長 560 nm 及び中心波長 620 nm の発光が重なったスペクトルの発光を示した。また、6.5 V 印加において輝度 1000 cd/m^2 を達成した。比較のため、第 1 の発光混合層 4 のドーパントであるルブレンのドーパント濃度を 2% にした有機発光素子（他の層構成、作製条件は同じである。）では、7.5 V 印加において輝度 1000 cd/m^2 を達成した。比較例では、チャージバランスが悪くなるため、特性低下が起こると考えられる。

10

【実施例 5】

【0181】

次に、2 種類の発光混合層を構成する正孔輸送性材料と電子輸送性材料の移動度に対応して発光混合層のドーパント濃度を定めた、実施例 4 と異なる、本実施形態について、図 5 を用いて説明する。

20

【0182】

ガラス基板 1 上に下部電極 2、正孔輸送層 3、第 1 の発光混合層 4 を形成する方法は、実施例 5 と同様である。

【0183】

次に、第 1 の発光混合層 4 上に、真空蒸着法により膜厚 15 nm の -NPD、Alq3 を共蒸着した膜を形成する。2 個の Mo 製昇華ボードに -NPD、及び Alq3 の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.15 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ 、 $0.15 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は輸送混合層 11 として機能する。

【0184】

次に、輸送混合層 11 上に、第 2 の発光混合層 5 を形成する。作製条件は、実施例 4 と同様である。

30

【0185】

次に、電子輸送層 6、電子注入層 7、上部電極 8 を形成する。作製条件は、実施例 1 と同様である。

【0186】

次に、有機 EL 基板 9 と封止基板 10 を封止する。封止条件は、実施例 1 と同様である。

【0187】

本実施形態における有機発光素子では、実施例 4 同様、第 1 の発光混合層 4、第 2 の発光混合層 5 でのチャージバランスが向上している。

40

【0188】

また、発光領域と隣接発光領域へのキャリア輸送を、それぞれ、発光混合層と輸送混合層に分離したため、キャリアをトラップする発光混合層の膜厚を薄くした状態で、トータル膜厚を厚くする事ができる。トータル膜厚を厚くする事で、下部電極 2 と上部電極 8 間のショートを防止する事が可能となる。

【0189】

本発明の有機発光素子は、中心波長 560 nm 及び中心波長 620 nm の発光が重なったスペクトルの発光を示した。また、7 V 印加において輝度 1000 cd/m^2 を達成した。比較のため、第 1 の発光混合層 4 のドーパントであるルブレンのドーパント濃度を 2% にした有機発光素子（他の層構成、作製条件は同じである。）では、8 V 印加において輝

50

度 1000 cd/m^2 を達成した。比較例では、チャージバランスが悪くなるため、特性低下が起こると考えられる。

【実施例 6】

【0190】

次に、2種類の発光混合層における電子輸送性材料を共通化した本実施形態について、図6を用いて説明する。

【0191】

ガラス基板1上に、下部電極2，正孔輸送層3，第1の発光混合層4を形成する。形成方法は、実施例1と同様である。

【0192】

次に、第1の発光混合層4上に、真空蒸着法により膜厚5nmの-NPD，BCP、及びルブレンを共蒸着した膜を形成する。3個のMo製昇華ボードに-NPD，BCP，ルブレンの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ ， $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ ， $0.01 \pm 0.005 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の混合層5として機能する。

【0193】

次に、第2の発光混合層5上に、電子輸送層6，電子注入層7，上部電極8を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

【0194】

本実施形態の有機発光素子では、第1の発光混合層4と第2の発光混合層5の電子輸送性材料をBCPで共通化した。輸送性材料を共通化する事により、構成材料の設計が簡素化される。特に、電子輸送性材料は種類が少ないため、正孔輸送性材料のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルを有する電子輸送性材料を2種類以上探すのは困難である。

【0195】

本発明の有機発光素子は、中心波長480nm及び中心波長560nmの発光が重なった白色発光を示した。電圧を8.5V印加して、輝度 1000 cd/m^2 を達成した。

【実施例 7】

【0196】

次に、2種類の発光混合層の間に輸送混合層を形成した構造において、電子輸送性材料を共通化した実施形態について、図7を用いて説明する。

【0197】

ガラス基板1上に、下部電極2，正孔輸送層3，第1の発光混合層4を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

【0198】

次に、真空蒸着法により膜厚15nmのHMTPD，BCPを共蒸着した膜を形成する。2個のMo製昇華ボードにHMTPD，BCPの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ ， $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は輸送混合層11として機能する。次に、輸送混合層11上に、第2の発光混合層5，電子輸送層6，電子注入層7，上部電極8を形成する。作製条件は、実施例7と同様である。次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

【0199】

本発明の素子は、中心波長480nm及び中心波長560nmの発光が重なった白色発光を示した。電圧を8.0V印加して、輝度 1000 cd/m^2 を達成した。

【実施例 8】

【0200】

次に、2種類の発光混合層の間に2種類の輸送混合層を形成した実施形態について、図8を用いて説明する。

10

20

30

40

50

【0201】

ガラス基板 1 上に、下部電極 2，正孔輸送層 3，第 1 の発光混合層 4 を形成する。作製条件は、実施例 1 と同様である。

【0202】

次に、第 1 の発光混合層 4 上に、第 1 の輸送混合層 1 2，第 2 の輸送混合層 1 3，第 2 の発光混合層 5，電子輸送層 6，電子注入層 7、及び上部電極 8 を形成する。作製条件は、実施例 3 と同様である。

【0203】

第 1 の発光混合層 4 と第 1 の輸送混合層 1 2 は共通の正孔輸送性材料と電子輸送性材料で構成されているため、正孔輸送性材料，電子輸送性材料，ドーパントの蒸発源を有して、蒸発源が所定の蒸発速度と蒸発速度 0 nm/sec を切替えられる構造になっていれば、第 1 の発光混合層 4 と第 1 の輸送混合層 1 2 の連続形成が可能となる。

10

【0204】

また、第 2 の輸送混合層 1 3 と第 2 の発光混合層 5 は共通の正孔輸送性材料と電子輸送性材料で構成されているため、正孔輸送性材料，電子輸送性材料，ドーパントの蒸発源を有して、蒸発源が所定の蒸発速度と蒸発速度 0 nm/sec を切替えられる構造になっていれば、第 2 の輸送混合層 1 3 と第 2 の発光混合層 5 の連続形成が可能となる。

【0205】

本実施形態の有機発光素子では、第 1 の発光混合層 4 と第 1 の輸送混合層 1 2 からなる積層膜と第 2 の輸送混合層 1 3 と第 2 の発光混合層 5 からなる積層膜の膜厚は等しくなる。そのため、蒸着時間すなわちタクトタイムが等しくなり、スループットが向上する。

20

【0206】

本発明の素子は、中心波長 480 nm 及び中心波長 560 nm の発光が重なった白色発光を示した。電圧を 9.0 V 印加して、輝度 1000 cd/m^2 を達成した。

【実施例 9】

【0207】

次に、2 種類の発光混合層を積層し、輸送層にドーピングを実施した本実施形態について、図 9 を用いて説明する。15 は正孔輸送層、16 は第 1 のブロック層、17 は第 2 のブロック層、18 は電子輸送層である。

【0208】

ガラス基板 1 上に下部電極 2 を形成する。形成方法は、実施例 1 と同様である。次に、下部電極 2 上に、真空蒸着法により膜厚 100 nm の 4, 4', 4'' - トリス - [N - (m - トリル) - N - フェニルアミノ] トリフェニルアミン (以下、m - MTDATA と称する。)、テトラ 2, 3, 5, 6 - テトラフロロ - 7, 7, 8, 8 - シアノキノジメタン (以下、F4 - TCNQ と称する。)) を共蒸着した膜を形成する。2 個の Mo 製昇華ボードに m - MTDATA, F4 - TCNQ の原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ $0.40 \pm 0.05 \text{ nm/sec}$, $0.008 \pm 0.002 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記共蒸着膜は正孔輸送層 15 として機能する。

30

【0209】

次に、正孔輸送層 15 上に、真空蒸着法により膜厚 5 nm の N, N - ジフェニル - N, N - ビス (4 - メチルフェニル) - 4, 4 - ジアミン (以下、TPD と称する。)) を蒸着した膜を形成する。Mo 製昇華ボードに TPD の原料を入れ、蒸着速度を $0.15 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記蒸着膜は第 1 のブロック層 16 として機能する。

40

【0210】

次に、第 1 のブロック層 16 上に、第 1 の発光混合層 4，第 2 の発光混合層 5 を形成する。成膜条件は実施例 1 と同様である。

【0211】

次に、第 2 の発光混合層 5 上に、真空蒸着法により膜厚 5 nm の Bphen を蒸着した膜を形成する。Mo 製昇華ボードに Bphen の原料を入れ、蒸着速度を $0.20 \pm 0.01 \text{ nm/sec}$ に制御して蒸着した。上記蒸着膜は第 2 のブロック層 17 として機能する。

50

【0212】

次に、第2のブロック層17上に、膜厚30nmのBphen, Liを共蒸着した膜を形成する。Bphenの原料を入れたMo製昇華ボード、及びサエスゲッターズ社製Liディスプレイ用いて、蒸着速度を、それぞれ、 0.20 ± 0.01 nm/sec, 0.20 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着した。上記蒸着膜は電子輸送層18として機能する。

【0213】

次に、電子輸送層18上に上部電極を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

【0214】

次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

10

【0215】

本発明の有機発光素子の正孔輸送層15にはF4-TCNQがドーピングされている。それにより、正孔輸送層15の体積低効率は、 10^9 cm以上から 10^6 cmまで低下した。一方、電子輸送層18もLiをドーピングしたことにより、体積低効率が 10^9 cm以上から 10^4 cmまで低下した。そのため、素子に印加された電圧により、発光領域での電界強度が増大し、4V印加において輝度 1000 cd/m²を達成した。発光スペクトル、並びに寿命は、実施例1の有機発光素子と同等であった。

【0216】

本発明に用いる有機発光素子は開示した構造に限定されるものでなく、実施例4, 6で開示された有機発光素子の構成を用いてもよい。

20

【実施例10】

【0217】

次に、2種類の発光混合層を積層し、輸送層にドーピングを実施した、実施例9と異なる実施形態について、図10を用いて説明する。

【0218】

ガラス基板1上に下部電極2, 正孔輸送層15, 第1のブロック層16, 第1の発光混合層4を形成する。作製条件は、実施例9と同様である。次に、第1の発光混合層4上に、真空蒸着法により膜厚15nmのHMTPD, BCPを共蒸着した膜を形成する。2個のMo製昇華ボードにHMTPD, BCPの原料を入れ、蒸着速度を、それぞれ 0.2 ± 0.01 nm/sec, 0.20 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は輸送混合層11として機能する。

30

【0219】

次に、輸送混合層11上に、第2の発光混合層5, 第2のブロック層17, 電子輸送層18, 上部電極8を形成する。作製条件は、実施例9と同様である。次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例1と同様である。

【0220】

本発明の素子の正孔輸送層15, 電子輸送層16の体積低効率は、実施例7同様、低い。そのため、3.5V印加において輝度 1000 cd/m²を達成した。発光スペクトル、並びに寿命は、実施例1の有機発光素子と同等であった。

【0221】

本発明に用いる有機発光素子は開示した構造に限定されるものでなく、実施例2, 3, 5, 7, 8で開示された有機発光素子の構成を用いてもよい。

40

【実施例11】

【0222】

次に、拡散反射層を用いて光干渉効果の影響を低減させた本実施形態について、図11を用いて説明する。19は拡散反射層、20は層間絶縁膜、21は第1の発光層、22は第2の発光層である。

【0223】

ガラス基板1上に凸部形成材料となるメルトフローフォトレジストをスピンコート法により $0.8 \mu\text{m}$ の厚さに塗布する。これを80で30分間プリバークした後、ランダム

50

配置した円形の開口部を有するフォトマスクを、ガラス基板に平行に配置して、露光する。

【0224】

次に、これを現像剤によって現像すると、フォトマスクにより遮光された部分は除去されて、複数の微細な円柱状のレジストからなる凸部が形成される。

【0225】

次に、自然冷却等により凸部を硬化させた後、アルミニウム、銀等の反射率の高い材料からなる金属薄膜を真空蒸着等により形成する。

【0226】

さらに、この金属薄膜を露光、現像といった工程により島状とすることで拡散反射層19を形成する。

10

【0227】

次に、拡散反射層19の上に、JSR社製ポジ型感光性保護膜(PC452)を形成する。この場合、スピコート法で1000rpm/30秒の塗布条件で成膜し、ホットプレート上にガラス基板1を置き、90 / 2分の条件でプレバークし、クリーンオープンで220 / 1時間の条件でポストバークを行った。このPC452膜は層間絶縁膜20として機能する。

【0228】

次に、層間絶縁膜20上に、下部電極2、正孔輸送層3を形成する。形成条件は、実施例1と同様である。

20

【0229】

次に、正孔輸送層3上に、真空蒸着法にて、膜厚20nmのジスチリアリレン誘導体膜(以下、DPVBiと略記)を形成した。Mo製昇華ポートにDPVBiの原料を入れ、蒸着速度を 0.20 ± 0.01 nm/secに制御して蒸着した。この蒸着膜は、第1の発光層21として機能する。

【0230】

次に、第1の発光層21上に、真空蒸着法にて、膜厚40nmのAlq3、及びルプレンを共蒸着した膜を形成する。Mo製昇華ポートにAlq3、ルプレンの原料を入れ、蒸着速度をそれぞれ 0.40 ± 0.05 nm/sec、 0.01 ± 0.005 nm/secに制御して蒸着した。上記共蒸着膜は第2の発光層22として機能する。

30

【0231】

次に、第2の発光層22上に電子輸送層6を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

【0232】

次に、電子輸送層6上に、電子注入層7、及び上部電極8を形成する。作製条件は、実施例2と同様である。

【0233】

次に、封止基板10を用いて有機EL基板9を封止した。封止条件は、実施例1と同様である。

【0234】

本発明の有機発光素子の下部電極2は透明である。そのため、第1の発光層21、第2の発光層22において下部電極方向に向かって発光した光は下部電極を透過し、拡散反射層19で反射する。この反射光は、第1の発光層21、第2の発光層22において上部電極8方向に向かって発光した光と干渉しない。そのため、上部電極8を透過した発光光は、層構成或いは各層膜厚による干渉効果の影響を受けない。その結果、視野角に対する発光スペクトル変化、或いは視野角に対する光強度変化が起こらない。

40

【0235】

本発明の有機素子は、中心波長450nm及び中心波長560nmの発光が重なった白色発光を示した。10V印加において輝度1000cd/m²を達成した。

【0236】

50

本発明の有機発光素子では、第1の発光層21，第2の発光層22からなる2層の発光層になっているが、1層の発光層に適用しても問題ない。

【実施例12】

【0237】

次に、拡散反射層を用いて光干渉効果の影響をなくした、実施例11と異なる実施形態について、図12を用いて説明する。

【0238】

ガラス基板1上に、拡散反射層19，層間絶縁膜20，下部電極2，正孔輸送層3を形成する。作製条件は、実施例11と同様である。

【0239】

次に、正孔輸送層3上に、第1の発光混合層4，第2の発光混合層5，電子輸送層6を形成する。作製条件は、実施例1と同様である。

【0240】

次に、電子輸送層6の上に、電子注入層7，上部電極8を形成する。作製条件は、実施例11と同様である。

【0241】

次に、封止基板10を用いて有機EL基板9を封止した。封止条件は、実施例1と同様である。

【0242】

本発明の有機発光素子は、実施例11の有機発光素子同様、視野角に対する発光スペクトル変化、或いは視野角に対する光強度変化が起こらない。

【0243】

本発明の有機素子は、中心波長480nm及び中心波長560nmの発光が重なった白色発光を示した。9V印加において輝度1000cd/m²を達成した。また、初期輝度1000cd/m²の定電流駆動における寿命は2000時間程度と良好な寿命特性を得た。

【実施例13】

【0244】

次に、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13は有機発光表示装置の画素の平面図、図14(a)は図13のA-A線に沿う断面図、図14(b)は図13のB-B線に沿う断面図、図15は図13のC-C線に沿う断面図である。図13～図15において、ガラス基板116上には、複数の走査線106が一定の間隔で配置されているとともに、各走査線に対して直交する方向に、画像情報を伝送するための信号線109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。さらにガラス基板116上には、電源に接続された複数の第1電流供給線110が信号線109と平行になって配置されている。各走査線106，信号線109，第1電流供給線110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116上に形成されている。

【0245】

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、正孔輸送層，発光層，電子輸送層，電子注入層を含む有機層152と、有機層を挟む下部電極150，上部電極153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150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110に接続され、各画素に属する有機発光素子の上部電極153は、電源に接続された第2電流供給線に接続されている(図示省略)。

【0246】

また、ガラス基板116上には、各画素の有機層を駆動するための駆動層が形成されている。この駆動層は駆動素子としての第1トランジスタ101，第2トランジスタ102

10

20

30

40

50

、容量104を備えて構成されている。第1トランジスタ101のゲートは走査線106に接続され、ソースは信号線109に接続され、ドレインは第2トランジスタのゲートと容量104の上部電極108に接続されている。第2トランジスタ102のドレインは容量104の下部電極105と第1電流供給線110に接続され、ソースは下部電極150に接続されている。

【0247】

次に、上記構成による有機発光表示装置の製造方法について説明する。まず、ガラス基板116上に減圧化学気相成長法(LPCVD法)を用いて、膜厚50nmのアモルファスシリコン(a-Si)膜を形成する。原料は Si_2H_6 であり、基板温度は450に設定されている。次に、XeClエキシマレーザを用いて、膜全面をレーザアニール処理する。このレーザアニール処理は2段階に分けて行い、1回目、2回目の照射エネルギーは、それぞれ $188mJ/cm^2$ 、 $290mJ/cm^2$ であった。これにより、アモルファスシリコンが結晶化され、多結晶シリコン(p-Si)となった。次に、多結晶シリコンを、 CF_4 を用いたドライエッチングでパターン化し、第1トランジスタ101の活性層103、第2トランジスタ102の活性層103、および容量下部電極105を形成する。

10

【0248】

次に、ゲート絶縁膜117として、膜厚100nmの SiO_2 膜を形成する。 SiO_2 膜はテトラエキシラン(TEOS)を原料として、プラズマ増強化学気相成長法(PECVD法)で形成した。

【0249】

次に、ゲート電極107、107として、膜厚50nmのTiW膜をスパッタリング法により作製してパターンニングした。このとき併せて、走査線106および容量上部電極108もパターンニングした。

20

【0250】

次に、イオン注入法により、ゲート絶縁膜117の上部から、パターン化された多結晶シリコン層に 4×10^{15} イオン/ cm^2 、エネルギー80keVのPイオンを注入する。このとき、上部にゲート電極107、107がある領域にはPイオンは注入されず、活性層103、103となる。

【0251】

次に、ガラス基板116を不活性 N_2 雰囲気下で、300、3時間加熱し、イオンを活性化してドーピングが有効に行われるようにする。多結晶シリコン(P-Si)のイオン注入された領域は $2k$ / の面抵抗値となる。その上に、第1層間絶縁膜118として、窒化シリコン($SiNx$)膜を成膜する。この膜厚は200nmである。

30

【0252】

次に、活性層103、103の両端上部のゲート絶縁膜117および第1層間絶縁膜118に、コンタクトホール(図示省略)を形成する。さらに、第2トランジスタ102のゲート電極107上部の第1層間絶縁膜118にコンタクトホール(図示省略)を形成する。

【0253】

その上に、スパッタリング法にて、膜厚500nmのAl膜を形成する。ホトリソグラフィ工程により、信号線109、第1電流供給線110を形成する。また、第1トランジスタ101のソース電極112およびドレイン電極113、第2トランジスタ102のソース電極112およびドレイン電極113を形成する。

40

【0254】

次に、容量下部電極105と第1トランジスタ101のドレイン電極113を接続し、第1トランジスタ101のソース電極112と信号線109を接続する。また第1トランジスタ101のドレイン電極113を第2トランジスタ102のゲート電極107に接続し、第2トランジスタ102のドレイン電極113を第1電流供給線110に接続する。また容量104の上部電極108を第1電流供給線110に接続する。

【0255】

50

次に、第2層間絶縁膜119として、SiNx膜を成膜する。この膜厚は500nmである。第2トランジスタ102のドレイン電極113 上部にコンタクトホール(図示省略)を形成し、その上にスパッタリング法を用いて、厚さ150nmのCr膜を形成し、ホトリソグラフィ法を用いて下部電極150を形成する。

【0256】

次に、第3層間絶縁膜151として、JSR社製ポジ型感光性保護膜(PC452)を形成する。この場合、スピンコート法で1000rpm/30秒の塗布条件で成膜し、ホットプレート上にガラス基板116を置き、90 / 2分の条件でプレバークした。

【0257】

次に、フォトマスクを用いてghi線混合で露光し、ストライプ状にコンタクトホール114を形成する。次いで、JSR社製現像液PD-523を用いて、室温/40秒の条件で現像し、現像後、室温/60秒の条件で純水の流水でリンスする。このリンス後、波長365nmにおいて、300mJ/cm²となる強度でポスト露光し、クリーンオープンで220 / 1時間の条件でポストバークを行った。

【0258】

PC452で形成された第3層間絶縁膜151の膜厚2μmである。第3層間絶縁膜151で、下部電極150端から3μm内側の部分まで覆った。ドレイン電極113 と下部電極150を接続したコンタクトホール部も覆った。下部電極150と後述する上部電極153が短絡する事を防止するためである。

【0259】

次に、画素となる有機発光素子の構造を図14にしたがって説明する。下部電極150まで形成したガラス基板116を、アセトン、純水の順にそれぞれ超音波洗浄を3分間行い、超音波洗浄後、スピン乾燥させたあと、120 のオープンで30分間乾燥させる。

【0260】

次に、O₂ プラズマクリーニングを行う。プラズマクリーニング室の真空度は3Pa、O₂ の流入量は22ml/分、RFパワーは200W、クリーニング時間は3分である。O₂プラズマクリーニング後、ガラス基板116を大気に曝すことなく、真空蒸着チャンバにセットする。

【0261】

次に、下部電極150上に、実施例1の作製条件に従い、正孔輸送層、第1の発光混合層、第2の発光混合層、電子輸送層からなる、有機層152を形成する。

【0262】

次に、有機層152の上に、電子注入層としてMgとAgの混合膜を形成する。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0.14±0.05nm/s、0.01±0.005nm/sに設定し、膜厚10nmの膜を蒸着した。

【0263】

次に、スパッタリング法により、膜厚50nmのIn-Zn-O膜(以下、IZO膜と称する。)を形成する。この膜は第2電極125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/In-Zn-O積層膜は、上部電極153として機能し、その透過率は65%であった。

【0264】

以上の工程より、TFT基板154が完成する。

【0265】

次に、対向基板161の作製方法について説明する。ガラス基板上に、スパッタリング法にて、膜厚150nmのCr膜を形成する。ホトリソグラフィ工程により、パターン化する。TFT基板154と重ね合せた時、各サブ画素における下部電極150の第3層間絶縁膜151で覆われていない開口部より位置合せ精度分大きい領域の真上に対応する領域のCr膜を除去した格子状のパターンである。同膜は、ブラックマトリクス層(以下、

10

20

30

40

50

B M層と称す。) 1 6 2として機能する。

【0 2 6 6】

次に、B M層 1 6 2を形成したガラス基板上に、スピコート法により、膜厚 1.5 μmの銅フタロシアニン等の青色顔料を分散させたポリイミド膜を形成する。ホトリソグラフィ工程により、青色着色層 1 6 3 cを形成する。同様の工程を2回繰り返し、緑色着色層 1 6 3 b, 赤色着色層 1 6 3 aを形成する。

【0 2 6 7】

次に、スピコート法により、膜厚 2 μmのアクリル樹脂を形成する。次に、熱CVD法により、膜厚 150 nmのSiNx膜を形成する。この積層膜は、保護層 1 6 4として機能する。

10

【0 2 6 8】

次に、画素として有機発光素子を形成したTFT基板 1 5 4とカラーフィルタを形成した対向基板 1 6 1を貼り付ける方法について説明する。

【0 2 6 9】

以上の工程より、カラーフィルタを用いて色変換を行う対向基板 1 6 1が完成する。

【0 2 7 0】

実施例1同様、TFT基板 1 5 4, 対向基板 1 6 1を、露点を -90 以下に保った封止室に移動させる。次に、実施例1の条件で、対向基板のエッジ部分にシールを塗布する。次に、TFT基板 1 5 4と対向基板 1 6 1に形成したアライメントマークを用いてTFT基板のサブ画素上に着色層が重なるよう合わせる。それから、TFT基板 1 5 4と対向基板 1 6 1を圧着させた状態で、シール剤 1 6 6を光硬化させる。条件は、実施例1と同様である。

20

【0 2 7 1】

電源により、第1電流供給線, 第2トランジスタのソース-ドレイン, サブ画素となる有機発光素子, 第2電流供給線の間、15Vの電圧が印加されている。信号線により第1トランジスタを經由して容量に蓄積された電荷により第2トランジスタのゲート電圧の電圧レベルが決定され、ソース-ドレイン間の印加電圧が決定する。その結果として、有機発光素子への印加電圧が決定する。サブ画素を構成する有機発光素子は白色発光し、上方にある色変換層で青色, 緑色、或いは赤色に変換させる。

【0 2 7 2】

以上より、2層の発光混合層積層型を用いた白色有機発光素子を用いて、各サブ画素でカラーフィルタにより白色から青色, 緑色, 赤色に色変換をするカラー発光表示装置の構成方法、及び作製方法を開示した。本発明に用いる有機発光素子は、開示した2層発光混合層積層型に限定されるものでなく、実施例2~12で開示された有機発光素子の構成を用いてもよい。

30

【実施例14】

【0 2 7 3】

次に、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16は図13のC-C線に沿う断面図である。

【0 2 7 4】

本実施形態は、白色有機発光素子で発光した白色光を赤色及び緑色のサブ画素で色変換する部分に色変換層 1 6 7 a, 1 6 7 bを用いたものであり、他の構成は実施例13とほぼ同様である(青色のサブ画素では、実施例13同様、カラーフィルタを用いている。)

40

【0 2 7 5】

具体的には、ガラス基板 1 1 6上に、第1トランジスタ 1 0 1, 容量 1 0 4, 第2トランジスタ 1 0 2, 信号線 1 0 9, 1 0 9, 1 0 9, 走査線 1 0 6, 1 0 6, 第1電流供給線 1 1 0, 1 1 0, 1 1 0, 第1層間絶縁膜 1 1 8, 第2層間絶縁膜 1 1 9, 下部電極 1 5 0, 第3層間絶縁膜 1 5 1, 有機層 1 5 2および上部電極 1 5 3が形成されており、これらの作製条件は実施例13と同様である。

【0 2 7 6】

50

次に、対向基板 161 の作製方法について説明する。ガラス基板上に、BM層 162、着色層 163 を作製する。作製条件は、実施例 13 と同様である。

【0277】

次に、BM層 162 を形成したガラス基板上に、スピコート法により、膜厚 5 μm のクマリン 6 を分散させたポリ塩化ビニル樹脂膜を形成する。ホトリソグラフィ工程により、緑色色変換層 167b を形成する。同様の工程で、膜厚 5 μm のローダミン 6G を分散させたポリ塩化ビニル樹脂からなる、赤色色変換層 167a を形成する。

【0278】

次に、スピコート法により、膜厚 10 μm のアクリル樹脂を形成する。同膜は平坦化膜として機能する。次に、熱 CVD 法により、膜厚 150 nm の SiNx 膜を形成する。この積層膜は、保護層 164 として機能する。

10

【0279】

次に、TFT 基板 154 と色変換層を形成した対向基板 161 を貼り付ける。作製条件は、実施例 13 と同様である。

【0280】

信号線のデータ信号により、各サブ画素の輝度を決定する駆動方法並びに各サブ画素での発光は、実施例 13 と同様である。

【0281】

以上より、2種類の発光混合層を用いた白色有機発光素子を画素に用いて、各サブ画素でカラーフィルタを用いて白色から青色、緑色、赤色に色変換を行いサブ画素として用いるカラー発光表示装置の構成方法、及び作製方法を開示した。本発明に用いる有機発光素子は、開示した構成に限定されるものでなく、実施例 2 ~ 10 で開示した有機発光素子の構成を用いてもよい。

20

【実施例 15】

【0282】

次に、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 17 は図 13 の C-C 線に沿う断面図である。

【0283】

本実施形態は、白色有機発光素子で発光した白色光を下部電極で反射する代わりに、下部電極下側の拡散反射部 168 を用いて反射させたものであり、他の構成は実施例 13 とほぼ同様である。

30

【0284】

具体的には、ガラス基板 116 上に、第 1 トランジスタ 101 の活性層 103、第 2 トランジスタ 102 の活性層 103、容量下部電極 105、ゲート絶縁膜 117、ゲート電極 107、107、走査線 106、容量上部電極 108、第 1 層間絶縁膜 118、第 1 層間絶縁膜 118 のコンタクトホール（図示省略）、ゲート電極 107 上部の第 1 層間絶縁膜 118 へのコンタクトホール（図示省略）が形成されており、これらの作製方法は実施例 13 と同様である。

【0285】

次に、第 1 層間絶縁膜 118 上に、複数のランダム配置の微細な円柱状のレジストからなる凸部を形成する。形成条件は、実施例 11 と同様である。凸部を形成する位置は、下部電極 150 真下の領域となる。

40

【0286】

その上に、スパッタリング法にて、膜厚 500 nm の Al 膜を形成する。ホトリソグラフィ工程により、信号線 109、第 1 電流供給線 110 を形成する。また、第 1 トランジスタ 101 のソース電極 112 およびドレイン電極 113、第 2 トランジスタ 102 のソース電極 112 およびドレイン電極 113 を形成する。

【0287】

また、上記凸部にも Al 膜が形成され、ホトリソグラフィ工程により、島状とし、拡散反射部 168 を形成する。

50

【0288】

次に、第2層間絶縁膜119として、JSR社製ポジ型感光性保護膜(PC452)を形成する。この場合、スピンコート法で1000rpm/30秒の塗布条件で成膜し、ホットプレート上に基板を置き、90 / 2分の条件でプレバークした。

【0289】

次に、フォトマスクを用いてghi線混合で露光し、第2トランジスタ102のドレイン電極113 上部にコンタクトホール(図示省略)を形成する。次いで、JSR社製現像液PD-523を用いて、室温/40秒の条件で現像し、現像後、室温/60秒の条件で純水の流水でリンスする。このリンス後、波長365nmにおいて、300mJ/cm²となる強度でポスト露光し、クリーンオープンで220 / 1時間の条件でポストバークを行った。

10

【0290】

その上にスパッタリング法を用いて、厚さ150nmのITO膜を形成し、ホトリソグラフィ法を用いて下部電極150を形成する。

【0291】

次に、第3層間絶縁膜151として、SiNx膜を成膜する。この膜厚は300nmである。下部電極150のエッジを3μm覆った。

【0292】

その上に、有機層152および上部電極153を形成する。これらの形成方法は実施例13と同様である。

20

【0293】

対向基板161の作製条件、並びに、TFT基板と対向基板161の封止方法は、実施例13と同様である。

【0294】

信号線のデータ信号により、各サブ画素の輝度を決定する駆動方法並びに各サブ画素での発光は、実施例13と同様である。

【0295】

本発明の有機発光画像表示装置では、サブ画素部を構成する有機発光素子の発光混合層で発光した光の一部は、上部電極を透過して射出する(経路A)。残りの光は、透明導電膜で形成された下部電極を透過して、拡散反射部で反射され上部電極を透過して射出する(経路B)。

30

【0296】

経路Aと経路Bの光は光干渉効果を起こさないため、有機発光素子の層構成を素子特性向上のみに適用できる利点を有する。

【0297】

以上より、2種類の発光混合層を用いた白色有機発光素子を画素に用いて、各サブ画素でカラーフィルタを用いて白色から青色、緑色、赤色に色変換を行いサブ画素として用いるカラー発光表示装置の構成方法、及び作製方法を開示した。本発明に用いる有機発光素子は、開示した構成に限定されるものでなく、実施例2~8で開示した有機発光素子の構成を用いてもよい。

40

【実施例16】

【0298】

次に、本発明による有機発光素子を照明装置として用いる液晶画像表示装置の実施形態を図面に基づいて説明する。図18は液晶画像表示装置の断面図である。また、図19は液晶画像表示装置の画素の平面図である。また、図20は図19中A-Aの部分の断面図である。

【0299】

始めに、液晶表示部200の構成について説明する。ガラス基板201の上にA1からなる共通電極202及び走査信号電極203が形成され、更にその表面はアルミナ膜204で被覆されている。また、それらの電極の上にSiNからなるゲート絶縁膜205が形成

50

され、更にその上に非晶質Si(a-Si)膜206, n型a-Si膜207, Al/Crからなる映像信号電極208及び画素電極209からなるTFT(Thin Film Transistor)が形成されている。また、更にその上層には、SiNからなる保護膜230が形成され、更にその上層には配向膜231が形成されている。画素は映像信号電極228と共通電極222及び画素電極229によって4つの領域に分割されている。また、画素電極229は共通電極222と一部重なり合い、保持容量を形成している。この基板に対向するカラーフィルタ側基板は、対向ガラス基板251上にブラックマトリクス層252が形成され、その上にカラーフィルタ層253が形成されている。さらにその上にはカラーフィルタ用保護層254が形成されている。さらにその上層には配向膜255が形成されている。上下の配向膜の間には液晶層256がある。また、ガラス基板201及び対向ガラス基板251の表面に偏光板216が配置されている。

10

【0300】

次に、偏光板216の透過軸方向は一方の基板側が液晶長軸方向と平行になるようにし、もう一方の基板に配置された偏光板の透過軸方向が液晶長軸方向と直角になるようにした。このような配置にすることにより、いわゆるノーマリクローズの特性が得られる。

【0301】

次に、液晶表示部200の真下に、有機発光素子からなる照明装置300が設けられている。ガラス基板1上に、正孔輸送層3, 第1の発光混合層4, 輸送混合層11, 第2の発光混合層5, 電子輸送層6, 電子注入層7, 上部電極8を形成する。作製条件は、実施例2と同様である。

20

【0302】

次に、有機EL基板9と封止基板10を封止する。封止条件は、実施例2と同様である。封止基板9上に、光拡散シート301を貼り付けて照明装置300が完成する。

【0303】

照明装置300となる有機発光素子で発光した白色光は液晶表示部200に入射する。映像信号がOFFの時、偏光板216のため、入射した白色光は液晶表示部200でカットされて黒表示となる。映像信号がONの時、画素電極と共通電極の間に電圧が印加され、その結果、液晶の配列が変化し、液晶表示部を白色光が透過して、白表示となる。透過白色光は、カラーフィルタ層253により、所定の色に変換される。

【0304】

30

本実施例では、横電界方式を表示方式としているが、表示方式はこれに限定されるものではない。ツイステッドネマティック方式やMultidomain Vertical Alignment(MVA)方式, Optically Compensated bend cell(OCB)などを用いても同様な表示が可能である。

【産業上の利用可能性】

【0305】

正孔輸送性材料, 電子輸送性材料, ドーパントを混合した発光混合層を2層用いる事により、発光混合層の構成材料の分解が低減でき、信頼性の高い白色OLEDの提供が可能となり、表示装置, 表示装置の照明装置、及び照明装置に適用可能となる。

【図面の簡単な説明】

40

【0306】

【図1】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例1)

【図2】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例2)

【図3】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例3)

【図4】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例4)

【図5】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例5)

【図6】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例6)

【図7】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例7)

【図8】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例8)

【図9】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例9)

50

- 【図10】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例10)
 【図11】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例11)
 【図12】有機発光素子の実施方法を示した説明図である。(実施例12)
 【図13】有機発光画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例13)
 【図14】有機発光画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例13)
 【図15】有機発光画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例13)
 【図16】有機発光画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例14)
 【図17】有機発光画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例15)
 【図18】液晶画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例16)
 【図19】液晶画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例16)
 【図20】液晶画像表示装置の実施方法を示した説明図である。(実施例16)

10

【符号の説明】

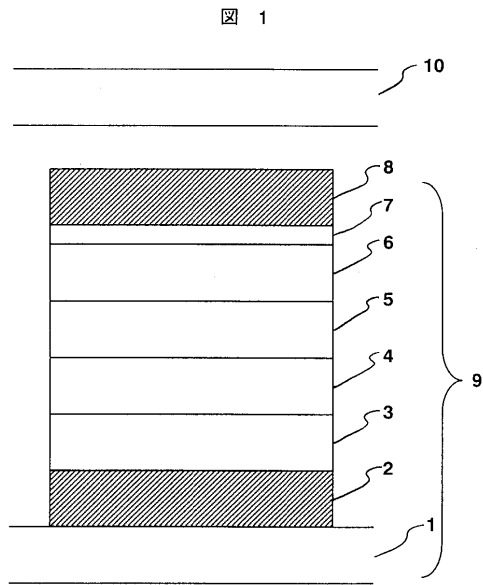
【0307】

1, 116, 201...ガラス基板、2, 150...下部電極、3, 15...正孔輸送層、4...第1の発光混合層、5...第2の発光混合層、6, 18...電子輸送層、7...電子注入層、8...上部電極、9...有機EL基板、10...封止基板、11...輸送混合層、12...第1の輸送混合層、13...第2の輸送混合層、14...第3の発光混合層、16...第1のブロック層、17...第2のブロック層、19...拡散反射層、20...層間絶縁層、21...第1の発光層、22...第2の発光層、101...第1トランジスタ、102...第2トランジスタ、103...第1トランジスタ101の活性層、103...第2トランジスタ102の活性層、104...容量、105...容量下部電極、106...走査線、107, 107...ゲート電極、108...容量上部電極、109...信号線、110...第1電流供給線、112...第1トランジスタ101のソース電極、112...第2トランジスタ102のソース電極、113...第1トランジスタ101のドレイン電極、113...第2トランジスタ102のドレイン電極、117, 205...ゲート絶縁膜、118...第1層間絶縁膜、119...第2層間絶縁膜、151...第3層間絶縁膜、152...有機層、153...上部電極、154...TFE基板、161...対向基板、162, 252...ブラックマトリクス層(BM層)、163a...赤色着色層、163b...緑色着色層、163c...青色着色層、164...保護層、165...不活性ガス雰囲気、166...シール剤、167a...赤色色変換層、167b...緑色色変換層、168...拡散反射部、202...共通電極、203...走査信号電極、204...アルミナ膜、206...非晶質Si膜、207...n型a-Si膜、208...映像信号電極、209...画素電極、210...保護膜、211, 255...配向膜、251...対向ガラス基板、253...カラーフィルタ層、254...カラーフィルタ用保護層、256...液晶層、300...照明装置、301...光拡散シート。

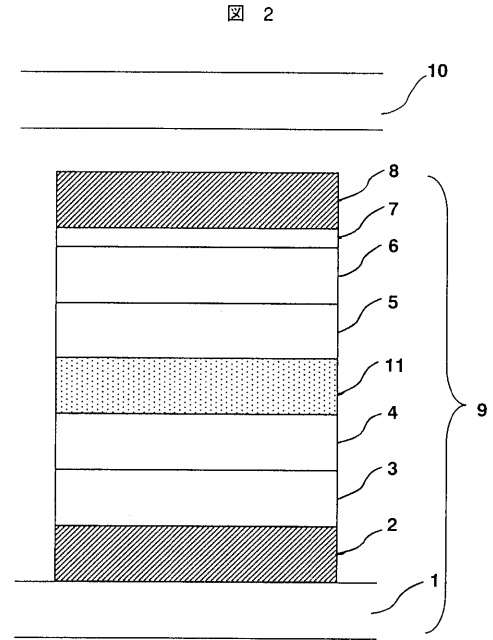
20

30

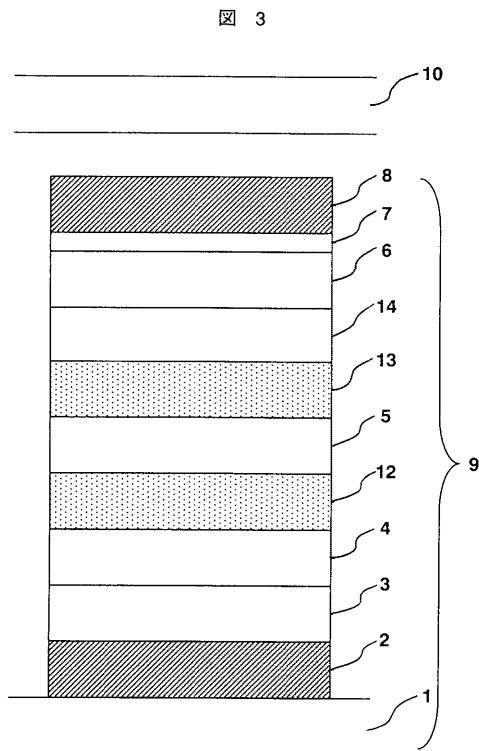
【図 1】



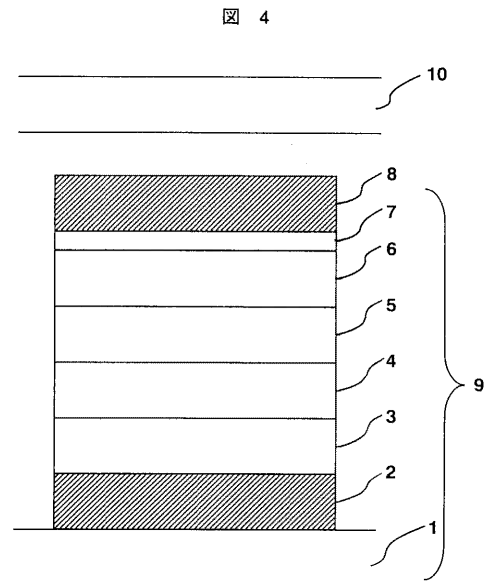
【図 2】



【図 3】

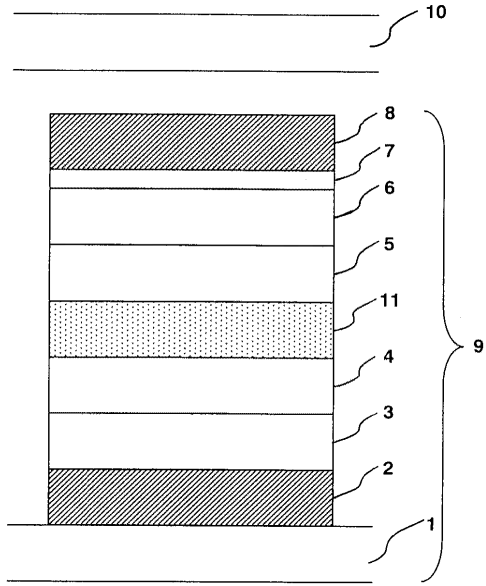


【図 4】



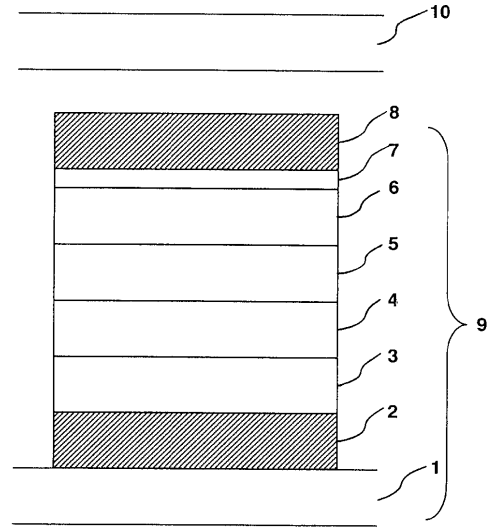
【図 5】

図 5



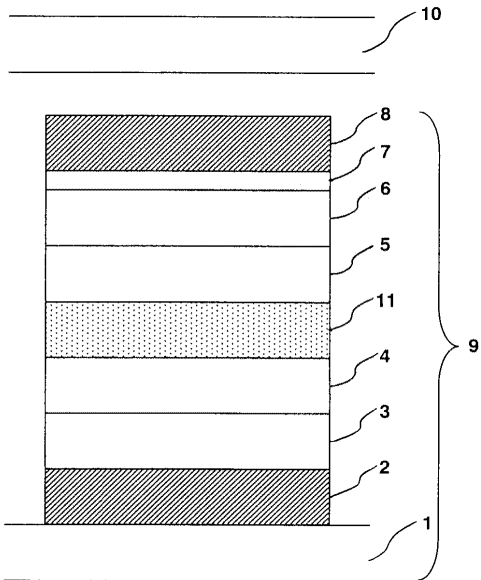
【図 6】

図 6



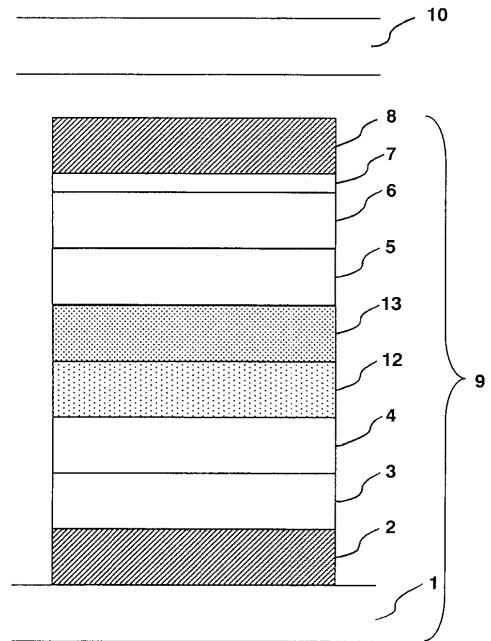
【図 7】

図 7



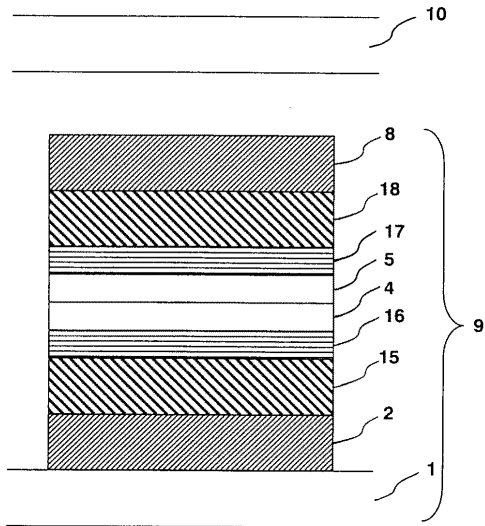
【図 8】

図 8



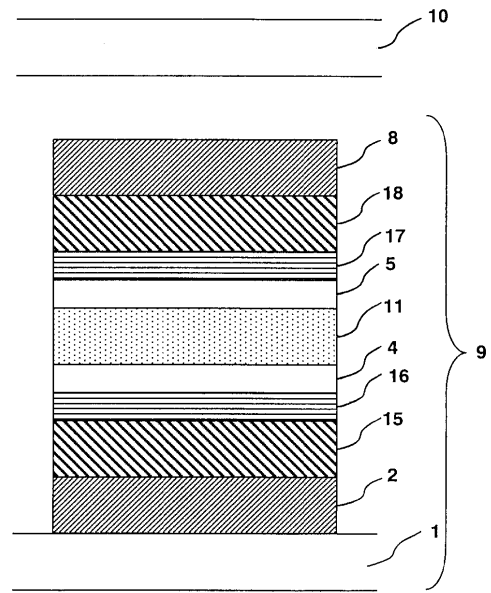
【図 9】

図 9



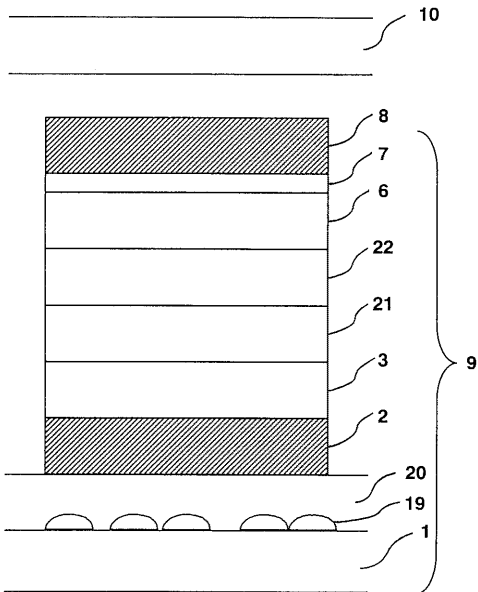
【図 10】

図 10



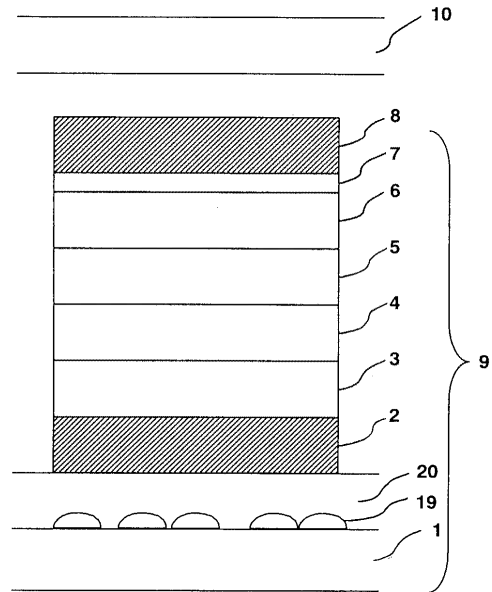
【図 11】

図 11

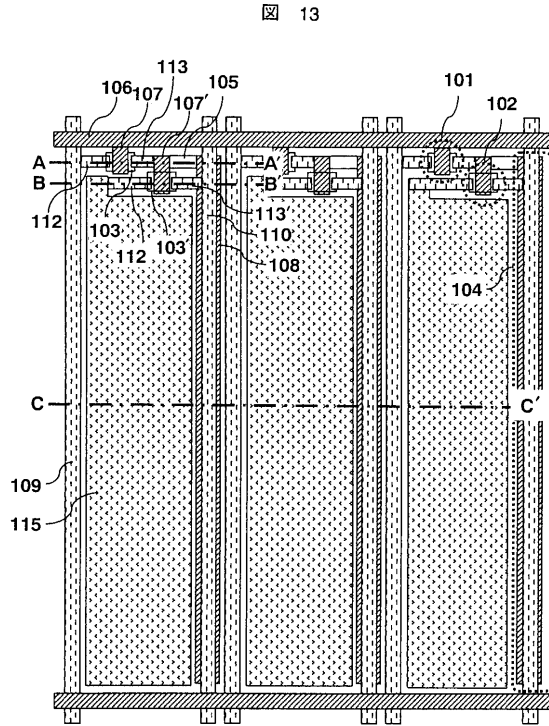


【図 12】

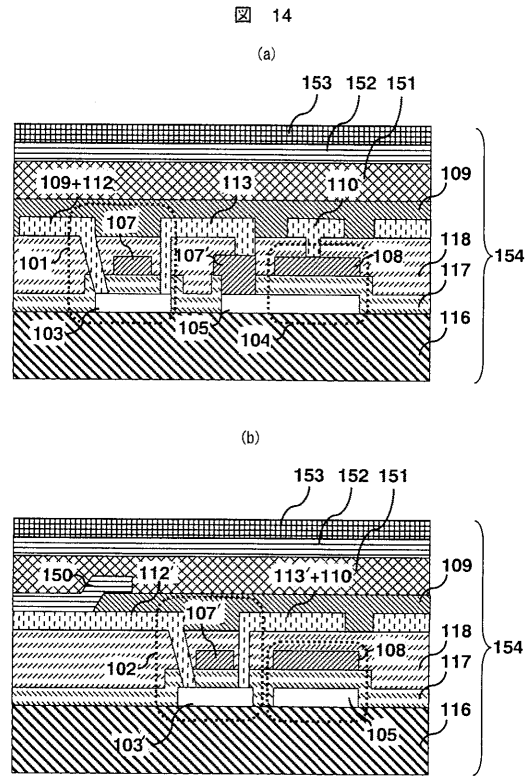
図 12



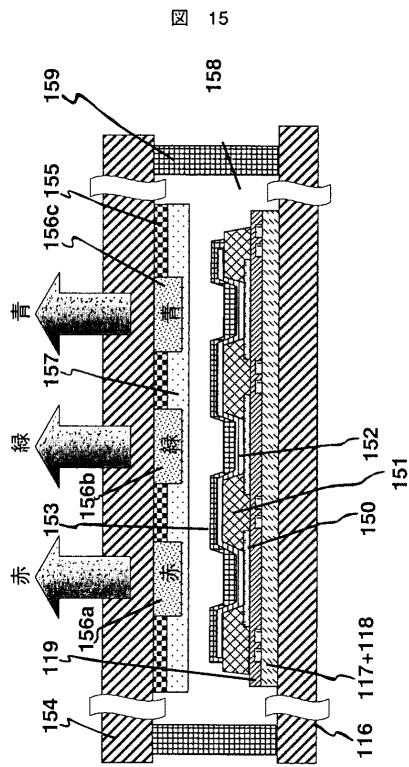
【図13】



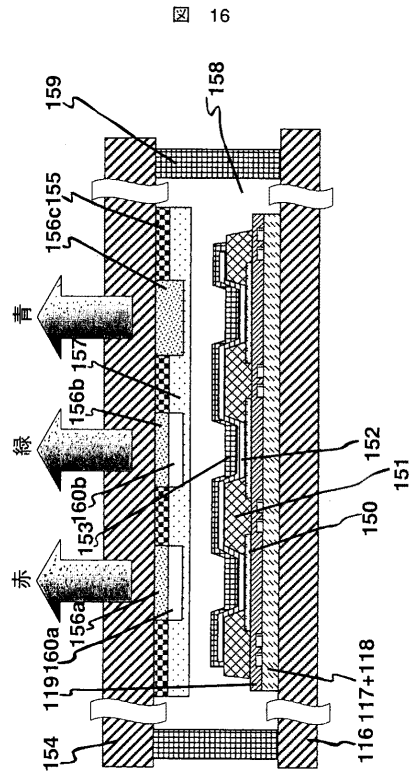
【図14】



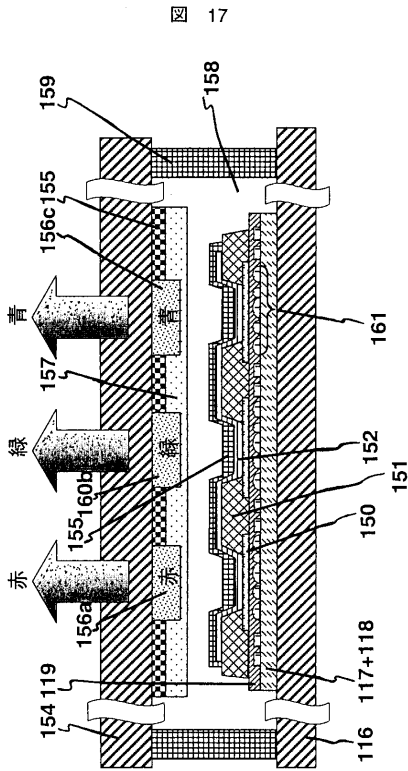
【図15】



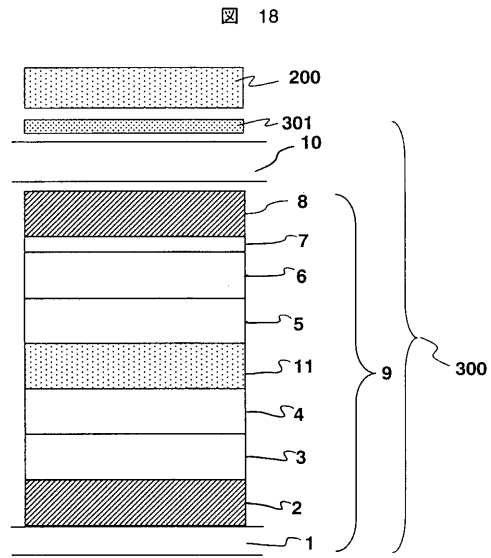
【図16】



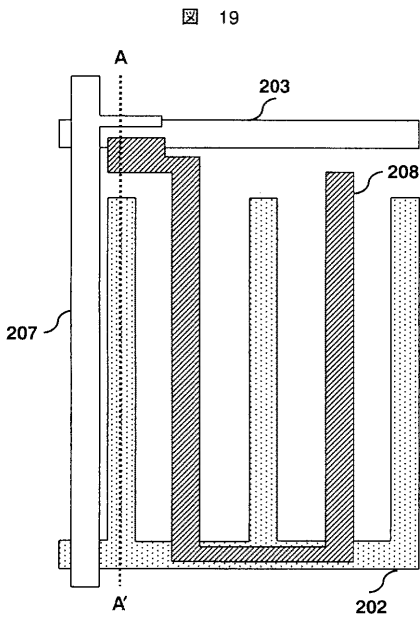
【図 17】



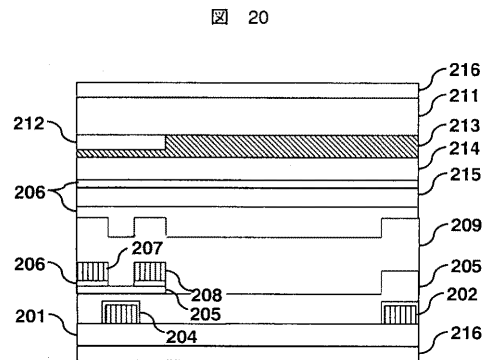
【図 18】



【図 19】



【図 20】



フロントページの続き

- (72)発明者 足立 昌哉
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 大内 貴之
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 井亀 諭

- (56)参考文献 特開2003-007467(JP,A)
特開2001-052870(JP,A)
特開2002-198183(JP,A)
特開2004-022438(JP,A)
特開2001-313180(JP,A)
特開2001-338761(JP,A)
国際公開第03/083958(WO,A1)
特開2002-175879(JP,A)
特開2004-311231(JP,A)
国際公開第98/8360(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 51/50 - 51/56
H01L 27/32