

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2007年7月5日 (05.07.2007)

PCT

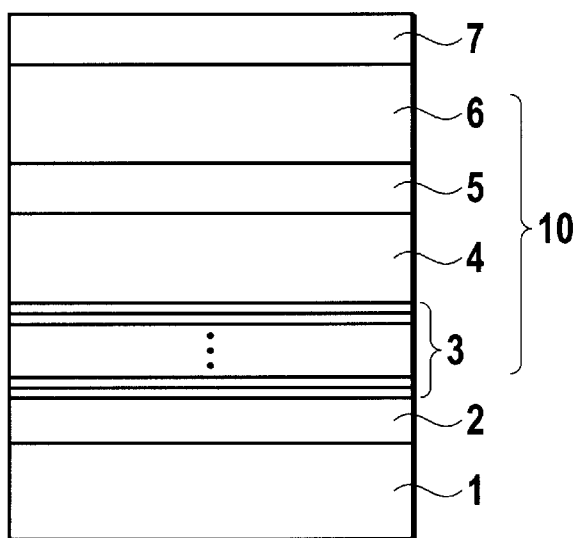
(10) 国際公開番号
WO 2007/074879 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/326115
- (22) 国際出願日: 2006年12月27日 (27.12.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2005-377761
2005年12月28日 (28.12.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ローム株式会社 (ROHM CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6158585 京都府京都市右京区西院溝崎町2番地 Kyoto (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 木下 敏幸 (KINOSHITA, Toshiyuki) [JP/JP]; 〒6158585 京都府京都市右京区西院溝崎町2番地 ローム株式会社内 Kyoto (JP).
- (74) 代理人: 三好 秀和, 外 (MIYOSHI, Hidekazu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目2番8号 虎ノ門 琴平タワー Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC EL ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機EL素子



A LIGHT

(57) Abstract: Provided is an organic EL element wherein generation of unevenness of an organic layer in crystal growing is eliminated and dark spots are prevented from being generated. On a glass substrate (1), a positive electrode (2), a hole injection layer (3), a hole transport layer (4), a light emitting layer (5), an electron transport layer (6) and a negative electrode (7) are stacked. The hole injection layer (3) has a stacked structure of a first organic material layer composed of a material to be originally used for the hole injection layer (3) and a second organic material layer composed of a material exhibiting planarity higher than that of the first organic material layer when formed as film. The final planarity of a film of the hole injection layer (3) is improved by alternately stacking a suitable number of the first organic material layers and the second organic material layers.

(57) 要約: 有機層に発生する結晶成長の凹凸をなくし、ダークスポットの発生を防止した有機EL素子を提供する。ガラス基板1上に正電極2、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、負電極7が積層されている。正孔注入層3は、本来、正孔注入層3に用いられるべき材料で構成された第1有機材料層と、第1有機材料層よりも成膜時の平坦性の良い材料で構成された第2有機材料層との積層構造により形成されている。第1有機材料層と第2有機材料層とが交互に適切な数だけ積層されることで、最終的な正孔注入層3の膜の平坦性が向上する。

WO 2007/074879 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各*PCT*ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

有機EL素子

技術分野

[0001] 本発明は、膜質を改善し、ダークスポットの発生を抑えた有機EL素子に関する。

背景技術

[0002] 従来、有機EL素子(有機エレクトロルミネセンス素子)は、発光層を挟むように電子や正孔のキャリアを発光層に注入しやすくするための有機層が設けられ、さらにその外側に電極が形成されている。

[0003] 図6は、有機EL素子構造の一例を示すもので、ガラス基板21上に、正電極22、正孔注入層23、正孔輸送層24、発光層25、電子輸送層26、負電極27が順に形成されている。正電極22は、透明電極で構成されており、発光層25で発生した光は図6の矢印方向に取り出される。

[0004] 電子輸送層26は、電子を円滑に発光層25に移動させ、発光層25に入った正孔が電子輸送層26に移動してくることを阻止するために用いられる。逆に、正孔輸送層24は、正孔を円滑に発光層25に移動させ、発光層25に入った電子が正孔輸送層24に移動してくることを阻止するために用いられる。

[0005] また、正孔注入層23は、正電極22との電位障壁を大きくして正孔を発光層25側へ注入しやすくするために設けられており、正孔注入層23に用いる材料としては、CuPc(銅フタロシアニン)が良く知られている(例えば、特許文献1参照)。図6に示された有機EL素子の各層は、真空蒸着法によって形成される。

特許文献1:特許第3728309号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記従来の有機EL素子では、有機層の成膜には、有機材料の成膜条件に依存する部分があるものの、本来成膜性の悪い有機材料があるために、真空蒸着法で成膜すると、凹凸が発生するものがある。例えば、上述した正孔注入層の材料であるCuPc(銅フタロシアニン)は、真空蒸着法で成膜すると凹凸が発生し、平坦な膜になら

ないことが知られている。

[0007] この状態を模式的に描いたのが、図7である。正電極22上に正孔注入層23が蒸着により成長していくが、成膜時の平坦性が悪いために、図のような先の尖った円錐形状の結晶が並ぶ形となって、平坦な膜とはならない。

[0008] そして、このような状態で結晶成長を続けていくと、正孔注入層23の上に形成される各有機層の結晶の平坦性にも影響を及ぼすだけでなく、完成した素子に電圧を印加した場合、図のような円錐形状の結晶の先端部分に電荷集中が発生し、先端部分が焼けて黒くなり、これがダークスポットとなって出現していた。これらのダークスポットは、1辺が50 μ mの正方形領域において、直径1 μ m程度の斑点となって30～50個の割合で発生していた。

[0009] 本発明は、上述した課題を解決するために創案されたものであり、有機層に発生する結晶成長の凹凸をなくし、ダークスポットの発生を防止した有機EL素子を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0010] 上記目的を達成するために、請求項1記載の発明は、発光層を含む有機層を備えた有機EL素子において、前記有機層の一部が第1有機材料層の上に第2有機材料層が形成されるように交互に積層された多層膜構造で構成され、前記第2有機材料層は、成膜時の平坦性が前記第1有機材料層よりも良い有機材料で構成されていることを特徴とする有機EL素子である。

[0011] また、請求項2記載の発明は、前記第2有機材料層の膜厚は、前記第1有機材料層の膜厚よりも小さいことを特徴とする請求項1記載の有機EL素子である。

[0012] また、請求項3記載の発明は、前記第1有機材料層と第2有機材料層とで正孔注入層を形成していることを特徴とする請求項1又は請求項2のいずれか1項に記載の有機EL素子である。

[0013] また、請求項4記載の発明は、前記第1有機材料層はCuPc又はTiOPcのいずれかで構成され、前記第2有機材料層はTPD又はNPDのいずれかで構成されていること特徴とする請求項3記載の有機EL素子である。

[0014] また、請求項5記載の発明は、前記第1有機材料層の成膜時の凹凸の段差が50 Å

以下で形成されていることを特徴とする請求項4記載の有機EL素子である。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、有機層の一部を多層膜構造とし、有機材料で形成する最初の第1有機材料層と第1有機材料層上に異なる有機材料で形成する第2有機材料層とを積層し、第1有機材料層よりも第2有機材料層の方が成膜時の平坦性が良く、また、膜厚を小さく形成するようにしているので、成長した結晶の平坦性を保持することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]図1は、本発明の有機EL素子の断面構造を示す図である。

[図2]図2は、図1の有機EL素子の正孔注入層付近の断面構造を示す拡大図である。

[図3]図3は、多層膜構造により膜質が改善される作用を示す模式図である。

[図4]図4は、多層膜構造を有する正孔注入層の一成膜過程を示す模式図である。

[図5]図5は、多層膜構造を有する正孔注入層の一成膜過程を示す模式図である。

[図6]図6は、従来の有機EL素子の断面構造を示す図である。

[図7]図7は、平坦な結晶が形成されない状態を模式的に示す図である。

符号の説明

- [0017] 1 ガラス基板
2 正電極
3 正孔注入層
4 正孔輸送層
5 発光層
6 電子輸送層
7 負電極
31 正孔注入材料層
32 有機材料層

発明を実施するための最良の形態

- [0018] 以下、図面を参照して本発明の一実施形態を説明する。図1は本発明による有機EL素子の断面構造を示す。
- [0019] ガラス基板1上に正電極2、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、負電極7が積層されている。正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6は、有機材料によって形成されており、有機層10を構成する。
- [0020] 発光層5は例えば発光材料(ホスト材料)に蛍光色素をドーピングする等により可視光領域(400nm〜750nm)において特定の色を発光するように構成されている。例えば、青色を発光させるためには、発光層5としてDPVBiに、BCzVBiをドープした発光材料等を用いられ、また、緑色を発光させるためには、発光層5としてアルミニウム錯体に、クマリンC545Tまたはキナクリドンをドープした発光材料等が用いられる。
- [0021] 電子輸送層6にはアルミニウム錯体やオキサジアゾール類等が用いられ、負電極7は、アルミニウム等の金属で構成される。正孔輸送層4はナフテル・フェニル・ベンチジン(NPB)、TPD(トリフェルアミン誘導体)やNPD等により構成される。正孔注入層4はフタロシアニン類等で構成される。
- [0022] また、正電極2は、図の矢印方向に光を取り出す場合には、ITO等の透明電極で構成される。さらに、必要であれば、電子輸送層6と負電極7との間に電子注入層を挿入することもできる。
- [0023] 正孔注入層3は、図1に示すように多層膜構造となっている。正孔注入層3部分の拡大図を図2に示す。正孔注入層3は、正電極2側から、まず第1有機材料層として正孔注入材料層31が積層され、この正孔注入材料層31の上に第2有機材料層として有機材料層32が積層されており、この正孔注入材料層31と有機材料層32が交互に繰り返して積層されている。正孔注入層3の最後の層、すなわち正孔注入層3が正孔輸送層4と接する有機層は、有機材料層32で終わっている。
- [0024] 正孔注入材料層31(第1有機材料層)は、本来、正孔注入層3に用いられるべき材料で構成されており、例えばCuPc(銅フタロシアニン)やTiOPc(チタニルフタロシアニン)が用いられ、一方、有機材料層32(第2有機材料層)には、正孔注入材料層31よりも成膜時の平坦性の良い材料、例えば、正孔輸送層材料としても有効なTPD(トリフェルアミン誘導体)やNPDが用いられる。

- [0025] 以上のような正孔注入層3が構成されるが、正孔注入材料層31と有機材料層32との積層構造を薄くしすぎると膜の平坦性の改善が望めず、あまり積層しすぎて正孔注入層3の厚さを厚くしてしまうと、駆動電圧が高くなるので、有機材料層32は3～20層が望ましく、有機材料層32を6層形成するのが最も好ましい。有機材料層32の膜厚は、10～300 Åとすることが望ましい。成膜時の平坦性に優れている材料を用いると10 Åの膜厚でも問題がない。
- [0026] 上記のような構成の有機EL素子は、ガラス基板1上の正電極2をパターンニング、エッチング、絶縁膜形成等の前処理を経て、真空蒸着装置で、正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、負電極7を順に成膜するという既知の工程により製造される。
- [0027] このとき、正孔注入層3については、図3に示すように成膜する。まず、正孔注入材料層31を正電極2の上に蒸着していくが、図のように、成膜性が悪く、平坦な結晶とならずに、凹凸が生じる。これをそのまま結晶成長させていくと、図の破線のように、円錐形状の結晶となって、ダークスポットの原因となるので、凹凸の段差 h が所定の高さになったところで、正孔注入材料層31の蒸着を停止して、次の有機材料層32の蒸着を行うようにする。そしてこの過程を繰り返すことにより、最終的に平坦な膜を得るようにするものである。 h は50 Å以下になるように正孔注入材料層31の蒸着を停止することが望ましい。
- [0028] 図4、5は、正孔注入層3の形成過程を示す。上述したように、正孔注入材料層31の凹凸の段差が所定の高さ h に達すると蒸着を停止して、有機材料層32の蒸着を開始する。有機材料層32の蒸着は、有機材料層32の膜厚が正孔注入材料層31の膜厚よりも小さくなるように形成する。
- [0029] 図4に示すように、正孔注入材料層31の膜厚を A 、有機材料層32の膜厚を B とすると、 $A > B$ の関係を維持しながら、積層構造が形成される。なお、図3、4ともに、模式的に描いているので、正孔注入材料層31の凹凸の段差 h と膜厚 A が同じ大きさのように見えるが、実際の正孔注入材料層31の結晶成長においては、下地となる層（例えば正電極2）から完全に円錐形状に分離されるのではなく、下地層から所定の高さの底部までは、結晶が繋がった状態で成長するので、 $A > h$ となる。

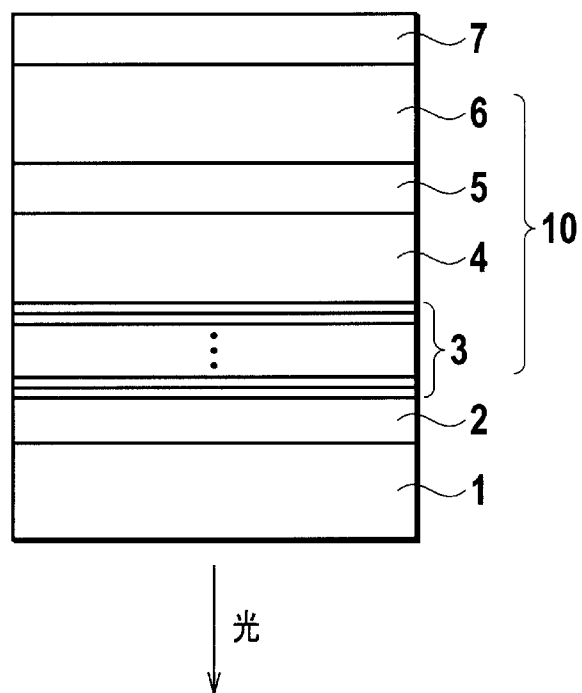
- [0030] 上記のように積層すると、図4に示すように、有機材料層32の結晶表面は、正孔注入材料層31の凹凸が伝播せずに、かなり平坦なものとなる。例えば、正孔注入材料層31にCuPcを用い、有機材料層32にNPDを用いた場合、正孔注入材料層31は350 Å (膜厚A)、有機材料層32は40 Å (膜厚B)の膜厚で構成される。
- [0031] 次に、第1層目の有機材料層32の上に、再び正孔注入材料層31の蒸着を行い、図4と同様、凹凸の段差がhに達したところで、正孔注入材料層31の蒸着を停止して、第2層目の正孔注入材料層31の上に、第2層目の有機材料層32を膜厚Bの厚さで蒸着するようにする。このときも、膜厚A > 膜厚Bになるように成膜される。このようにして、第2層目の正孔注入材料層31の凹凸が次の層に伝播しないようにする。
- [0032] 以上の工程を、所定の多層膜構造になるまで繰り返して行い、最終的に正孔注入層3が形成される。
- [0033] 上記のように、成膜時の平坦性の悪い有機材料の結晶成長を厚みの小さいところで中断させ、その上に成膜時の平坦性の良い有機材料を成長させて、凹凸を平坦化させ、この繰り返しによって、凹凸を助長させずに、一定の膜厚と平坦性を有する目的の有機層を得るようにしている。
- [0034] 上記実施例では、正孔注入層3について説明したが、正孔輸送層4や電子輸送層6等の他の有機層についても適用することができ、上記同様、第1有機材料層よりも成膜時の平坦性が良い第2有機材料層を用いて、これらの積層構造により正孔輸送層や電子輸送層等を形成することで、平坦性の良い有機層を形成することができる。

請求の範囲

- [1] 発光層を含む有機層を備えた有機EL素子において、
前記有機層の一部が第1有機材料層の上に第2有機材料層が形成されるように交互に積層された多層膜構造で構成され、
前記第2有機材料層は、成膜時の平坦性が前記第1有機材料層よりも良い有機材料で構成されていることを特徴とする有機EL素子。
- [2] 前記第2有機材料層の膜厚は、前記第1有機材料層の膜厚よりも小さいことを特徴とする請求項1記載の有機EL素子。
- [3] 前記第1有機材料層と第2有機材料層とで正孔注入層を形成していることを特徴とする請求項1又は請求項2のいずれか1項に記載の有機EL素子。
- [4] 前記第1有機材料層はCuPc又はTiOPcのいずれかで構成され、前記第2有機材料層はTPD又はNPDのいずれかで構成されていること特徴とする請求項3記載の有機EL素子。
- [5] 前記第1有機材料層の成膜時の凹凸の段差が50 Å以下で形成されていることを特徴とする請求項4記載の有機EL素子。

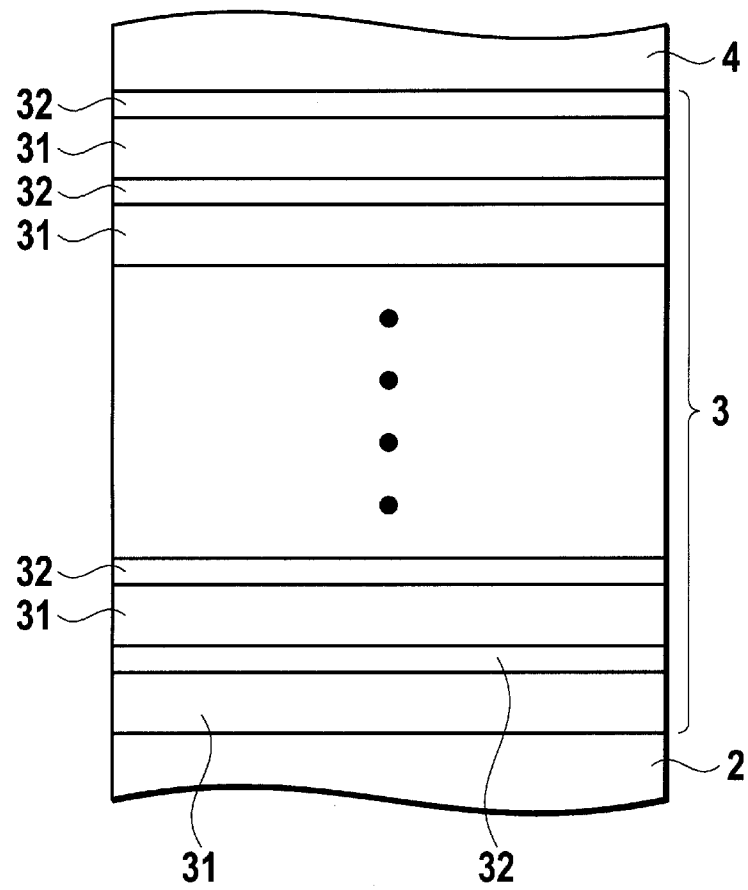
[図1]

FIG. 1



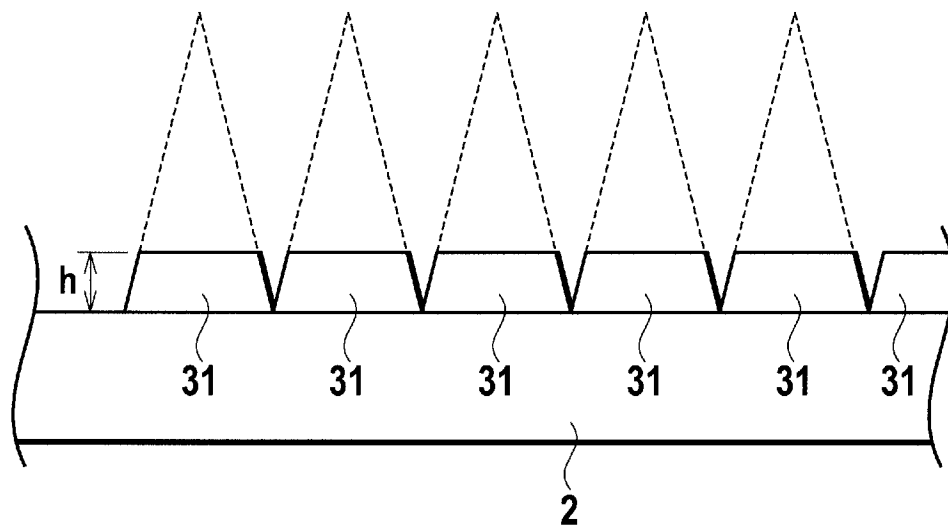
[図2]

FIG. 2



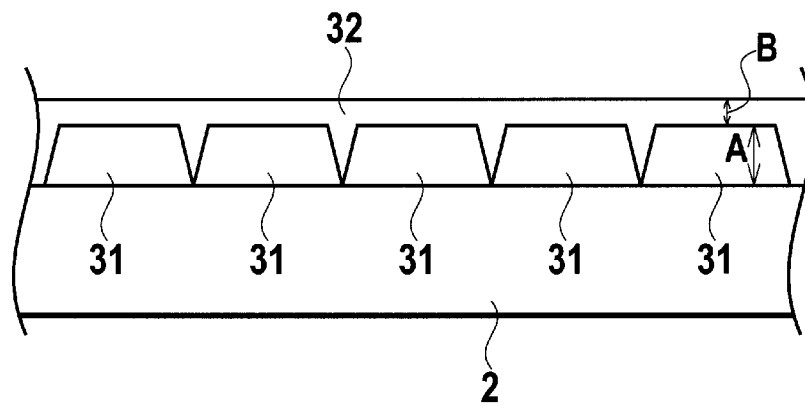
[図3]

FIG. 3



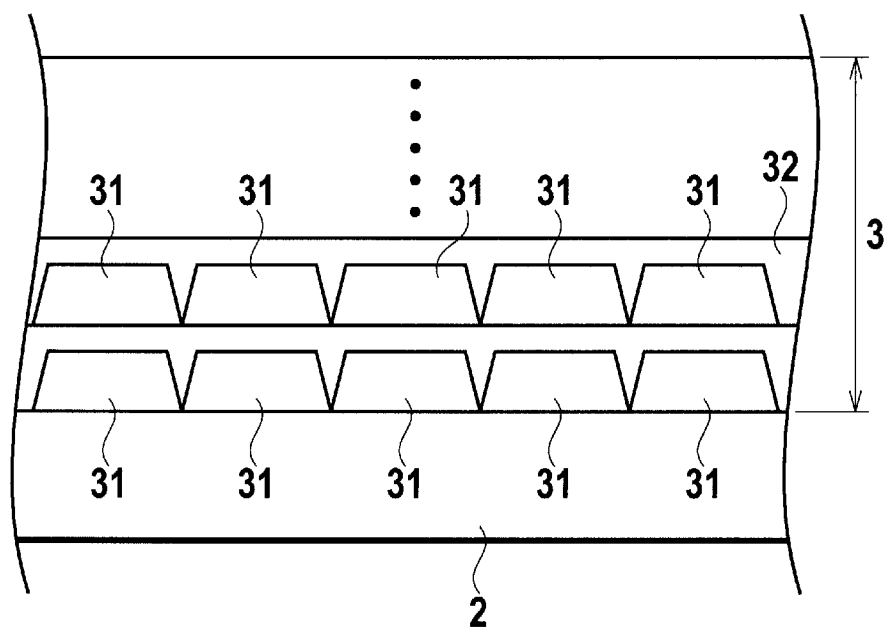
[図4]

FIG. 4



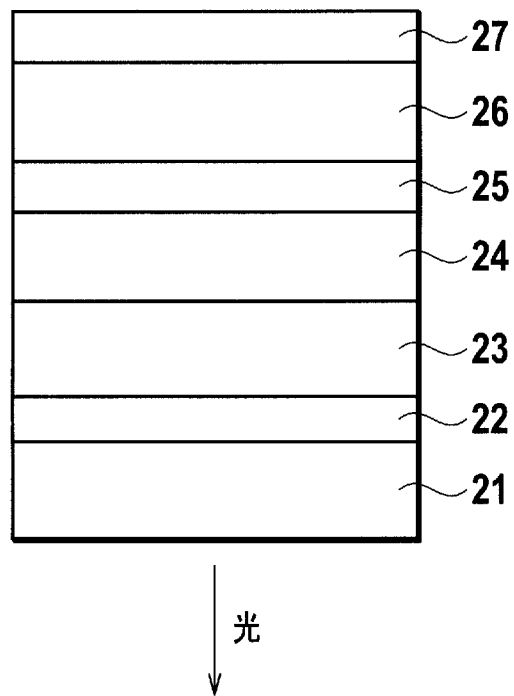
[図5]

FIG. 5



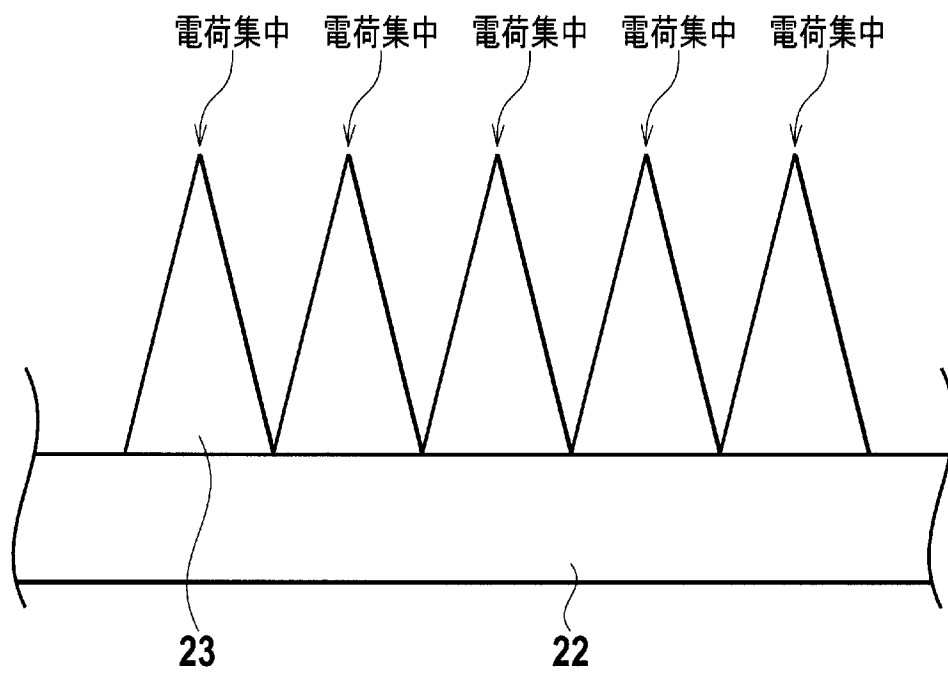
[図6]

FIG. 6



[図7]

FIG. 7



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/326115

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L51/50(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2007
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2007	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2007

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2005-26121 A (Fujitsu Ltd.), 27 January, 2005 (27.01.05), Par. Nos. [0125], [0147] (Family: none)	1 - 4 5
Y	JP 2001-351780 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 21 December, 2001 (21.12.01), Par. No. [0057] (Family: none)	5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
18 January, 2007 (18.01.07)

Date of mailing of the international search report
30 January, 2007 (30.01.07)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2007年
日本国実用新案登録公報	1996-2007年
日本国登録実用新案公報	1994-2007年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2005-26121 A（富士通株式会社）2005.01.27, 【0125】、【0147】	1-4
Y	（ファミリー無し）	5
Y	JP 2001-351780 A（大日本印刷株式会社）2001.12.21, 【0057】 （ファミリー無し）	5

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18.01.2007

国際調査報告の発送日

30.01.2007

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

東松 修太郎

20

3208

電話番号 03-3581-1101 内線 3271