

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la
Propriété Intellectuelle
Bureau international



(43) Date de la publication internationale
14 novembre 2013 (14.11.2013)

WIPO | PCT

(10) Numéro de publication internationale
WO 2013/167271 A1

- (51) Classification internationale des brevets :
H01L 51/50 (2006.01) H01L 51/52 (2006.01)
- (21) Numéro de la demande internationale :
PCT/EP2013/001364
- (22) Date de dépôt international :
8 mai 2013 (08.05.2013)
- (25) Langue de dépôt : français
- (26) Langue de publication : français
- (30) Données relatives à la priorité :
BE2012/0304 8 mai 2012 (08.05.2012) BE
- (71) Déposant : AGC GLASS EUROPE [BE/BE]; R&D Centre, Chaussée de La Hulpe, 166, B-1170 Bruxelles (Watermael-Boitsfort) (BE).
- (72) Inventeurs : DOMERCQ, Benoit; Chaussée d'Alsemberg, 415, B-1420 Braine-l'Alleud (BE). ROQUINY, Philippe; The Haven App. #3120, 1185 W Mountain View Rd, Johnson City, TN 37604 (US).
- (74) Mandataire : LARANGE, Françoise; R&D Centre, Rue de l'Aurore, 2, B-6040 Jumet (BE).

- (81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

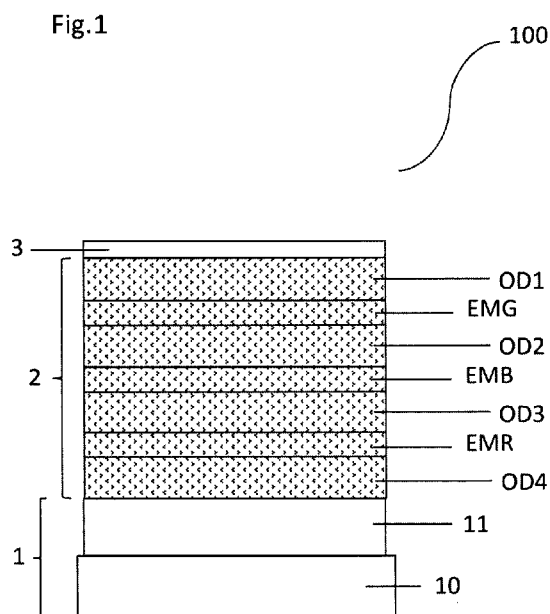
Déclarations en vertu de la règle 4.17 :

— relative à la qualité d'inventeur (règle 4.17.iv)

[Suite sur la page suivante]

(54) Title : ORGANIC PHOTONIC DEVICE

(54) Titre : DISPOSITIF PHOTONIQUE ORGANIQUE



(57) Abstract : The invention relates to an organic light-emitting device (100) comprising a transparent substrate (1) comprising a carrier (10) bearing an electrode (11) formed from a conductive multilayer, comprising at least one conductive metal layer flanked by dielectric layers, and to a white-light-emitting OLED system (2) located adjacent the electrode (11) of the transparent substrate (1), comprising, in succession, at least three emissive layers, one layer (EMG) emitting in the green, one layer (EMB) in the blue, and one layer (EMR) in the red, among which layers at least two are separated from each other by an organic separating layer (OD2, OD3). It is characterised in that, among these three emissive layers, the emissive layer located furthest from the electrode (11) is the layer (EMG) emitting in the green, and the emissive layer located closest the electrode (11) is the layer emitting in the red (EMR).

(57) Abrégé : L'invention porte sur un dispositif électroluminescent organique (100) comprenant un substrat transparent (1) comprenant un support (10) porteur d'une électrode (11) formée d'un multicouche conducteur, comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques, et un système OLED (2) émettant une lumière blanche, adjacent à l'électrode (11) du substrat transparent (1), comprenant une succession d'au moins

[Suite sur la page suivante]



Publiée :

— avec rapport de recherche internationale (Art. 21(3))

trois couches émettrices, une émettant dans le vert (EMG), une dans le bleu (EMB) et une dans le rouge (EMR), parmi lesquelles deux au moins sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation (OD2, OD3). Il se caractérise par le fait que parmi ces trois couches émettrices, la couche émettrice la plus éloignée de l'électrode (11) est celle émettant dans le vert (EMG) et la couche émettrice la plus proche de l'électrode (11) est celle émettant dans le rouge (EMR).

Dispositif photonique organique

La présente invention a trait à des dispositifs photoniques, en particulier des dispositifs photoniques organiques. Par dispositif photonique, on entend tout type de dispositif pouvant émettre de la lumière. De tels dispositifs sont par exemple les dispositifs optoélectroniques tels que les dispositifs organiques électroluminescents connus sous l'acronyme OLED (Organic Light Emitting Device).

Les dispositifs organiques électroluminescents comprennent généralement un substrat, une électrode disposée sur le substrat pour fournir des charges d'une première polarité, une électrode disposée de l'autre côté du dispositif pour fournir des charges d'une seconde polarité opposée à la première, des couches organiques semi-conductrices transporteuses de charges et des couches électroluminescentes disposées entre les électrodes, et un système d'encapsulation. Les OLED peuvent servir pour l'éclairage, qu'il soit architectural ou décoratif, de type rétro-éclairage, ou pour la signalétique. Des OLED émettant dans le blanc sont généralement préférées pour ces applications.

Dans le but de fabriquer un dispositif OLED émettant dans le blanc pour des applications d'éclairage, il est avantageux de fabriquer une source de lumière avec un rendu de couleur ou CRI (de l'anglais "Color Rendering Index") le plus élevé possible et de limiter la dépendance angulaire du spectre d'émission polychromatique dudit dispositif en assurant une faible variabilité de couleur selon l'angle d'observation (Delta de couleur).

L'indice de rendu des couleurs (CRI) est une mesure quantitative de la capacité d'une source de lumière à reproduire fidèlement les couleurs des différents objets en comparaison avec une source de lumière idéale ou naturelle. Les sources lumineuses avec un CRI élevé sont souhaitables dans la plupart des

applications d'éclairage car elles améliorent la perception des nuances de couleur des objets illuminés. L'indice de rendu de couleur est défini par la Commission Internationale de l'Éclairage comme l'effet d'un illuminant sur l'aspect chromatique des objets qu'il éclaire, cet aspect étant comparé consciemment ou non à celui des mêmes objets éclairés par un illuminant de référence, comme défini dans les ouvrages suivants : "CIE 17.4-1987 International Lighting Vocabulary" ou *Nickerson, Dorothy; Jerome, Charles W.* (April 1965), "Color Rendering of light sources: CIE method of specification and its application", *Illuminating Engineering (IESNA) 60 (4): 262–271.*

Le Delta de couleur combine la variation de couleur le long du locus de Planck et orthogonalement à celui-ci. Le locus de Planck regroupe les points d'émission des différentes sources Planckiennes et est donc proche de la majorité des sources blanches standards (par exemple, les illuminants D65, C, A). Pour des dispositifs émettant de la lumière blanche ou quasi-blanche, il est donc judicieux de pénaliser plus fort les écarts de teinte orthogonaux par rapport à cette courbe du locus de Planck car ils s'éloignent du blanc.

Le delta de couleur est ainsi représenté par la formule suivante:

$$\Delta_{col} = \sqrt{\sum_i^n \frac{(x_i - \bar{x})^2}{s_x} + \sum_i^n \frac{(y_i - p_i)^2}{s_y}}$$

$$p_i = p(x_i) = 0.404783758262229$$

$$+ 0.290077294746671 * (x_i - 0.443946335246864)$$

$$- 2.58208279488139 * (x_i - 0.443946335246864)^2$$

$$- 0.406419069828599 * (x_i - 0.443946335246864)^3$$

$$s_x = 0.0011 * n$$

$$s_y = 0.00044 * n$$

dans laquelle

- n est le nombre de données expérimentales (avec $n \geq 5$, réparties dans une gamme de 0 à 60°).

- $p(x)$ est une approximation cubique du locus de Planck et le choix des deux constantes d'échelle impliquent que des variations parallèles au locus de Planck sont pénalisées 2.5 fois moins que les variations orthogonales au locus de Planck. Ce choix favorise les chemins angulaires proches du locus de Planck par rapport aux autres chemins angulaires.
- x_i et y_i sont les coordonnées chromatiques dans le système CIE 1931, à chaque angle i .

Il est connu, pour les OLED, d'utiliser en tant qu'électrode transparente, des couches en oxyde d'indium dopé étain (ITO: Indium Tin Oxide), en oxyde de zinc dopé aluminium (AZO) ou d'autres couches ou multicouches conducteurs, par exemple, une couche d'oxyde d'étain dopé fluor ou un assemblage de couches (multicouche) de type diélectrique/métal/diélectrique, par exemple comprenant au moins une couche métallique à base d'argent, semblable à ceux utilisés dans les empilages sur verre destiné à la gestion thermique des bâtiments, des trains ou de l'automobile.

Il est également connu que chacune de ces électrodes a ses avantages et ses défauts. Par exemple, les multicouches incluant au moins une couche à base d'argent peuvent être parfois préférés car ils permettent d'améliorer sensiblement les propriétés de conduction par rapport à des couches d'ITO pour des épaisseurs d'électrodes raisonnables. Des structures conductrices comprenant deux couches d'argent peuvent aussi parfois être préférées pour limiter des problèmes de stabilité angulaire de la couleur émise. Mais dans la pratique, l'ITO reste pour l'instant toujours l'électrode la plus utilisée, préférée aux multicouches de type diélectrique/métal/diélectrique.

Pour ce qui est de la partie organique de l'OLED, ce sont les "empilements organiques performants classiques" qui sont de plus en plus généralement utilisés. Par "empilement organique performant classique", on

entend que la partie organique du dispositif est choisie "épaisse", c'est-à-dire qu'au moins deux des différentes sources émettrices (rouge, vert, bleu, jaune) sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation. De façon conventionnelle, G représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière verte, B représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière bleue et R représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière rouge. L'ordre de ces couches émettrices est de manière habituelle "RGB", séquence exprimée par rapport à l'électrode transparente, la première lettre de la séquence correspondant à la couche émettrice la plus éloignée de la dite électrode.

Or il nous est apparu que, de façon surprenante, ce n'est pas seulement en jouant sur la nature de l'électrode que l'on pouvait obtenir des dispositifs OLED présentant la meilleure combinaison possible d'un CRI élevé, d'une luminance élevée, et d'une faible variabilité de couleur selon l'angle d'observation, mais qu'on pouvait également jouer sur ces paramètres en modifiant l'ordre des couches émettrices au sein du système OLED lui-même, et que cette adaptation dans l'ordre des émetteurs était d'autant plus indispensable dans le cas d'une électrode multicouche (comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques).

Ceci est d'autant plus étonnant que la littérature n'a, à notre connaissance, jamais relevé ce point précédemment. Ainsi le document EP1755362A1 compare au sein de la Table 2 des systèmes organiques dans lesquels seul l'ordre des couches émettrices est modifié. Ceux-ci sont associés à une électrode d'ITO. Or, aucune tendance ne se dégage en faveur de l'un ou l'autre ordre des émetteurs avec une électrode en ITO. De même, US2009/0261360A1 compare des systèmes BRG et GBR (exemples 1 à 4) en combinaison avec une électrode d'ITO sans que puisse être démontré l'avantage de l'un sur l'autre. Enfin, US2009/0072720 enseigne comment optimiser la

séquence GBR en combinaison avec une électrode en ITO, mais ne démontre en rien l'avantage d'un ordre d'émetteurs particulier comparé à un autre.

L'objectif de la présente invention est la sélection de systèmes organiques de type "empilement organique performant classique" permettant
5 d'obtenir pour des dispositifs OLED à électrode multicouche (comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques) les incorporant, la meilleure combinaison possible d'un CRI élevé, d'une luminance élevée (c'est-à-dire une quantité de lumière émise élevée, soit une efficacité élevée), et d'une faible variabilité de couleur selon l'angle d'observation (Delta
10 de couleur).

Selon un de ses aspects, la présente invention a pour objet un dispositif électroluminescent organique selon la revendication 1, les revendications dépendantes présentant des modes de réalisation préférés.

L'invention porte sur un dispositif électroluminescent organique
15 comprenant (i) un substrat transparent comprenant un support porteur d'une électrode formée d'un multicouche conducteur, comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques, et (ii) un système OLED émettant une lumière blanche, adjacent à l'électrode du substrat transparent, comprenant une succession d'au moins trois couches émettrices,
20 une émettant dans le vert, une dans le bleu et une dans le rouge, parmi lesquelles deux au moins sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation. Il se caractérise par le fait que, parmi ces trois couches émettrices, la couche émettrice la plus éloignée de l'électrode est celle émettant dans le vert et la couche émettrice la plus proche de l'électrode est celle
25 émettant dans le rouge.

De tels dispositifs ont l'avantage d'offrir un excellent compromis entre un CRI élevé, une luminance élevée, et une faible variabilité de couleur

selon l'angle d'observation, et bien que des dispositifs électroluminescents organiques existent offrant pour une de ces propriétés de meilleurs résultats, nous avons trouvé que cette séquence particulière de couches émettrices "GBR" offrait, en combinaison avec une électrode de type multicouche conducteur, à la fois un CRI élevé, une luminance élevée et un faible Delta de couleur, soit une meilleure stabilité de la couleur selon l'angle.

Le substrat de la présente invention est dit transparent, c'est-à-dire qu'il présente une absorption lumineuse d'au plus 50%, voire d'au plus 30%, préférentiellement d'au plus 20% ou au plus 15%, plus préférentiellement d'au plus 12% ou au plus 10% dans le domaine des longueurs d'onde de la lumière visible. Le substrat de la présente invention comprend un support et une électrode.

Le support présente de préférence un indice de réfraction d'au moins 1.2, 1.4 ou 1.5 à une longueur d'onde de 550 nm. Ceci permet, à structure de substrat égale, d'augmenter la quantité de lumière transmise ou émise.

Sous le terme "support", on entend désigner non seulement le support en tant que tel mais également toute structure comprenant le support ainsi qu'au moins une couche d'un matériau ayant indice de réfraction, $n_{\text{matériau}}$, proche de l'indice de réfraction du support, n_{support} , en d'autres termes $|n_{\text{support}} - n_{\text{matériau}}| \leq 0,1$, $|n_{\text{support}} - n_{\text{matériau}}|$ représentant la valeur absolue de la différence entre les indices de réfraction. On peut citer comme exemple une couche d'oxyde de silicium déposée sur un support en verre silico-sodo-calcique.

Le support peut inclure des dispositifs additionnels favorisant l'extraction de lumière sur l'une et ou l'autre de ses faces. Un de ces dispositifs, à savoir une couche de diffusion, est décrit dans les documents publiés WO2009/017035, WO2009/116531, WO2010/084922, WO2010/084925, WO2011/046156, WO2011/046190 et la demande PCT/JP2011/074358, tous

incorporés ici par référence. Généralement, cette couche de diffusion présente une épaisseur de plus de 5 μm et n'est pas considérée comme un système optique cohérent. Dans le cas où une telle couche de diffusion est en contact avec l'électrode selon l'invention, n_{support} est alors considéré comme étant
5 l'indice, éventuellement de la matrice, de cette couche de diffusion.

De manière alternative, il peut être souhaitable d'éviter ou de minimiser la diffusion du support. Le substrat selon l'invention peut ainsi afficher une valeur de flou ("haze") inférieure à 20%, plus préférentiellement inférieure à 10%, ou encore plus préférentiellement inférieure à 2% ou à 1%. L'avantage est
10 alors que le dispositif organique incluant un tel substrat présente un aspect attrayant et non laiteux lorsqu'il est hors tension. Une esthétique de miroir peut, par exemple, être obtenue si la seconde électrode de charge opposée est réfléchissante; ou il est possible de réaliser un assemblage de vitrage transparent si la seconde électrode est également semi-transparente.

15 Dans le cas d'une seconde électrode réfléchissante, le dispositif organique complet peut alors présenter une réflexion lumineuse (selon CIE, illuminant D65 2°) mesurée côté support de plus de 20%, ou plus préférentiellement de plus de 40% ou encore plus avantageusement de plus de 60%. Dans le cas d'une seconde électrode semi-transparente, le dispositif
20 organique complet peut alors présenter une transmission lumineuse d'au moins 5% (selon CIE, illuminant D65 2°), ou plus avantageusement d'au moins 10% ou encore plus préférentiellement d'au moins 20%.

La fonction du support est de supporter et/ou de protéger l'électrode. Le support peut être en verre, en matière plastique rigide (par
25 exemple : verre organique, polycarbonate) ou en films polymériques souples (par exemple : PVC, PET, PP, PTFE). Le support est de préférence rigide.

Alternativement, il peut être roulé sur lui-même (par exemple un verre souple extra-fin utilisable dans un processus de dépôt "roll to roll").

Lorsque le support est en verre, par exemple une feuille de verre, celui-ci a de préférence une épaisseur géométrique d'au moins 0,05 mm. Le verre est de préférence silico-sodo-calcique clair ou coloré dans la masse ou en surface. Avantagement, il peut être extra-clair, c'est-à-dire un verre avec un contenu total en fer, exprimé en tant que Fe_2O_3 , de moins de 0.020 % poids, de préférence de moins de 0.015% poids. Le verre, du fait de sa faible porosité, a l'avantage d'assurer une bonne protection contre toute forme de contamination d'un dispositif comprenant le substrat transparent selon l'invention.

Dans certains modes particuliers de réalisation, le support porte un revêtement fonctionnel situé sur la face opposée à la face sur laquelle l'électrode est déposée. Ce revêtement fonctionnel peut être une couche ou un empilement de plusieurs couches à fonction, par exemple, antireflet, diffusante, antibuée, antiallure, antigraisse ou absorbant sélectif.

L'électrode selon l'invention est formée d'un multicouche conducteur, comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques. Les couches métalliques de conduction de l'électrode peuvent être au nombre de un, deux ou trois. Elles assurent principalement la conduction électrique de ladite électrode. Elles comprennent au moins une couche comprenant un métal ou un mélange de métaux. Le métal et/ou le mélange de métaux comprend de préférence au moins un élément sélectionné parmi Ag, Au, Pd, Pt, Al, Cu, Zn, Cd, In, Si, Zr, Mo, Ni, Cr, Mg, Mn, Co, Sn. Préférentiellement, le métal et/ou le mélange de métaux comprend au moins un élément sélectionné parmi Ag, Au, Cu, Al. Plus préférentiellement, la couche métallique de conduction comprend au moins de l'argent sous forme pure ou alliée à un autre métal, de préférence sélectionné parmi Pd et Au. L'épaisseur

géométrique des couches métalliques de conduction est d'au moins 6 nm, de préférence au moins 7 nm, plus préférentiellement au moins 8 nm. De préférence, l'épaisseur géométrique des couches métalliques de conduction est d'au plus 25 nm, de préférence au plus 20 nm.

- 5 Les couches diélectriques peuvent comprendre une ou plusieurs sous-couches de natures différentes. Avantageusement, elles comprennent un composé présentant un indice de réfraction à une longueur d'onde de 550 nm d'au moins 1.6, au moins 1.8 ou au moins 1.9, et/ou au plus 2.7 ou au plus 2.5. De préférence, elles présentent un indice de réfraction qui est supérieur à celui
- 10 du support d'au moins 0.1, de préférence d'au moins 0.2. De façon préférée, les couches diélectriques comprennent au moins un composé sélectionné parmi :
- les oxydes d'au moins un élément sélectionné parmi Y, Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Cr, Mo, W, Zn, Al, Ga, In, Si, Ge, Sn, Sb et Bi, ainsi que les mélanges d'au moins deux d'entre eux;
 - 15 - le nitrure de silicium, l'oxynitrure de silicium, l'oxycarbure de silicium, l'oxycarbonitrure de silicium, le nitrure d'aluminium, l'oxynitrure d'aluminium ainsi que les mélanges d'au moins deux d'entre eux.

- Plus préférentiellement encore, elles comprennent au moins un composé sélectionné parmi les oxydes de zinc, les oxydes d'étain, les oxydes de titane, les
- 20 nitrures d'aluminium, les nitrures de silicium, les mélanges d'au moins deux d'entre eux, les oxydes mixtes de zinc-étain et les oxydes mixtes de titane-zirconium-yttrium. L'épaisseur géométrique des couches diélectriques est d'au moins 20 nm ou au moins 30 nm, plus préférentiellement d'au moins 55 nm. Préférentiellement, elle est inférieure à 100 nm ou à 90 nm, de préférence
- 25 inférieure à 80 nm. Dans des modes de réalisations préférés de l'invention, la dernière couche diélectrique de l'électrode, celle la plus éloignée du support présente une épaisseur géométrique d'au moins 5 nm ou au moins 8 nm, plus préférentiellement d'au moins 10 nm et/ou inférieure à 50 nm ou à 40 nm, de

préférence inférieure à 30 nm ou à 25 nm, plus préférentiellement inférieure à 22 nm, à 20 nm ou à 18 nm.

De manière générale, lorsque des valeurs d'épaisseur géométrique sont données ici pour les couches diélectriques de l'électrode, elles le sont pour
5 un matériau constitutif présentant un indice de réfraction entre 1.8 et 2.2, plus préférentiellement entre 1.9 et 2.1 ou encore plus préférentiellement entre 1.95 et 2.05 à une longueur d'onde de 550 nm. Elles correspondent donc à une épaisseur optique égale à l'épaisseur géométrique multipliée par cet indice de réfraction qui est proche de 2. Si un autre choix de matériau est fait, avec un
10 indice de réfraction différent, il suffit de recalculer une épaisseur géométrique correspondante.

Le dispositif électroluminescent organique selon l'invention comprend en outre un système de couches organiques électroluminescentes (système OLED) émettant une lumière blanche, adjacent à l'électrode du substrat
15 transparent.

Pour qu'un système OLED émette une lumière blanche, il peut comprendre, et c'est le cas dans la présente invention, un empilement de trois structures de couches organiques correspondant aux parties émettrices de lumière rouge, verte et bleue. Dans le cas présent, les couches organiques
20 émettrices sont séparées par une ou des couches organiques de séparation (par exemple: couches de transport de charges); ces structures sont appelées "empilements organiques performants classiques".

Les couches organiques peuvent être constituées d'une couche en matériau unique ou d'une pluralité de couches chacune en un matériau
25 différent. On peut aussi utiliser des systèmes à quatre couches émettrices où la couleur jaune (représentée par la lettre Y) permet d'étendre la couverture spectrale de la lumière visible du système OLED.

Par les termes "lumière blanche", on entend désigner une lumière dont les coordonnées chromatiques à 0°, pour un rayonnement perpendiculaire à la surface du substrat, sont comprises dans un des huit quadrilatères de chromaticité, contours des quadrilatères compris. Ces quadrilatères sont définis
5 aux pages 10 à 12 de la norme ANSI_NEMA_ANSLG C78.377-2008. Ces quadrilatères sont représentés sur la figure A1, PART 1 intitulée « Graphical representation of the chromaticity specification of SSL products in Table 1, on the CIE (x,y) chromaticity diagram ».

De préférence, la (ou les) couche organique de séparation,
10 séparant au moins deux des différentes couches émettrices, présente une épaisseur d'au moins 5 nm, plus préférentiellement d'au moins 15 nm, ou encore plus préférentiellement d'au moins 30 nm.

Des matériaux permettant de fabriquer un système OLED selon l'invention sont décrits par exemple dans Reineke et al. (NATURE, Vol 459, 14
15 May 2009) ou dans Rosenow et al. (Journal of Applied Physics, Vol. 108, 113113 (2010)).

Selon un mode de réalisation particulier, le dispositif organique électroluminescent est intégré dans un vitrage, un double vitrage ou un vitrage feuilleté. Il est également possible d'intégrer plusieurs dispositifs organiques
20 électroluminescents.

Selon un autre mode de réalisation particulier, le dispositif organique électroluminescent est enfermé dans au moins un matériau d'encapsulation en verre et/ou en plastique. Les différents modes de réalisation des dispositifs organiques électroluminescents peuvent être combinés.

25 Enfin, les différents dispositifs organiques électroluminescents ont un vaste domaine d'utilisation. L'invention s'adresse notamment aux utilisations

possibles de ces dispositifs organiques électroluminescents pour la réalisation d'une ou plusieurs surfaces lumineuses. Le terme surface lumineuse comprend par exemple les dalles éclairantes, panneaux lumineux, cloisons lumineuses, plans de travail, serres, lampes de poche, fonds d'écran, fonds de tiroirs, toits
5 lumineux, écrans tactiles, lampes, flashes photo, fonds lumineux d'affichage, signaux de sécurité, étagères, éclairages d'habacle de voiture ou d'avion.

Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention peuvent présenter avantageusement, en combinaison:

- un CRI supérieur à 60, de préférence supérieur à 70,
- 10 - un Delta de couleur inférieur à 2.4, de préférence inférieur à 2.0 ou à 1.8.

Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention peuvent également présenter avantageusement une efficacité supérieure à 15 lumen/watt à une luminance de 10000 cd/m².

De façon générale, la présente description s'est focalisée sur des
15 OLED de type "bottom emission", mais les mêmes principes s'appliquent pour des OLED de type "top emission".

Des modes de réalisation particuliers de l'invention vont à présent être décrits, en tant qu'exemples, tout en faisant référence à la Figure 1 et à l'exemple 1. Des exemples comparatifs 1 à 5, ne formant pas partie de
20 l'invention, sont également présentés.

Fig. 1: coupe transversale d'un dispositif électroluminescent organique selon l'invention

Le dispositif électroluminescent organique (100) de la figure 1 comprend un substrat transparent (1), un système OLED (2) et une contre-
25 électrode (3), le substrat transparent (1) comprenant un support (10) porteur d'une électrode (11). Le système OLED (2) comprend, dans l'ordre à partir du

support (10), une première couche organique (OD4) incluant une couche de transport de trous, une couche émettrice rouge (EMR), une deuxième couche organique (OD3) incluant une couche de transport d'électrons et une couche de transport de trous, une couche émettrice bleue (EMB), une troisième couche organique (OD2) incluant une couche de transport d'électrons et une couche de transport de trous, une couche émettrice verte (EMG), et une quatrième couche organique (OD1) incluant une couche de transport d'électrons. Ce système OLED est dit "GBR". Une ou plusieurs couche(s) de blocage (non représentées à la figure 1) peut également être prévue dans le système OLED dans une ou plusieurs couche(s) transporteuse(s) de charges.

Les différents éléments des figures ne sont pas représentés à l'échelle.

Un exemple de dispositif électroluminescent organique selon l'invention ainsi que des exemples comparatifs ne faisant pas partie de l'invention, sont présentés au Tableau I.

Pour chaque partie du dispositif électroluminescent organique, la ou les couche(s) formant l'électrode et le système organique y sont décrites: leur nature et leur épaisseur géométrique exprimée en nanomètres.

$Zn_{90}Sn_{10}O$	représente un oxyde mixte de Zn (90% poids) et Sn (10% poids)
$Zn_{48}Sn_{52}O$	représente un oxyde mixte de Zn (48% poids) et Sn (52% poids)
TxO	représente une couche de TiO_2 déposée par pulvérisation magnétron à partir d'une cible céramique

Tous les dispositifs électroluminescents organiques des exemple et exemples comparatifs ont un support en verre sodo-silico-calciq, d'indice de réfraction d'environ 1.5.

Les performances des dispositifs électroluminescents organiques des exemple et exemples comparatifs sont données dans le tableau I. Elles ont été calculées à l'aide du programme de simulation SETFOS (Semiconducting Emissive Thin Film Optics Simulator) de la firme Fluxim (<http://www.fluxim.ch>),
5 version 2.

La luminance est exprimée en unité arbitraire.. Les valeurs de CRI données sont des moyennes de CRI calculés à des angles de 0, 10, 20, ..., 80 degrés selon la formule ci-dessus. Les valeurs de Delta de couleur (Deltacol) ont également été calculées selon la formule donnée ci-dessus.

10 Les performances de l'exemple 1 montrent une combinaison de luminance, CRI et Delta de couleur optimisée (bonne luminance, CRI élevé, Delta de couleur faible). Les empilements "GBR" proposent ainsi une excellente combinaison des valeurs de luminance, CRI et Delta de couleur, avec un CRI supérieur à 75 et un Delta de couleur inférieur à 1.6.

15 Les performances réhibitoires des exemples comparatifs sont notées en gras dans le Tableau I. Le système RGB offre une très bonne luminance, mais un CRI trop faible et une dépendance angulaire trop importante. Le système BRG offre une mauvaise luminance et une dépendance angulaire trop importante. Les systèmes RBG, GRB et BGR offrent tous une mauvaise
20 luminance. De plus, le système BGR montre une dépendance angulaire beaucoup trop importante.

En outre, l'"outcoupling" ou "extraction de lumière" de dispositifs électroluminescents organiques fabriqués selon l'invention montre que le système GBR offre un meilleur outcoupling que le système RGB par exemple.
25 Sans vouloir être lié par la théorie, ce phénomène, assez inattendu, pourrait s'expliquer par le fait que la variabilité des valeurs de luminance et d'outcoupling entre les différentes couleurs du spectre visible est moins marquée dans le

système GBR qu'RGB (rouges moins favorisés). En d'autres termes, un système GBR couplé à un dispositif d'extraction de lumière classique fonctionne mieux car le spectre des dispositifs GBR est moins sensible à la dispersion, particulièrement dans le rouge; dès lors, la couleur et l'extraction en blanc y sont meilleures.

5

TABLEAU I													
	Exemple 1		Ex. comparatif 1		Ex. comparatif 2		Ex. comparatif 3		Ex. comparatif 4		Ex. comparatif 5		
	GBR		RGB		BRG		RBG		GRB		BGR		
verre	matériau	épaisseur [nm]	matériau	épaisseur [nm]	matériau	épaisseur [nm]	matériau	épaisseur [nm]	matériau	épaisseur [nm]	matériau	épaisseur [nm]	
	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	32,0	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	32,0	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	32,9	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	38,9	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	41,7	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	36,0	
	Ag	9,8	Ag	9,8	Ag	9,2	Ag	12,1	Ag	8,7	Ag	13,5	
électrode (anode)	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	
	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	74,5	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	74,5	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	87,7	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	74,4	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	93,9	Zn ₉₀ Sn ₁₀ O	95,9	
	Ag	8,0	Ag	8,0	Ag	8,1	Ag	14,9	Ag	9,9	Ag	12,5	
système OLED	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	TxO	0,5	
	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O	10,0	
	OD4	116,1	OD4	83,1	OD4	103,5	OD4	81,0	OD4	87,4	OD4	136,6	
électrode (cathode)	EM - R	25,0	EM - B	25,0	EM - G	25,0	EM - G	25,0	EM - B	25,0	EM - R	25,0	
	OD3	40,3	OD3	30,2	OD3	68,1	OD3	116,3	OD3	30,2	OD3	74,2	
	EM - B	25,0	EM - G	25,0	EM - R	25,0	EM - B	25,0	EM - R	25,0	EM - G	25,0	
Luminance	OD2	46,5	OD2	120,0	OD2	100,8	OD2	57,0	OD2	65,8	OD2	60,1	
	EM - G	25,0	EM - R	25,0	EM - B	25,0	EM - R	25,0	EM - G	25,0	EM - B	25,0	
	OD1	49,9	OD1	40,4	OD1	51,0	OD1	35,1	OD1	80,5	OD1	119,0	
CRI	Al	100	Al	100	Al	100	Al	100	Al	100	Al	100	
	86,3	88,1	63,7	54,8	47,9	37,2							
	76,0	74,6	75,7	76,2	76,0	77,4							
Delta couleur	1,50	1,66	1,64	1,40	1,50	2,92							

REVENDICATIONS

1. Dispositif électroluminescent organique (100) comprenant
 - (i) un substrat transparent (1) comprenant un support (10) porteur d'une électrode (11) formée d'un multicouche conducteur, comprenant au moins une couche métallique conductrice entourée de couches diélectriques, et
 - 5 (ii) un système OLED (2) émettant une lumière blanche, adjacent à l'électrode (11) du substrat transparent (1), comprenant une succession d'au moins trois couches émettrices, une émettant dans le vert (EMG), une dans le bleu (EMB) et une dans le rouge (EMR), parmi lesquelles deux au moins sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation
 - 10 (OD2,OD3),caractérisé en ce que, parmi ces trois couches émettrices, la couche émettrice la plus éloignée de l'électrode (11) est celle émettant dans le vert (EMG) et la couche émettrice la plus proche de l'électrode (11) est celle émettant dans le rouge (EMR).
- 15 2. Dispositif électroluminescent organique selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il ne comprend pas plus de trois couches émettrices.
3. Dispositif électroluminescent organique selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comprend en outre une couche émettrice émettant dans le jaune.
- 20 4. Dispositif électroluminescent organique selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que chaque couche émettrice est séparée d'une autre couche émettrice par une couche organique de séparation (OD2, OD3).
- 25 5. Dispositif électroluminescent organique selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que la au moins une couche

organique de séparation (OD2, OD3) présente une épaisseur géométrique d'au moins 5 nm, de préférence d'au moins 15 nm.

6. Dispositif électroluminescent organique selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'électrode (11) consiste
5 essentiellement en un multicouche comprenant au moins une couche à base d'argent.

7. Dispositif électroluminescent organique selon la revendication précédente, caractérisé en ce que la au moins une couche à base d'argent présente une épaisseur géométrique d'au moins 6 nm et d'au plus 25 nm.

10 8. Dispositif électroluminescent organique selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un CRI supérieur à 60 et un Delta de couleur inférieur à 2.4.

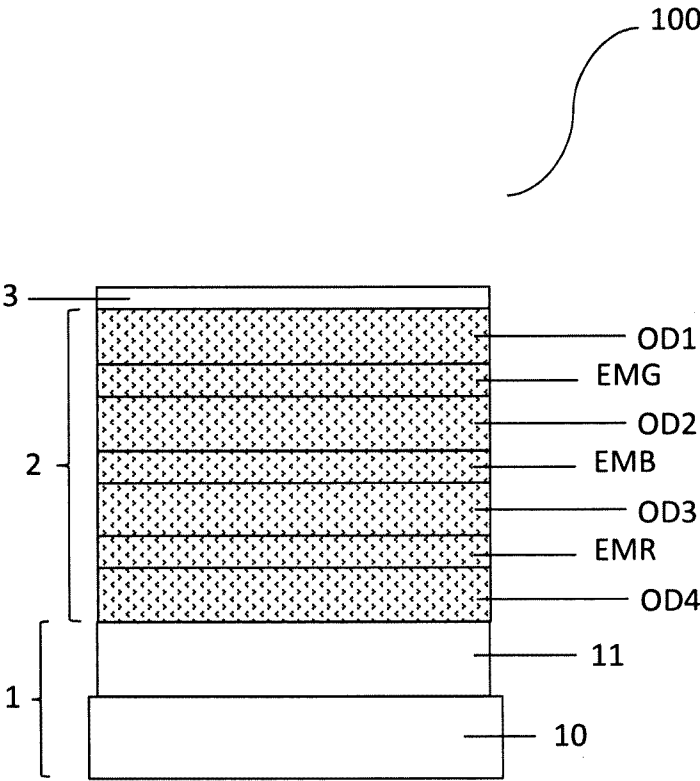


Fig.1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2013/001364

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. H01L51/50 H01L51/52
ADD.

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)

H01L

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

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

EP0-Internal, WPI Data, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 1 755 362 A1 (TOYOTA JIDOSHOKKI KK [JP]) 21 February 2007 (2007-02-21) paragraphs [0005], [0010], [0041], [0043] - [0047], [0050], [0059], [0064], [0067], [0124]; examples -----	1-8
Y	US 2009/072720 A1 (LEE SUNG-HUN [KR] ET AL) 19 March 2009 (2009-03-19) paragraphs [0014], [0016], [0020], [0038], [0040] - [0044] ----- -/-	1-8



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

22 August 2013

Date of mailing of the international search report

29/08/2013

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De Laere, Ann

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2013/001364

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	SUNGJUN KIM ET AL: "MgO nano-facet embedded silver-based dielectric/metal/dielectric transparent electrode", OPTICS EXPRESS, vol. 20, no. 2, 16 January 2012 (2012-01-16), page 845, XP055076036, ISSN: 1094-4087, DOI: 10.1364/OE.20.000845 the whole document -----	1-8
Y	US 2008/176099 A1 (HATWAR TUKARAM K [US] ET AL) 24 July 2008 (2008-07-24) paragraph [0029]; figure 2 -----	3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2013/001364

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1755362	A1	21-02-2007	CN 1998269 A 11-07-2007
			EP 1755362 A1 21-02-2007
			JP 4737086 B2 27-07-2011
			KR 20080015481 A 19-02-2008
			TW 1302564 B 01-11-2008
			US 2008290788 A1 27-11-2008
			WO 2005117499 A1 08-12-2005

US 2009072720	A1	19-03-2009	KR 20090029009 A 20-03-2009
			US 2009072720 A1 19-03-2009

US 2008176099	A1	24-07-2008	NONE

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/EP2013/001364

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
INV. H01L51/50 H01L51/52
ADD.

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)
H01L

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
Y	EP 1 755 362 A1 (TOYOTA JIDOSHOKKI KK [JP]) 21 février 2007 (2007-02-21) alinéas [0005], [0010], [0041], [0043] - [0047], [0050], [0059], [0064], [0067], [0124]; exemples -----	1-8
Y	US 2009/072720 A1 (LEE SUNG-HUN [KR] ET AL) 19 mars 2009 (2009-03-19) alinéas [0014], [0016], [0020], [0038], [0040] - [0044] ----- -/-	1-8

☒ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

* Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent

"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date

"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)

"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens

"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

22 août 2013

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

29/08/2013

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

De Laere, Ann

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°

PCT/EP2013/001364

C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
Y	SUNGJUN KIM ET AL: "MgO nano-facet embedded silver-based dielectric/metal/dielectric transparent electrode", OPTICS EXPRESS, vol. 20, no. 2, 16 janvier 2012 (2012-01-16), page 845, XP055076036, ISSN: 1094-4087, DOI: 10.1364/OE.20.000845 le document en entier -----	1-8
Y	US 2008/176099 A1 (HATWAR TUKARAM K [US] ET AL) 24 juillet 2008 (2008-07-24) alinéa [0029]; figure 2 -----	3

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°

PCT/EP2013/001364

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 1755362	A1	21-02-2007	CN 1998269 A	11-07-2007
			EP 1755362 A1	21-02-2007
			JP 4737086 B2	27-07-2011
			KR 20080015481 A	19-02-2008
			TW 1302564 B	01-11-2008
			US 2008290788 A1	27-11-2008
			WO 2005117499 A1	08-12-2005

US 2009072720	A1	19-03-2009	KR 20090029009 A	20-03-2009
			US 2009072720 A1	19-03-2009

US 2008176099	A1	24-07-2008	AUCUN	
