

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年6月22日(22.06.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/104175 A1

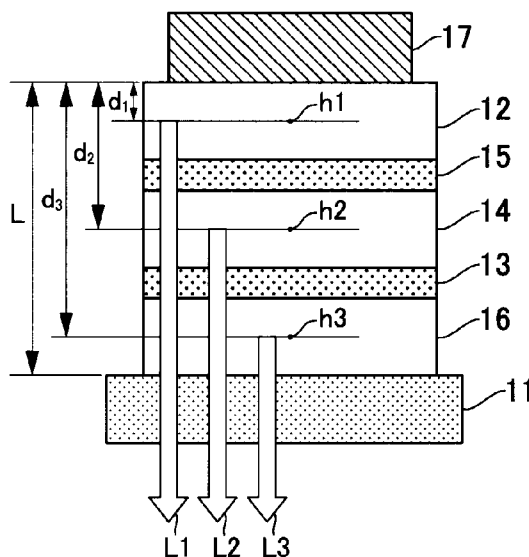
- (51) 国際特許分類:
H05B 33/12 (2006.01) H05B 33/24 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01) H05B 33/26 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074499
- (22) 国際出願日: 2016年8月23日(23.08.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-246639 2015年12月17日(17.12.2015) JP
- (71) 出願人: コニカミノルタ株式会社(KONICA MINOLTA, INC.) [JP/JP]; 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 岡本 健(OKAMOTO Ken); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 今村 敦(IMAMURA Atsushi); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 石代 宏(ISHIDAI Hiroshi); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP). 中山 知是(NAKAYAMA Tomoyuki); 〒1007015 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人信友国際特許事務所(SHINYU INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒1510073 東京都渋谷区笹塚2-1-6 笹塚センタービル 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, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, SA, 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) 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロピア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロッパ (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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT, AND LIGHT EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、発光装置

[図2]



(57) Abstract: This color-adjustable organic electroluminescence element can suppress power consumption, and comprises a first light emitting unit and a second light emitting unit that emits light of a shorter wavelength than that of the light emitted by the first light emitting unit, wherein angle θ_1 , at which the light emission intensity of the first light-emitting unit is maximal, and angle θ_2 , at which the light emission intensity of the second light-emitting unit is maximal, satisfy $[\theta_1 \leq \theta_2 \text{ (wherein } 0^\circ \leq \theta_1 \leq \theta_2 < 90^\circ)]$, θ_1 and θ_2 being measured from the front direction.

(57) 要約: 第1発光ユニットと、第1発光ユニットよりも波長の短い光を放出する第2発光ユニットとを有し、正面方向から測定した、第1発光ユニットの発光強度が最大となる角度 θ_1 と、第2発光ユニットの発光強度が最大となる角度 θ_2 とが $[\theta_1 \leq \theta_2 \text{ (但し、} 0^\circ \leq \theta_1 \leq \theta_2 < 90^\circ)]$ を満たす、消費電力の抑制が可能な有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、発光装置

技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、この有機エレクトロルミネッセンス素子を備える発光装置に係わる。より詳しくは、調色可能な有機エレクトロルミネッセンス素子、及び、発光装置に係わる。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス（electroluminescence：EL）素子は、自発光性であることから、薄型化が可能であり、消費電力が抑えられ、且つ応答速度が速いといった特徴を有している。

[0003] 照明用途において、有機EL素子の発光色を変化させることができれば、色による演出を効果的に得ることができる。このため、有機EL素子において発光色を変化させることが可能な調色機能は、重要な機能となり得る。このような調色機能の一形態として、有機EL素子に調色（調光）ユニットを設けた表示装置が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2009-99400号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、有機EL素子では、長波な発光色ほど視感度が低く、発光効率が低いという課題がある。従って、色の重ね合わせにより品位の高い白色発光を得ようとする、視感度が低く消費電力の高い最も長波な発光色（一般的には赤色系）の輝度を、他の色と調和するように高める必要がある。このため、有機EL素子の消費電力が増加してしまう。

[0006] 上述した問題の解決のため、本発明においては、消費電力の抑制が可能な

有機エレクトロルミネッセンス素子及び発光装置を提供するものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の有機EL素子は、2層以上の発光ユニットと、発光ユニットを挟持する3層以上の電極とを備える有機エレクトロルミネッセンス素子であって、第1発光ユニットと、第1発光ユニットよりも波長の短い光を放出する第2発光ユニットとを有し、正面方向から測定した、第1発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 1$ と、第2発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 2$ とが $[\theta 1 \leq \theta 2 \quad (\text{但し、} 0^\circ \leq \theta 1 \leq \theta 2 < 90^\circ)]$ を満たす。

また、本発明の発光装置は、上記有機エレクトロルミネッセンス素子を備える。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、消費電力の抑制が可能な有機エレクトロルミネッセンス素子及び発光装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]発光ユニットから放出される光の角度依存性を示す図である。

[図2]設計方法を説明するための有機EL素子の具体的な構成を示す図である。

[図3]有機EL素子において位相が強められる条件を説明するための図である。

[図4]有機EL素子において位相が強められる条件を説明するための図である。

[図5]実施形態の有機EL素子の構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明を実施するための形態の例を説明するが、本発明は以下の例に限定されるものではない。

なお、説明は以下の順序で行う。

1. 有機エレクトロルミネッセンス素子の概要
2. 有機エレクトロルミネッセンス素子、発光装置の実施形態

[0011] 〈1. 有機エレクトロルミネッセンス素子の概要〉

有機エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）素子の具体的な実施形態に先立ち、本発明の有機ＥＬ素子の概要について説明する。

[0012] 一般的に、複数の発光ユニットを設け、各発光ユニットからの光を合成することで白色光を得る有機ＥＬ素子では、長波長の光の視認性が、短波長の光よりも低い。このため、有機ＥＬ素子において白色光を得るためには、視認性の低い長波長の光を放出する発光ユニットの光強度を上げ、他の発光ユニットの光強度を弱める必要がある。

[0013] 具体的には、白色発光の有機ＥＬ素子では、赤系の光を放出する発光ユニットの視認性が、青系、緑系、及び、黄系の光を放出する発光ユニットよりも低い。このため、赤系の発光ユニットの発光強度を、青系、緑系、及び、黄系の光に合わせて高く調整し、発光光を白色に調整する必要がある。

[0014] 従って、一般的な上記構成の有機ＥＬ素子では、視認性の低い赤系の発光ユニットの輝度を上げるために、発光ユニットに供給する電流量を上げる必要がある。このため、有機ＥＬ素子の高効率化、低消費電力化の妨げとなる。

[0015] このような有機ＥＬ素子の課題に対して、有機ＥＬ素子にマイクロキャビティ（微小共振器）構造を取り入れる構成が考えられる。マイクロキャビティ構造では、発光ユニットの厚さを調整することにより、特定の波長の光を電極（陰極・陽極）間で共振させて強調し、それ以外の波長の光を弱め、外部に取り出される光のスペクトルを急峻かつ高強度にすることができる。これにより、有機ＥＬ素子の輝度と色純度を向上させることができる。

[0016] また、上述のマイクロキャビティ構造を利用すると、有機ＥＬ素子から放出される光強度の角度依存性の制御が可能となる。例えば、視認性の低い長波長の光の発光強度を、有機ＥＬ素子の正面方向の 0° を中心とする特定角度内において向上させることができる。さらに、視認性の高い短波長の光の

発光強度が最大となる角度を、長波長の光の発光強度が最大となる角度よりも外側（大きい角度）にすることができる。

[0017] 従って、各発光ユニットの発光強度分布（角度依存性）において、最も波長の長い光（ L_1 ）の発光強度が最大となる角度（最大強度角度： θ_1 ）を、有機EL素子の正面方向の 0° に近づける。そして、 L_1 の最大強度角度（ θ_1 ）を、 L_1 の次に波長の長い光（ L_2 ）の発光強度が最大となる角度（最大強度角度： θ_2 ）以下とする。さらに、 L_2 よりも短波長の光（ L_3 ）を放出する発光ユニットを有する場合には、 L_3 の発光強度が最大となる角度（最大強度角度： θ_3 ）を、最大強度角度 θ_2 以上とする。従って、この場合の各波長の光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）における最大強度角度（ θ_1 、 θ_2 、 θ_3 ）は、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ 、 $[\theta_1 \leq \theta_3]$ 、及び、 $[\theta_2 \leq \theta_3]$ （すなわち、 $[\theta_1 \leq \theta_2 \leq \theta_3]$ ）となる。但し、 $[0^\circ \leq \theta_1 \leq \theta_2 < 90^\circ]$ 、 $[0^\circ \leq \theta_1 \leq \theta_3 < 90^\circ]$ である。

[0018] このような、マイクロキャビティ効果によって各光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）の最大強度角度（ θ_1 、 θ_2 、 θ_3 ）を調整した有機EL素子において、各光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）の角度依存性の一例を図1に示す。図1は、縦軸が各発光ユニットから発光される光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）の輝度（規格化輝度）、横軸が有機EL素子の正面方向における輝度の測定角度である。図1に示すグラフでは、各発光ユニットから発光される光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）について、それぞれ輝度が最も高くなる角度がわかる。また、図1に示すグラフでは、測定角度に応じた、各光の輝度の相対的な強さの変化がわかる。

[0019] 図1に示すように、光（ L_1 ）は、角度 θ_1 での規格化輝度が高いため、角度 θ_1 において最も高い輝度を有する。同様に、光（ L_2 ）は、角度 θ_2 での規格化輝度が高いため、角度 θ_2 において最も高い輝度を有し、光（ L_3 ）は、角度 θ_3 での規格化輝度が高いため、角度 θ_3 において最も高い輝度を有する。ここで、角度 θ_1 、角度 θ_2 、角度 θ_3 はそれぞれ異なる値であるため、各光（ L_1 、 L_2 、 L_3 ）は、それぞれ最も高い輝度を有する角度が異なる。

[0020] すなわち、光（L 1）の輝度が最も高くなる角度 $\theta 1$ では、光（L 2）及び光（L 3）の輝度は最大にならない。このため、角度 $\theta 1$ では、視認性の低い光（L 1）の輝度が高くなり、これよりも視認性の高い光（L 2）及び光（L 3）の輝度が角度 $\theta 2$ や角度 $\theta 3$ よりも低くなる。このように、特定の角度 $\theta 1$ において、視認性の低い短波長の光（L 1）の輝度を高め、この光（L 1）に合わせて光（L 2）及び光（L 3）を低くすることにより、各光（L 1、L 2、L 3）の輝度のバランスがとれ、品位の高い白色光を得ることができる。

[0021] ここで、長波長の光（L 1）の最大強度角度（ $\theta 1$ ）を $[0^\circ \leq \theta 1 \leq 5^\circ]$ とすることにより、長波長の光（L 1）の発光を有機EL素子の正面方向に集中させることができる。このように、マイクロキャビティ効果を利用し、長波長の光（L 1）の発光を有機EL素子の正面方向に集中させることにより、視認性の低い長波長光であっても、照射方向の中心から一定の角度範囲内において高い光強度を得ることができる。このため、長波長の光であっても、有機EL素子の正面方向において、高い視認性を得ることができる。

[0022] また、有機EL素子において、最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ にはそれぞれ 5° 以上の差を設けることが好ましく、 10° 以上の差を設けることがより好ましい。すなわち、 $[\theta 1 < \theta 2 < \theta 3]$ であり、 $[\theta 1 + 10^\circ \leq \theta 2 + 5^\circ \leq \theta 3]$ がより好ましく、 $[\theta 1 + 20^\circ \leq \theta 2 + 10^\circ \leq \theta 3]$ が特に好ましい。

[0023] 最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ の差が小さいと、有機EL素子の正面方向において長波長の光（L 1）の相対的な強度を、L 1よりも短波長の光（L 2、L 3）に対して十分に大きくすることが難しい。このため、 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ の差を大きくすることにより、有機EL素子の正面方向における長波長の光（L 1）の相対的な強度を高めることができる。

[0024] また、短波長側の光（L 2、L 3）においては、マイクロキャビティ効果を利用することで、最大強度角度（ $\theta 2$ 、 $\theta 3$ ）を長波長の光（L 1）の最

大強度角度（ $\theta 1$ ）以上の角度 [$\theta 1 \leq \theta 2 \leq \theta 3$] に調整する。好ましくは、最大強度角度（ $\theta 2$ ， $\theta 3$ ）が最大強度角度（ $\theta 1$ ）を超える角度 [$\theta 1 < \theta 2 < \theta 3$] に調整する。これにより、短波長側の光（ $L 2$ ， $L 3$ ）は、有機EL素子の正面方向の強度が、外側の範囲の強度よりも低下する。

[0025] 従って、有機EL素子の正面方向においては、長波長の光（ $L 1$ ）の光強度が増加し、短波長側の光（ $L 2$ ， $L 3$ ）が相対的に弱まる。このため、長波長の光（ $L 1$ ）の光強度が増幅される一定の範囲（角度内）では、長波長の光（ $L 1$ ）の視認性が高まり、光（ $L 1$ ， $L 2$ ， $L 3$ ）の合成による白色光を得る際に、短波長の光（ $L 2$ ， $L 3$ ）に合わせるための長波長側の光（ $L 1$ ）の光強度を強める必要がなくなる。

[0026] すなわち、マイクロキャビティ効果により、有機EL素子の正面方向の一定の角度内において、長波長の光（ $L 1$ ）の光強度を増加させることにより視認性を高めることができる。この結果、有機EL素子の正面方向の一定の角度内において、光強度が高く品位の高い白色光を得ることができるため、有機EL素子の発光効率が向上し、有機EL素子の低消費電力化が可能となる。

[0027] [設計方法]

以下、上述のマイクロキャビティ効果を利用し、 $[\theta 1 \leq \theta 2]$ 、 $[\theta 1 \leq \theta 3]$ 、及び、 $[\theta 2 \leq \theta 3]$ を実現することにより、発光効率が高く、品位の高い白色光を得ることが可能な有機EL素子の設計方法について説明する。

[0028] 上記設計方法を説明するための有機EL素子の具体的な構成を、図2に示す。図2に示す有機EL素子は、透明電極11、第3発光ユニット16、第1中間電極13、第2発光ユニット14、第2中間電極15、第1発光ユニット12、及び、反射電極17が積層された構成を有する。すなわち、有機EL素子は、中間電極13，15を介して3層の発光ユニットが積層された構成である。なお、図2では、有機EL素子の設計方法に係わる構成のみを記載し、基板等の構成は記載を省略している。

[0029] 図2に示す有機EL素子においては、最も反射電極17側に配置された第1発光ユニット12が、最も長波長の光(L1)を放出する構成とする。また、第2発光ユニット14がL1の次に長い波長の光(L2)を放出し、最も透明電極11側に配置された第3発光ユニット16が最も短い波長の光(L3)を放出する構成とする。また、各発光ユニット12、14、16における発光点をh1、h2、h3とする。

[0030] 各発光ユニット12、14、16から放出される、それぞれ波長の異なる光L1、L2、L3の最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ を所定の角度とするためには、マイクロキャビティ効果により、所定の角度において位相が強められる条件で有機EL素子を設計する。この所定の角度において位相が強められる条件について、図3及び図4に示す構成を用いて説明する。

[0031] 図3及び図4には、透明基板20上に設けられた、透明電極21、発光ユニット22、及び、反射電極27の構成を示している。一般的にマイクロキャビティ効果は、放出される光の波長 λ 、各層の屈折率 n 、及び、光路長に依存する。なお、有機EL素子においては、発光させる光の波長 λ や屈折率 n については、設計の自由度が低いため、波長 λ や屈折率 n の調整では、マイクロキャビティ効果による最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ の調整が難しい。一方で、光路長は、有機EL素子の発光ユニットの厚さを変えるだけで調整できるため、設計の自由度が高い。すなわち、有機EL素子において、マイクロキャビティ効果による最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ の調整は、光路長の調整によって行なうことが好ましい。従って、以下の説明では、有機EL素子の光路長の調整により、最大強度角度 $\theta 1$ 、 $\theta 2$ 、 $\theta 3$ を調整することが可能な有機EL素子の設計について説明する。

[0032] 図3及び図4に示すように、発光点hからの光は、反射電極27での反射による位相変化、発光ユニット22での伝搬による位相変化、及び、透明電極21での反射による位相変化の影響を受ける。また、発光ユニット22の発光点hから放出される光の発光ユニット22での伝搬による位相変化は、発光点hから反射電極27までの距離 d 、及び、透明電極21から反射電極

27までの距離Lに影響を受ける。

[0033] 図3に示すように、反射電極27での反射による位相変化を ϕ_m とし、距離dの伝搬による位相変化を下記式(1)とすると、発光点hからの光の位相が強めあう距離dは、下記式(2)で表される。

[0034] [数1]

$$2(n_{EML} \cos \theta_{EML}) \frac{2\pi}{\lambda} d \quad \text{式(1)}$$

[0035] [数2]

$$2 \left[(n_{EML} \cos \theta_{EML}) \frac{2\pi}{\lambda} d \right] + \phi_m(\theta_{EML}) = 2m\pi \quad m = \{0, 1, 2, \dots\}$$

$$n_{EML} \sin \theta_{EML} = 1.0 \sin \theta \Rightarrow \theta_{EML} = \sin^{-1} \left(\frac{\sin \theta}{n_{EML}} \right) \quad \text{式(2)}$$

[0036] また、図4に示すように、透明電極21での反射による位相変化を考慮し、透明電極21での反射による位相変化を ϕ_e とし、距離Lの伝搬による位相変化を下記式(3)とすると、光の位相が強めあう距離Lは、下記式(4)で表される。

[0037] [数3]

$$2(n_{EML} \cos \theta_{EML}) \frac{2\pi}{\lambda} L \quad \text{式(3)}$$

[0038] [数4]

$$2 \left[(n_{EML} \cos \theta_{EML}) \frac{2\pi}{\lambda} L \right] + \phi_m(\theta_{EML}) + \phi_e(\theta_{EML}) = 2l\pi \quad l = \{0, 1, 2, \dots\} \quad \text{式(4)}$$

[0039] なお、 λ は真空中の波長、 θ_{EML} は発光ユニット内部の光の角度、 n_{EML} は発光ユニットの屈折率、 θ は空気中への光の出射角度（空気角度）を表し、それぞれスネルの法則に用いて関係付けられる。また、発光ユニット22と反射電極27との界面での反射による位相変化 ϕ_m と、発光ユニット22と透明電極21との界面での反射による位相変化 ϕ_e は角度によって変化する θ_{EML} の関数になっている。また、m及びlは、光の位相が強めあう繰り返し単位である。

[0040] ここで、特定の波長 λ の光が特定の角度 θ において強め合う距離 d は、上記式（２）から導かれる下記式（５）により与えられる。

[0041] [数5]

$$d = \frac{\lambda}{2n_{EML} \cos \theta_{EML}} \left[m - \frac{\phi_m}{2\pi} \right] \quad m = \{0, 1, 2, \dots\}$$

$$\theta_{EML} = \sin^{-1} \left(\frac{\sin \theta}{n_{EML}} \right)$$

式 (5)

[0042] また、特定の波長 λ の光が特定の角度 θ において強めあう距離 L は、上記式（４）から導かれる下記式（６）により与えられる。

[0043] [数6]

$$L = \frac{\lambda}{2n_{EML} \cos \theta_{EML}} \left[l - \frac{\phi_m + \phi_e}{2\pi} \right] \quad l = \{0, 1, 2, \dots\}$$

$$\theta_{EML} = \sin^{-1} \left(\frac{\sin \theta}{n_{EML}} \right)$$

式 (6)

[0044] 従って、発光ユニット２２の屈折率 n 、発光波長 λ 、及び、要求される最大強度角度 θ （ θ_1 、 θ_2 、 θ_3 ）の値を定めることにより、上記式（５）及び式（６）から、発光点 h から反射電極２７までの距離 d と、透明電極２１から反射電極２７までの距離 L とを求めることができる。この式（５）及び式（６）は、発光ユニットが積層された構成の有機ＥＬ素子においても適用できる。

[0045] 例えば、図２に示す有機ＥＬ素子においては、第１発光ユニット１２の発光点 h_1 から反射電極１７までの距離 d_1 、第２発光ユニット１４の発光点 h_2 から反射電極１７までの距離 d_2 、及び、第３発光ユニット１６の発光点 h_3 から反射電極１７までの距離 d_3 を、上記式（５）により求めることができる。

[0046] より詳細には、第１発光ユニット１２の発光点 h_1 から反射電極１７までの距離 d_1 は、第１発光ユニット１２の屈折率 n_1 、第１発光ユニット１２から放出される光 L_1 の波長 λ_1 、及び、目的とする第１発光ユニット１２か

ら放出される光 L_1 の最大強度角度 θ_1 の値を定めることにより、上記式（5）から求めることができる。なお、求められる距離 d_1 は、位相が強めあう周期に応じた、繰り返し単位 m 毎の値が式（5）から求められる。

[0047] 同様に、第2発光ユニット14の発光点 h_2 から反射電極17までの距離 d_2 、及び、第3発光ユニット16の発光点 h_3 から反射電極17までの距離 d_3 も、それぞれの発光ユニット14、16の屈折率 n_2 、 n_3 、光 L_2 、 L_3 の波長 λ_2 、 λ_3 、及び、目的とする光 L_2 、 L_3 の最大強度角度 θ_2 、 θ_3 を定めることにより、上記式（5）から求めることができる。距離 d_2 及び d_3 においても、位相が強めあう周期に応じた繰り返し単位 m 毎に、式（5）から値が求められる。

[0048] なお、各発光ユニットから放出される光は、他の発光ユニット中も通過する。このため、発光ユニット中の光の伝搬による位相変化は、光を放出した発光ユニットの屈折率だけでなく、他の発光ユニットの屈折率の影響も受ける。しかしながら、各発光ユニットは、通常、有機層系の材料を主体として形成され、屈折率が1.6～1.8程度であり、各発光ユニット同士の屈折率の差が小さい。このため、他の発光ユニットとの屈折率の差による距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L への影響は小さく、無視することができる。同様に、中間電極の屈折率の差異等による影響も、中間電極の膜厚が薄いため、距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L への影響が小さく、無視することができる。

[0049] また、図2に示す有機EL素子において、透明電極11から反射電極17までの距離 L は、光 L_1 、 L_2 、 L_3 のそれぞれのパラメータ（ n 、 λ 、 θ ）を定めることにより、上記式（6）から繰り返し単位 l 毎に求められる。この場合、透明電極11から反射電極17までの距離 L は、最も光強度を高めたい光に合わせることが好ましい。ここでは、最も視認性の低い光である、最も長波長の光（ L_1 ）に合わせて透明電極11から反射電極17までの距離 L を定めることが好ましい。最も視認性の低い光の強度が高められる条件を採用することにより、有機EL素子の発光効率を向上させやすくなる。

[0050] なお、透明電極 11 から反射電極 17 までの距離 L と、各発光点 h_1 , h_2 , h_3 から反射電極 17 までの距離 d_1 , d_2 , d_3 には、 $[d_1 < d_2 < d_3 < L]$ の関係が成り立つ。このため、各繰り返し単位 m , l 毎に求められる距離 L , d_1 , d_2 , d_3 から、上記関係が成り立つ任意の繰り返し単位 m , l をそれぞれ選択する。また、距離 L , d_1 , d_2 , d_3 は、小さい方が生産性やコスト面で有利となる。従って、最も長波長の光 L_1 が強まる距離 L の値を選択し、且つ、上記関係が成立する距離 d_1 , d_2 , d_3 を選択することが好ましい。なお、距離 L , d_1 , d_2 , d_3 における繰り返し単位 m , l は、それぞれ同じ周期数を選択する必要はなく、距離 L , d_1 , d_2 , d_3 毎に最も適当な周期数を選択することができる。

[0051] [設計の具体例]

図 2 に示す構成の有機 EL 素子について、上述の式 (5) 及び式 (6) を用いた設計方法の一例を示す。以下の説明では、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ 、 $[\theta_1 \leq \theta_3]$ 、及び、 $[\theta_2 \leq \theta_3]$ となるように、 $\theta_1 = 0^\circ$ 、 $\theta_2 = 18^\circ$ 、 $\theta_3 = 36^\circ$ を設計値とする有機 EL 素子の設計方法について説明する。

[0052] 第 1 発光ユニット 12 において、発光光 L_1 の波長 λ_1 を 620 nm 、第 1 発光ユニット 12 の屈折率 n_1 を 1.74 とする。この構成において、発光光 L_1 の最大強度角度 θ_1 を 0° とする場合には、式 (5) 及び式 (6) から空気角度 0° において位相が強めあう距離 L , d_1 を算出する。このとき、フレネル反射率の式より、 $\theta_{\text{EML}1} = 0^\circ$ 、 $\Phi_m = -0.83\pi$ 、 $\Phi_e = -0.63\pi$ とすることで式 (5) 及び式 (6) から距離 L , d_1 を下記のように求めることができる。下記のように、距離 L , d_1 は、光 L_1 の 0° 方向の光強度が最大となる長さ（厚さ）が繰り返し単位 m (m_1 , m_2 , m_3), l (l_1 , l_2 , l_3) 毎の値として求められる。

[0053] $d_1 = 74 \text{ nm}$ ($m_1 = 0$), 252 nm ($m_1 = 1$), 430 nm ($m_1 = 2$), 608 nm ($m_1 = 3$), 787 nm ($m_1 = 4$), 965 nm ($m_1 = 5$), 1143 nm ($m_1 = 6$), 1321 nm ($m_1 = 7$) ……

[0054] $L = 130 \text{ nm}$ ($l_1 = 0$), 308 nm ($l_1 = 1$), 486 nm ($l_1 =$

2), 665 nm ($l_1=3$), 843 nm ($l_1=4$), 1021 nm ($l_1=5$), 1199 nm ($l_1=6$), 1377 nm ($l_1=7$) ...

[0055] 同様に、第2発光ユニット14において、発光光L2の波長 λ_2 を530 nm、第2発光ユニット14の屈折率 n_2 を1.74とする。この構成において、発光光L2の最大強度角度 θ_2 を 18° とする場合には、 $\theta_{EML2}=10^\circ$ となり、式(5)及び式(6)から位相が強めあう距離 L , d_2 が下記のように求められる。

[0056] $d_2=64$ nm ($m_2=0$), 217 nm ($m_2=1$), 370 nm ($m_2=2$), 523 nm ($m_2=3$), 676 nm ($m_2=4$), 829 nm ($m_2=5$), 982 nm ($m_2=6$), 1135 nm ($m_2=7$) ...

[0057] $L=112$ nm ($l_2=0$), 265 nm ($l_2=1$), 418 nm ($l_2=2$), 571 nm ($l_2=3$), 724 nm ($l_2=4$), 877 nm ($l_2=5$), 1030 nm ($l_2=6$), 1183 nm ($l_2=7$) ...

[0058] さらに、第3発光ユニット16において、発光光L3の波長 λ_3 を460 nm、第3発光ユニット16の屈折率 n_3 を1.74とする。この構成において、発光光L3の最大強度角度 θ_3 を 36° とする場合には、 $\theta_{EML3}=20^\circ$ となり、式(5)及び式(6)から位相が強めあう距離 L , d_3 が下記のように求められる。

[0059] $d_3=56$ nm ($m_3=0$), 191 nm ($m_3=1$), 326 nm ($m_3=2$), 460 nm ($m_3=3$), 595 nm ($m_3=4$), 730 nm ($m_3=5$), 865 nm ($m_3=6$), 1000 nm ($m_3=7$) ...

[0060] $L=98$ nm ($l_3=0$), 233 nm ($l_3=1$), 368 nm ($l_3=2$), 503 nm ($l_3=3$), 638 nm ($l_3=4$), 772 nm ($l_3=5$), 907 nm ($l_3=6$), 1042 nm ($l_3=7$) ...

[0061] 上記のように繰り返し単位 m (m_1 , m_2 , m_3), l (l_1 , l_2 , l_3) 毎に求められた距離 L , d_1 , d_2 , d_3 から、 $[d_1 < d_2 < d_3 < L]$ の関係を満たす値を選択することにより、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ 、 $[\theta_1 \leq \theta_3]$ 、及び、 $[\theta_2 \leq \theta_3]$ を実現することが可能な有機EL素子を設計することができ

る。上記の例では、 $L = 486 \text{ nm}$ ($l_1 = 2$)、 $d_1 = 74 \text{ nm}$ ($m_1 = 0$)、 $d_2 = 217 \text{ nm}$ ($m_2 = 1$)、 $d_3 = 326 \text{ nm}$ ($m_3 = 2$)を採用することにより、 $[\theta_1 (\div 0^\circ, 620 \text{ nm 光}) < \theta_2 (\div 18^\circ, 530 \text{ nm 光}) < \theta_3 (\div 36^\circ, 460 \text{ nm 光})]$ の関係を満たし、且つ、 $[d_1 < d_2 < d_3 < L]$ を満たし、さらに、総厚の小さい有機EL素子を作製することができる。なお、距離 L は、表面輝度を高めたい最も長波長の光(L_1)の値から選択した。

[0062] 上述のように、有機EL素子の設計において上記距離 L 、 d_1 、 d_2 、 d_3 を選択することにより、長波長の光の正面輝度が上がり、発光ユニットの消費電力が正面輝度に対して相対的に小さくなる。従って、発光効率、及び、消費電力の小さい有機EL素子を実現することができる。また、長波長の光の正面輝度が上がるため、有機EL素子の正面方向において長波長の光の視認性が向上し、色ずれによるパネル表示品位の低下を抑制することができる。

[0063] なお、有機EL素子の構成や、各発光ユニットの屈折率 n 、発光波長 λ 、最大強度角度 θ は、任意の値であり、種々変更可能である。一般的には、発光ユニットの数が n であり、発光の視認側から各発光ユニットを単体で発光させた場合の最大強度角度を θ_1 、 θ_2 、 θ_3 、 $\dots$ 、 θ_n としたとき、 $[\theta_1 \leq \theta_2 \leq \theta_3 \leq \dots \leq \theta_n]$ を満たすことが好ましい。実際の有機EL素子においては、成膜した素子やパネルにおいて、発光ユニット毎に放出される光の強度の角度依存性を調べることにより、各発光ユニットの最大強度角度 θ を判別することができる。

[0064] また、実際の有機EL素子の設計に当たっての距離 d は、上述の式(5)で求められる数値から $\pm 5 \text{ nm}$ の範囲内とすることが好ましく、 $\pm 3 \text{ nm}$ の範囲内とすることがより好ましい。また、実際の有機EL素子の設計に当たっての距離 L は、上述の式(6)で求められ、選択された数値から $\pm 15 \text{ nm}$ の範囲内とすることが好ましく、 $\pm 10 \text{ nm}$ の範囲内とすることがより好ましい。上述の設計例では、発光位置が正孔輸送側と発光層との界面であると想定して距離 d を算出しているが、素子のキャリアバランスによっては、

発光層の膜厚分程度（20～30 nm）の範囲内で、計算上の発光位置からの距離と実際の発光位置からの距離との差が想定されるためである。

実際の有機EL素子において、距離 d 、 L の数値が上記の範囲内で形成されていれば、上述の有機EL素子としての効果を発揮することが可能である。

[0065] なお、有機EL素子の作製にあたって、距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L の調整は、各発光ユニットの正孔輸送層、又は、電子輸送層の厚さで調整することが好ましい。或いは、電子又は正孔移動度の高い材料で厚さ調整することが好ましい。距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L の調整に、これらの層を用いることにより、有機EL素子の電圧上昇が小さく、厚さが増加することによるデメリットを最小化できる。

[0066] また、長波長の光の正面輝度を上げ、有機EL素子の消費電力を小さくするためには、最も波長の長い光（ L_1 ）を放出する第1発光ユニットの〔全光束／正面輝度〕を P_1 、 L_1 の次に長い波長の光（ L_2 ）を放出する第2発光ユニットの〔全光束／正面輝度〕を P_2 としたとき、〔 $P_1 \leq P_2$ 〕を満たすことが好ましい。また、有機EL素子が第2発光ユニットよりも波長の短い光（ L_3 ）を放出する第3発光ユニットを有する場合には、第3発光ユニットの〔全光束／正面輝度〕を P_3 としたとき、〔 $P_1 \leq P_2 \leq P_3$ 〕を満たすことが好ましい。

[0067] なお、〔 P ＝全光束／正面輝度〕は、光の角度依存性がランバーティアン曲線となる場合に $P = 3.14$ となる。また、正面集光タイプに近い程3.14よりも小さくなり、 $P = 2$ で 0° 方向が長径方向の楕円となる。 P が3.14を超えると角度依存性の分布が横方向に広がり、 $P = 4$ のときにいわゆるハート型形状となる。 P の大小を比較することにより、各発光ユニットにおいて正面輝度が強められているかどうかを定量的に判断することができる。

[0068] 〈2. 有機エレクトロルミネッセンス素子、発光装置の実施形態〉

以下、本発明の実施形態を、有機EL素子、有機EL素子の製造方法、発

光装置の順に、図面に基づいて説明する。

[0069] [有機ＥＬ素子]

図５は、実施形態の有機ＥＬ素子１の概略を示す断面構成図である。

図５に示す有機ＥＬ素子１は、透明基板（不明示）の一主面上に設けられており、透明基板側から順に、透明電極２、第１発光ユニット４、中間電極６、第２発光ユニット８、及び、反射電極１０が積層されている。有機ＥＬ素子１は、第１発光ユニット４と第２発光ユニット８とが、それぞれ個別の光学特性を有する材料を用いて構成されている。このため、これらの第１発光ユニット４、及び、第２発光ユニット８は、それぞれ波長の異なる光を放出する。また、有機ＥＬ素子１は、第１発光ユニット４の発光領域で得られた第１発光光と、第２発光ユニット８の発光領域で得られた第２発光光とが、透明基板側から取り出されるボトムエミッション型として構成されている。

[0070] また、有機ＥＬ素子１において、透明電極２と中間電極６とには外部から電源５が接続され、中間電極６と反射電極１０とには外部から電源７が接続されている。透明電極２、中間電極６、及び、反射電極１０は、電源５，７を介して制御部９によってそれぞれ独立に制御可能である。

[0071] [透明基板]

透明基板は、可視光のうち特に第１発光ユニット４で発生させた第１発光光、及び、第２発光ユニット８で発生させた第２発光光に対する光透過性を有する。透明基板を構成する透明な基板材料としては、例えば、ガラス、石英、樹脂基板を挙げることができる。特に好ましい透明基板としては、有機ＥＬ素子１にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂基板である。樹脂基板は、必要に応じてガスバリア層を有する構成であってもよい。

[0072] 樹脂基板を構成する樹脂材料には、従来公知の樹脂材料が用いられる。例えば、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、ポリメチルメタクリレート（ＰＭＭＡ）等のアクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート（ＰＥＮ）、

ポリカーボネート（PC）、ポリアリレート、ポリ塩化ビニル（PVC）、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、ポリスチレン（PS）、ナイロン（Ny）、芳香族ポリアミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリスルホン、ポリエーテルスルホネート、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリオレフィン、エポキシ樹脂等の各樹脂フィルムが挙げられ、さらに、シクロオレフィン系やセルロースエステル系の樹脂も用いることができる。また、有機無機ハイブリッド構造を有するシルセスキオキサンを基本骨格とした耐熱透明フィルム（製品名Silica-DEC、チッソ株式会社製）、更には樹脂材料を二層以上積層して成る樹脂フィルム等が挙げられる。

[0073] [透明電極]

透明電極2は、電源5を介して中間電極6と電氣的に接続された状態となっている。透明電極2は、第1発光ユニット4に対する陽極又は陰極として設けられる。中間電極6が陰極の場合には陽極として用いられ、中間電極6が陽極の場合には陰極として用いられる。また、透明電極2は、可視光のうち、特に第1発光ユニット4で発生させた第1発光光及び、第2発光ユニット8で発生させた第2発光光に対する光透過性を有する。

[0074] 透明電極2は、陽極又は陰極としてそれぞれに適切な導電性材料から、上述した光透過性に優れた導電性材料を用いて構成される。透明電極2に好適に用いられる導電性材料としては、例えばITO、ZnO、TiO₂、SnO₂等の酸化物半導体等の透明導電性材料が挙げられる。

[0075] また、透明電極2は、金属を主成分とした金属薄膜で構成されていてもよい。金属薄膜とは、厚さが8～30nmの範囲内の金属膜である。金属薄膜に含まれる金属は、導電性の高い金属であれば特に制限されず、例えば銀、銅、金、白金族、チタン、クロム等が例示される。透明電極2には、これらの金属が1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0076] 導電性の高さという観点から、透明電極2は、銀を主成分として構成され、銀又は銀を主成分とする合金で構成されていることが好ましい。透明電極2を構成する銀（Ag）を主成分とする合金としては、例えば、銀マグネシ

ウム (AgMg)、銀銅 (AgCu)、銀パラジウム (AgPd)、銀パラジウム銅 (AgPdCu)、銀インジウム (AgIn) 等が挙げられる。

[0077] また、透明電極 2 が金属薄膜から構成される場合、透明電極 2 が下地層上に設けられていることが好ましい。下地層は、透明電極 2 の透明基板側に設けられる層である。下地層を構成する材料としては、特に限定されるものではなく、例えば、銀又は銀を主成分とする合金からなる透明電極 2 の成膜に際し、銀の凝集を抑制する作用を有することが好ましく、一例として窒素含有化合物、又は、硫黄含有化合物等が挙げられる。

[0078] 透明電極 2 は、シート抵抗が $30 \Omega / \text{sq.}$ 以下であることが好ましく、 $10 \Omega / \text{sq.}$ 以下であることがより好ましい。また透明電極 2 は、波長 550 nm における光透過率が 30% 以上であることが好ましく、 50% 以上であることがより好ましい。

[0079] [発光ユニット]

発光ユニットは、有機材料を用いて構成された発光層を有する。複数の発光ユニットのうち反射電極 10 側に、第 1 発光ユニット 4 が設けられる。この第 1 発光ユニット 4 は、少なくとも有機材料で構成された発光層を含む積層体である。また、第 1 発光ユニット 4 の積層構造が限定されることはなく、下記 (i) ~ (v) に例を示すような一般的な積層構造の何れかであってよく、さらに必要に応じた層を有していてもよい。なお、発光ユニットを構成する各層の詳細は後述する。

[0080] (i) (陽極) / 正孔注入輸送層 / 発光層 / 電子注入輸送層 / (陰極)

(ii) (陽極) / 正孔注入輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子注入輸送層 / (陰極)

(iii) (陽極) / 正孔注入輸送層 / 電子阻止層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子注入輸送層 / (陰極)

(iv) (陽極) / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / (陰極)

(v) (陽極) / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送

層／電子注入層／（陰極）

（v i）（陽極）／正孔注入層／正孔輸送層／電子阻止層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／（陰極）

[0081] 第2発光ユニット8は、有機材料を用いて構成された発光層を有する複数の発光ユニットのうち第1発光ユニット4よりも透明電極2側に配置される。この第2発光ユニット8は、第1発光ユニット4と同様に少なくとも有機材料で構成された発光層を含む積層体である。また、第2発光ユニット8の積層構造が限定されることはなく、上記（i）～（v i）に例を示すような一般的な積層構造の何れかであってよく、さらに必要に応じた層を有していてもよい。また第2発光ユニット8は、第1発光ユニット4とは異なる積層構造であってもよく、上記（i）～（v i）の積層順が逆であってもよい。

[0082] [中間電極]

中間電極6は、第1発光ユニット4に対する陽極又は陰極として設けられるものであり、透明電極2が陽極の場合には陰極として用いられ、透明電極2が陰極の場合には陽極として用いられる。また中間電極6は、第2発光ユニット8に対する陽極又は陰極としても用いられるものであり、反射電極10が陽極の場合には陰極として用いられ、反射電極が陰極の場合には陽極として用いられる。また、中間電極6は、電源5を介して透明電極2と電氣的に接続され、電源7を介して反射電極10と電氣的に接続されている。

[0083] 中間電極6は、上述の透明電極2に適する材料の中から、光透過性に優れた導電性材料を用いて構成される。中間電極6は、透明電極2と同程度のシート抵抗及び光透過率を備えていることが好ましい。

[0084] [反射電極]

反射電極10は、第2発光ユニット8に対する陽極又は陰極として設けられ、中間電極6が陰極の場合には陽極として用いられ、中間電極6が陽極の場合には陰極として用いられる。反射電極10は、電源7を介して中間電極6と電氣的に接続された状態となっている。

[0085] 反射電極10は、可視光のうち特に第1発光ユニット4で発生させた第1

発光光及び、第2発光ユニット8で発生させた第2発光光に対して、良好な反射特性を有していることが好ましい。このような反射電極10は、陰極又は陽極として適切な導電性材料から、反射特性に優れた金属材料を用いて構成される。例えば反射電極10は、金、白金、銀、銅、アルミニウム等から構成される。

[0086] [電源]

電源のうち、一方の電源5は、透明電極2と中間電極6とに接続されている。この電源5は、透明電極2、及び、中間電極6のうち、第1発光ユニット4に対する陽極側にプラス極が接続され、陰極側にマイナス極が接続されている。また、他方の電源7は、中間電極6と反射電極10とに接続されている。この電源7は、中間電極6、及び、反射電極10のうち、第2発光ユニット8に対する陽極側にプラス極が接続され、陰極側にマイナス極が接続されている。

[0087] 図5に示す有機EL素子1の構成では、透明電極2が第1発光ユニット4の陽極として電源5のプラス極に接続され、中間電極6が第1発光ユニット4の陰極として電源5のマイナス極に接続されている。また、中間電極6が第2発光ユニット8の陽極として電源7のプラス極に接続され、反射電極10が第2発光ユニット8の陰極として電源7のマイナス極に接続されている。なお、第1発光ユニット4及び第2発光ユニット8の積層構造が逆の場合は、電源5、7との接続を逆にすればよい。

[0088] 電源5、7は、制御部9によって透明電極2、中間電極6、及び、反射電極10に印加する電圧、及び、電流が制御される構成となっている。制御部9は、例えばコンピュータによって構成することができる。これにより、第1発光ユニット4と第2発光ユニット8の発光割合や発光量を制御することができ、調光性・調色性を高めることができる。また、第1発光ユニット4と第2発光ユニット8とを個別に発光制御することも可能である。また、制御部9は、第1発光ユニット4、及び、第2発光ユニット8への供給電流の合計を一定にする制御や、視感度の大きい発光ユニットの電流を一定にする

制御を行う。このような制御によって、有機EL素子の効果的な調光・調色を行うことができる。

[0089] なお、有機EL素子1は、少なくとも2つの電源を有していればよいが、さらに多数の電源を有していてもよい。しかしながら、装置を複雑化させないため、電源は電極の数より少ないことが好ましい。

[0090] [その他の構成]

有機EL素子1には、透明基板上において、透明電極2から反射電極10までを覆う封止材を有することが好ましい。さらに、この封止材を覆う保護部材を設けてもよい。保護部材は、有機EL素子1を機械的に保護するためのものであり、特に封止材が封止膜である場合には、有機EL素子1に対する機械的な保護が十分ではないため、保護部材を設けることが好ましい。保護部材には、ガラス板、ポリマー板、ポリマーフィルム、金属板、金属フィルム、又は、ポリマー材料膜や金属材料膜が適用される。これらのうち、軽量かつ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

[0091] また、有機EL素子1は、第1発光ユニット4、及び、第2発光ユニット8において発生させた第1発光光、及び、第2発光光を効率よく取り出すための光取り出し層を、必要に応じて必要部分に有していてもよい。さらに、有機EL素子1は、発光領域と重なることのない位置において、透明電極2、及び、中間電極6に接続する導電性の良好な補助電極を有していてもよい。補助電極を構成する材料は、金、白金、銀、銅、アルミニウム等の抵抗の低い金属が好ましい。

[0092] [有機EL素子の駆動]

以上のように構成された有機EL素子1は、透明電極2と中間電極6との間に所定の状態で電圧を印加することにより、第1発光ユニット4の発光領域に第1発光光が発生する。この第1発光光は、透明電極2、及び、透明基板を透過し、透明基板の光取り出し面側で発光領域として観察される。また、中間電極6と反射電極10との間に所定の状態で電圧を印加することにより、第2発光ユニット8の発光領域に第2発光光が発生する。この第2発光

光は、透明電極 2、及び、透明基板を透過し、透明基板の光取り出し面側で発光領域として観察される。

[0093] また、透明電極 2、中間電極 6、及び、反射電極 10 に所定の状態で電圧を印加した場合には、第 1 発光ユニット 4 の発光領域、及び、第 2 発光ユニット 8 の発光領域を重ね合わせた形状の発光が観察される。なお、有機 EL 素子の駆動は、交流電圧の印加によってもよく、印加する交流の波形は任意でよい。

[0094] [その他の変形構成]

以上説明した有機 EL 素子は、第 1 発光ユニット 4、及び、第 2 発光ユニット 8 の 2 つの発光ユニットが積層された構成である。しかしながら、有機 EL 素子 1 は、さらに複数の発光ユニットが積層された構成であってもよい。この場合であっても、透明電極 2 側の発光ユニットと、それよりも反射電極 10 側の発光ユニットとの光学特性の関係が、上述した第 1 発光ユニット 4 と第 2 発光ユニット 8 との関係であればよい。

[0095] [第 1 発光ユニット、及び、第 2 発光ユニットを構成する各層の材料]

第 1 発光ユニット 4、及び、第 2 発光ユニット 8 を構成する各層の構成材料の詳細を以下に示す。第 1 発光ユニット 4、及び、第 2 発光ユニット 8 は、以下に示す材料の中から、有機 EL 素子の構成に適する材料が用いられる。

[0096] [発光層]

発光層は、陰極側から注入された電子と、陽極側から注入された正孔とが再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接する層との界面であってもよい。発光層には発光材料としてリン光発光化合物が含有されていることが好ましい。尚、発光材料として、蛍光材料が使用されてもよいし、リン光発光化合物と蛍光材料とを併用してもよい。また、発光層は、複数の発光材料を含有してもよい。

[0097] 発光層としては、含まれる発光材料が発光要件を満たしていれば、その構成には特に制限はない。また、同一の発光スペクトルや発光極大波長を有す

る層が複数層あってもよい。この場合、各発光層間には、非発光性の中間層（図示略）を有していることが好ましい。

[0098] 発光層の膜厚の総和は1～100nmの範囲内であることが好ましく、より低い駆動電圧を得ることができることから1～40nmの範囲内であることがより好ましい。発光層の膜厚の総和とは、発光層間に非発光性の中間層が存在する場合には、中間層も含まれる。但し、中間コネクタを介して複数の発光層ユニットを積層する、いわゆるタンデム型素子の場合には、ここでいう発光層とは中間コネクタ部を含まない各発光ユニット内の発光層の総和である。

[0099] 複数の層を積層した構成の発光層の場合、個々の発光層の膜厚としては、1～50nmの範囲内に調整することが好ましく、更に、1～20nmの範囲内に調整することがより好ましい。積層された複数の発光層が、青、緑、赤のそれぞれの発光色に対応する場合、青、緑、赤の各発光層の膜厚の関係については、特に制限はない。

[0100] 以上のような発光層は、公知の発光材料やホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜形成方法により成膜して形成することができる。

[0101] 発光層の構成としては、ホスト化合物（発光ホスト等ともいう）と、発光材料（発光ドーパントともいう）とを含有し、発光材料から発光することが好ましい。適用可能な発光ドーパントとしては、例えば、国際公開第2005/076380号、国際公開第2010/032663号、国際公開第2008/140115号、国際公開第2007/052431号、国際公開第2011/134013号、国際公開第2011/157339号、国際公開第2010/086089号、国際公開第2009/113646号、国際公開第2012/020327号、国際公開第2011/051404号、国際公開第2011/004639号、国際公開第2011/073149号、特開2012-069737号公報、特開2009-114086号公報、特開2003-81988号公報、特開2002-302671号

公報、特開2002-363552号公報等に記載の化合物を挙げることができる。

[0102] また、ホスト化合物としては、例えば、特開2001-257076号公報、特開2002-308855号公報、特開2001-313179号公報、特開2002-319491号公報、特開2001-357977号公報、特開2002-334786号公報、特開2002-8860号公報、特開2002-334787号公報、特開2002-15871号公報、特開2002-334788号公報、特開2002-43056号公報、特開2002-334789号公報、特開2002-75645号公報、特開2002-338579号公報、特開2002-105445号公報、特開2002-343568号公報、特開2002-141173号公報、特開2002-352957号公報、特開2002-203683号公報、特開2002-363227号公報、特開2002-231453号公報、特開2003-3165号公報、特開2002-234888号公報、特開2003-27048号公報、特開2002-255934号公報、特開2002-260861号公報、特開2002-280183号公報、特開2002-299060号公報、特開2002-302516号公報、特開2002-305083号公報、特開2002-305084号公報、特開2002-308837号公報、米国特許公開第2003/0175553号明細書、米国特許公開第2006/0280965号明細書、米国特許公開第2005/0112407号明細書、米国特許公開第2009/0017330号明細書、米国特許公開第2009/0030202号明細書、米国特許公開第2005/238919号明細書、国際公開第2001/039234号、国際公開第2009/021126号、国際公開第2008/056746号、国際公開第2004/093207号、国際公開第2005/089025号、国際公開第2007/063796号、国際公開第2007/063754号、国際公開第2004/107822号、国際公開第2005/030900号、国際公開第2006/114966号、国際公開第2

009/086028号、国際公開第2009/003898号、国際公開第2012/023947号、特開2008-074939号公報、特開2007-254297号公報、EP第2034538号明細書等に記載されている化合物を挙げることができる。

[0103] [正孔注入層／電子注入層]

注入層は、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と発光層の間に設けられる層であり、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に、その詳細が記載されている。有機EL素子において、注入層としては正孔注入層と電子注入層とがある。

[0104] 注入層は、必要に応じて設けることができる層である。正孔注入層であれば陽極と発光層又は正孔輸送層との間、電子注入層であれば陰極と発光層又は電子輸送層との間に配置される。

[0105] 正孔注入層は、特開平9-45479号公報、特開平9-260062号公報、特開平8-288069号公報等にもその詳細が記載され、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン層、酸化バナジウムに代表される酸化物層、アモルファスカーボン層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子層等が挙げられる。また、特表2003-519432号公報に記載された材料を使用することもできる。

[0106] 電子注入層は、特開平6-325871号公報、特開平9-17574号公報、特開平10-74586号公報等にもその詳細が記載され、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属層、フッ化カリウムに代表されるアルカリ金属ハライド層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物層、酸化モリブデンに代表される酸化物層等が挙げられる。電子注入層は、ごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は1nm～10μmの範囲が好ましい。

[0107] [正孔輸送層]

正孔輸送層は、正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、電子の障壁性のいずれかの特性を有する。

[0108] 正孔輸送材料は、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー、チオフェンオリゴマー等が挙げられる。更に、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、芳香族第3級アミン化合物を用いることができる。

[0109] 芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、例えば、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノフェニル、N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(略称:TPD)、2, 2-ビス(4-ジー-p-トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ジー-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N' -テトラ-p-トリル-4, 4' -ジアミノビフェニル、1, 1-ビス(4-ジー-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジー-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N' -ジフェニル-N, N' -ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4' -ジアミノビフェニル、N, N, N', N' -テトラフェニル-4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル、4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N-トリ(p-トリル)アミン、4-(ジー-p-トリルアミノ)-4'-[4-(ジー-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミ

ノー（２－ジフェニルビニル）ベンゼン、３－メトキシ－４’－Ｎ，Ｎ－ジフェニルアミノスチルベンゼン、Ｎ－フェニルカルバゾール、さらには米国特許第５０６１５６９号明細書に記載されている２個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、４，４’－ビス〔Ｎ－（１－ナフチル）－Ｎ－フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：ＮＰＤ）、特開平４－３０８６８８号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが３つスターバースト型に連結された４，４’，４’’－トリス〔Ｎ－（３－メチルフェニル）－Ｎ－フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：ＭＴＤＡＴＡ）等が挙げられる。

[0110] さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、又は、これらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、ｐ型－Ｓｉ、ｐ型－ＳｉＣ等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。また、特開平１１－２５１０６７号公報、Ｊ．Ｈｕａｎｇ ｅｔ ． ａ ｌ ． ， Ａ ｐ ｐ ｌ ｉ ｅ ｄ Ｐ ｈ ｙ ｓ ｉ ｃ ｓ Ｌ ｅ ｔ ｔ ｅ ｒ ｓ ， ８ ０ （ ２ ０ ０ ２ ） ， ｐ ． １ ３ ９ に記載されているような、いわゆるｐ型正孔輸送材料を用いることもできる。より高効率の発光素子が得られることから、これらの材料を用いることが好ましい。

[0111] 正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、ＬＢ法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は５ｎｍ～５μｍ程度、好ましくは５～２００ｎｍである。この正孔輸送層は、上記材料の１種又は２種以上からなる一層構造であってもよい。

[0112] また、正孔輸送層の材料に不純物をドーピングして輸送性を高くすることもできる。その例としては、特開平４－２９７０７６号公報、特開２０００－１９６１４０号公報、特開２００１－１０２１７５号公報、Ｊ．Ａｐｐｌ．Ｐｈｙｓ．， ９５， ５７７３（２００４）等に記載の構成を適用することができる。

[0113] [電子輸送層]

電子輸送層は、電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層（図示略）も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層構造又は複数層の積層構造として設けることができる。

[0114] 単層構造の電子輸送層、及び、積層構造の電子輸送層において、発光層に隣接する層部分を構成する電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、陰極から注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよい。このような材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン、アントロン誘導体及びオキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送層の材料として用いることができる。さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、又はこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

[0115] また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（略称：Alq3）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（略称：Znq）等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送層の材料として用いることができる。

[0116] その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又は、それらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送層の材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料としても例示されるジスチリルピラジン誘導体も電子輸送層の材料として用いることができ

るし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送層の材料として用いることができる。

[0117] 電子輸送層は、上記材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm～5μm程度、好ましくは5～200nmである。電子輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

[0118] また、電子輸送層に不純物をドーピングし、輸送性を高くすることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、特開平10-270172号公報、特開2000-196140号公報、特開2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。さらに電子輸送層には、カリウムやカリウム化合物等を含有させることが好ましい。カリウム化合物としては、例えば、フッ化カリウム等を用いることができる。このように電子輸送層のn性を高くすると、より低消費電力の素子を作製することができる。

[0119] また電子輸送層の材料（電子輸送性化合物）として、上述した下地層を構成する材料と同様のものを用いてもよい。これは、電子注入層を兼ねた電子輸送層であっても同様であり、上述した下地層を構成する材料と同様のものを用いてもよい。

[0120] [電子阻止層／正孔阻止層]

正孔阻止層としては、例えば、特開平11-204258号公報、特開平11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

[0121] 正孔阻止層とは、広い意味では、電子輸送層の機能を有する。正孔阻止層は、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再

結合確率を向上させることができる。また、電子輸送層の構成を、必要に応じて正孔阻止層として用いることができる。正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

[0122] 一方、電子阻止層とは、広い意味では、正孔輸送層の機能を有する。電子阻止層は、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。正孔阻止層の膜厚としては、好ましくは3～100nmの範囲内であり、さらに好ましくは5～30nmの範囲内である。

[0123] [有機EL素子の製造方法]

(積層工程)

有機EL素子1の製造では、透明基板上に、透明電極2、第1発光ユニット4、中間電極6、第2発光ユニット8、及び、反射電極10をこの順に成膜する。また、透明電極2、及び、中間電極6の成膜の前には、必要に応じて下地層の成膜を行う。

[0124] これらの各部材の成膜に際しては、各部材に適する成膜方法をそれぞれ適用すればよい。成膜方法としては、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を例示することができる。

[0125] 各部材の成膜に際しては、必要に応じてマスクを用いた成膜を実施することにより、各部材を所定形状にパターニングすることができる。また各部材は、それぞれを成膜した後に、成膜された各層を所定形状にパターニングするようにしてもよい。また透明電極2、及び、中間電極6の成膜の前後には、必要に応じて補助電極のパターン形成を行ってもよい。積層工程は、1回の真空引きで一貫して透明電極2から反射電極10までを成膜する手順で実

施することが好ましい。

[0126] (封止工程)

次に、図示は省略したが、反射電極 10 側から封止を行う。ここでは、透明電極 2、中間電極 6、及び、反射電極 10 の端子部分を露出させた状態で、透明基板との間に透明電極 2 から反射電極 10 までの積層体を覆うように封止材を設け、さらに必要に応じて封止材を介した保護部材を貼り合わせる。

[0127] [発光装置]

以上のようにして得られる実施形態の有機 EL 素子 1 は、面状の発光装置として利用することができる。発光装置は、複数の有機 EL 素子 1 を用いることにより、発光面を大面積化することもできる。この場合、複数の有機 EL 素子 1 を支持基板上に配列する（すなわち、タイリングする）ことによって発光面を大面積化する。支持基板は、封止材を兼ねてもよく、支持基板と有機 EL 素子 1 の透明基板との間に、透明電極 2 から反射電極 10 までの積層体を挟持する状態で、有機 EL 素子 1 をタイリングする。支持基板と透明基板との間には接着剤を充填し、これによって有機 EL 素子 1 の透明電極 2 から反射電極 10 までを封止してもよい。なお、支持基板の周囲には、透明電極 2、中間電極 6、及び、反射電極 10 の端子を露出させておく。

[0128] このような構成の発光装置では、複数の有機 EL 素子に形成した発光領域をつなぎ合わせた大面積の発光領域をパターン表示することができる。尚、このような構成においては、各有機 EL 素子の繋ぎ目に非発光領域が発生する。このため、特に有機 EL 素子間において発光領域の繋ぎ目となる非発光領域に、光取出し量を増加させるための光取出し部材を設けてもよい。光取出し部材としては、集光シートや光拡散シートを用いることができる。

実施例

[0129] 実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「質量%」を表す。

[0130] 〈有機EL素子の作製〉

以下の方法により、 $8\text{ mm} \times 8\text{ mm}$ の素子面積を有する試料101～106の有機EL素子を作製した。なお、各試料の有機EL素子は、各発光ユニットの最大強度角度（ θ_1 、 θ_2 、 θ_3 ）が設計値となるように、上述の実施形態の設計方法で、第1発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_1 、第2発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_2 、及び、第3発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_3 、及び、透明電極から反射電極までの距離 L を求めた。そして、この距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L の設計値（距離）となるように、有機EL素子の発光ユニットの各層の厚さを調整した。

[0131] 各試料の有機EL素子の設計値となる最大強度角度（ θ_1 、 θ_2 、 θ_3 ）、並びに、距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L の設計値（距離）を下記表1に示す。なお、表1において、Bは波長460nmの光を放出する発光ユニットであり、Rは波長620nmの光を放出する発光ユニットであり、Gは波長520nmの光を放出する発光ユニットであり、Yは波長580nmの光を放出する発光ユニットである。

[0132] [試料101の有機EL素子の作製]

（1）透明電極の形成

まず、透明基板として、厚さ0.7mmのガラス基板を準備した。この透明基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。そして、この透明基板上に、Ag（銀）を15nmの厚さでマスク蒸着して、陽極となる透明電極を形成した。

[0133] （2）第3発光ユニットの形成

次に、透明電極を形成した透明基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定した。そして、第3発光ユニットを構成する各層の材料を、真空蒸着装置内の各蒸着用るつばに素子作製に最適な量を充填した。各蒸着用るつばとして、モリブデン製又はタングステン製の抵抗加熱用材料で作製された蒸着用るつばを用いた。

[0134] (2. 1) 正孔注入層の形成

真空度 1×10^{-4} Pa まで減圧した後、下記化合物 (HAT-CN: ヘキサザトリフェニレンヘキサカルボニトリル) の入った蒸着用るつばに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で透明電極上に蒸着し、層厚 5 nm の正孔注入層を形成した。

[0135] (2. 2) 正孔輸送層の形成

次に、下記化合物 1-A (ガラス転移点 (T_g) = 140°C) を層厚 142 nm になるように蒸着し、正孔輸送層を形成した。

[0136] (2. 3) 電子阻止層の形成

次に、下記化合物 1-B を、層厚 20 nm になるように蒸着し、電子阻止層を形成した。

[0137] (2. 4) 発光層の形成

次に、ホスト化合物として下記化合物 2-A ($T_g = 189^\circ\text{C}$) が $98 \text{ vol\%}$ 、青色蛍光発光ドーパントとして下記化合物 2-B が $2 \text{ vol\%}$ となるように蒸着し、青色 (B) を呈する層厚 20 nm の蛍光発光層を形成した。

[0138] (2. 5) 電子輸送層の形成

次に、下記化合物 3 が $86 \text{ vol\%}$ 、LiF が $14 \text{ vol\%}$ となるように発光層上に蒸着し、層厚 20 nm の層を形成した。さらに、化合物 3 が $98 \text{ vol\%}$ 、Li が $2 \text{ vol\%}$ となるように蒸着し、層厚 10 nm の層を形成した。これにより、化合物 3 及び LiF と、化合物 3 及び Li との 2 層からなる電子注入層を兼ねた電子輸送層を形成し、正孔注入層から電子輸送層までの積層構造の第 3 発光ユニットを形成した。

[0139] (3) 第 1 中間電極の形成

次に、第 3 発光ユニット上に、Ag を厚さ 10 nm で成膜し、第 1 中間電極を形成した。

[0140] (4) 第 2 発光ユニットの形成

発光層以外は、第 3 発光ユニットと同様の材料を用いた同様の手順で、膜

厚をそれぞれ設定して第2発光ユニットを形成した。

[0141] (4. 1) 正孔注入層の形成

HAT-CNを層厚5 nmになるように蒸着し、正孔注入層を形成した。

[0142] (4. 2) 正孔輸送層の形成

次に、化合物1-Aを層厚27 nmになるように蒸着し、正孔輸送層を形成した。

[0143] (4. 3) 電子阻止層の形成

次に、化合物1-Bを層厚10 nmになるように蒸着し、電子阻止層を形成した。

[0144] (4. 4) 発光層の形成

次に、ホスト化合物として下記化合物4-A ($T_g = 143^\circ\text{C}$) が85 vol %、緑色リン光発光ドーパントとして化合物(Ir(ppy)3) が15 vol %となるように蒸着し、緑色発光(G)を呈する層厚20 nmのリン光発光層を形成した。

[0145] (4. 5) 電子輸送性層の形成

次に、下記化合物3が86 vol %、LiFが14 vol %となるように発光層上に蒸着し、層厚20 nmの層を形成した。さらに、化合物3が98 vol %、Liが2 vol %となるように蒸着し、層厚20 nmの層を形成した。これにより、化合物3及びLiFと、化合物3及びLiとの2層からなる電子注入層を兼ねた電子輸送層を形成し、正孔注入層から電子輸送層までの積層構造の第2発光ユニットを形成した。

[0146] (5) 第2中間電極の形成

次に、第2発光ユニット上に、Agを厚さ10 nmで成膜し、第2中間電極を形成した。

[0147] (6) 第1発光ユニットの形成

発光層以外は、第3発光ユニットと同様の材料を用いた同様の手順で、膜厚をそれぞれ設定して第1発光ユニットを形成した。

[0148] (6. 1) 正孔注入層の形成

HAT-CNを層厚5 nmになるように蒸着し、正孔注入層を形成した。

[0149] (6. 2) 正孔輸送層の形成

次に、化合物1-Aを層厚58 nmになるように蒸着し、正孔輸送層を形成した。

[0150] (6. 3) 電子阻止層の形成

次に、化合物1-Bを層厚10 nmになるように蒸着し、電子阻止層を形成した。

[0151] (6. 4) 発光層の形成

次に、ホスト化合物として化合物2-A ($T_g = 143^\circ\text{C}$) が77 vol %、アシストドーパントとして化合物2-Bが15 vol %、赤色リン光発光ドーパントとしてIr(pq)₂が8 vol %となるように蒸着し、赤色(R)を呈する層厚20 nmの第3リン光発光層を形成した。

[0152] (6. 5) 電子輸送性層の形成

次に、下記化合物3が86 vol %、LiFが14 vol %となるように発光層上に蒸着し、層厚30 nmの層を形成した。さらに、化合物3が98 vol %、Liが2 vol %となるように蒸着し、層厚24 nmの層を形成した。これにより、化合物3及びLiFと、化合物3及びLiとの2層からなる電子注入層を兼ねた電子輸送層を形成し、正孔注入層から電子輸送層までの積層構造の第1発光ユニットを形成した。

[0153] (7) 反射電極の形成

次に、アルミニウム150 nmを蒸着して、陰極となる反射電極を形成した。

[0154] (8) 封止及び電源の接続

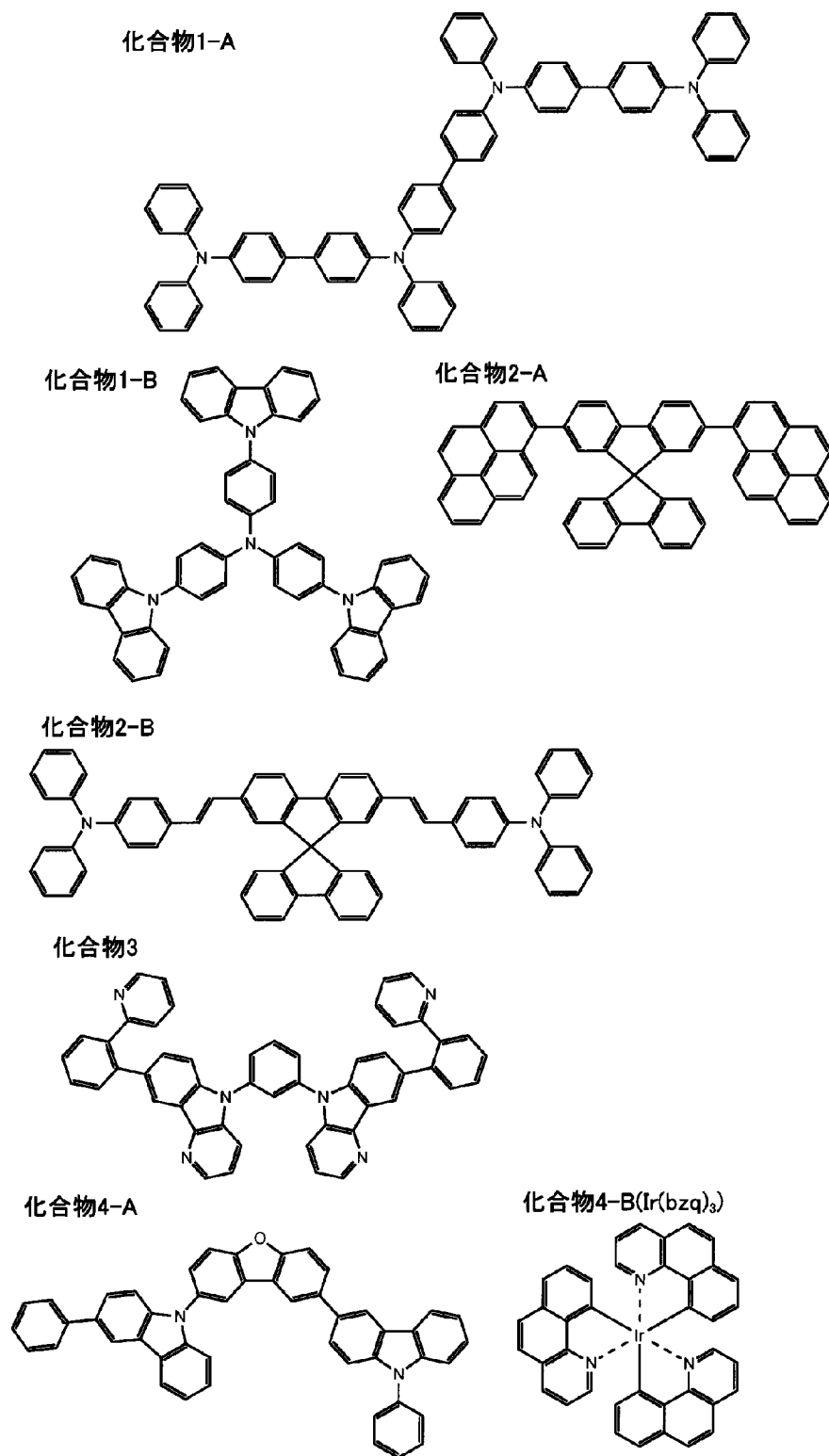
次に、透明電極から反射電極までの積層体を反射電極側からガラスケースで覆い、ガラスケースの周辺部に、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラクストラックLC0629B）によるシール剤を設けた。このシール剤を介してガラスケースと透明基板とを密着させた。その後、ガラスケース側からUV光を照射してシール剤を硬化させることで、透明電極から反射電極

までの積層体を封止した。ガラスケースでの封止作業は、透明電極から反射電極までの積層体を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。なお、透明電極、第1中間電極、第2中間電極、及び、反射電極の端子は、ガラスケースから外側に引き出された状態とし、これらの電極に電源を接続した。

以上により、試料101の有機EL素子を作製した。

[0155]

[化1]



[0156] [試料102～106の有機EL素子の作製]

有機EL素子の発光ユニットの構成を、表1に示すように変更した以外は

、上述の試料 101 と同様の方法で、試料 102～106 の有機 EL 素子を作製した。なお、試料 102～106 の有機 EL 素子における距離 d_1 、 d_2 、 d_3 、及び、距離 L は、各発光ユニットの正孔輸送層の厚さを調整することにより、設計値の厚さとなるように調整した。また、試料 104、及び、試料 106 は、第 1 発光ユニットを作製せずに、第 3 発光ユニット及び第 2 発光ユニット（黄色発光、15 vol % 黄色リン光発光ドーパント化合物 4-B）のみを作製した構成である。

[0157] 試料 101～106 の有機 EL 素子の発光ユニットの構成、及び、最大強度角度の設計値を表 1 に示す。

[0158] [表1]

試料	設計										備考
	発光ユニット			最大強度角度(°)			距離 (nm)				
	1	2	3	1	2	3	d1	d2	d3	L	
101	R	G	B	0	10	0	74	217	319	486	
102	G	R	B	0	0	0	63	252	319	486	
103	G	R	B	20	0	10	64	252	321	486	
104	－	Y	B	－	0	0	－	69	187	288	
105	G	R	B	0	20	0	63	257	319	496	比較例
106	－	Y	B	－	30	0	－	72	187	301	比較例

[0159] 〈評価〉

[最大強度角度]

作製した有機 EL 素子について、室温（25℃）において電流密度が 5 mA/cm²となる条件下で、第 1 発光ユニット、第 2 発光ユニット、及び、第 3 発光ユニットを別々に発光させた。そして、空気モードの配光特性（輝度）を、光放射輝度計 CS-2000 を用いて、サンプル角度を -80°～0°～80° まで、5° 間隔で変更して測定した。各発光ユニットの配光特性から得られる最大強度角度を下記表 2 に示す。

[0160] [消費電力]

作製した有機 EL 素子について、室温（25℃）で各発光ユニットのピーク輝度が 300 cd/m²（平均輝度 100 cd/m²）となる条件において、PWM 制御による DUTY 点灯（3 ユニット時は 1/3 DUTY、2 ユニット時は 1/2 DUTY）を行うときの消費電力を、分光放射輝度計 CS-

2000（コニカミノルタセンシング社製）を用いて測定した。

[0161] 試料101～106の有機EL素子の各測定結果を表2に示す。

[0162] [表2]

試料	測定結果							備考
	最大強度角度(°)			消費電力(mW)				
	1	2	3	R	G	B	Y	
101	0	13	0	9	5	7	－	
102	0	0	0	8	7	7	－	
103	23	0	8	8	9	8	－	
104	－	0	0	－	－	6	6	
105	0	25	0	15	5	7	－	比較例
106	－	32	0	－	－	6	12	比較例

[0163] 表2に示すように、発光ユニットを構成する各層の厚さを調整することにより、各試料の有機EL素子の最大強度角度において、設計値と同様の測定値が得られた。従って、上述の実施形態に記載の方法に基づく第1発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_1 、第2発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_2 、及び、第3発光ユニットの発光点から反射電極までの距離 d_3 、並びに、透明電極から反射電極までの距離 L となるように、有機EL素子の発光ユニットの各層の厚さを調整することにより、各発光ユニットから放出される光の最大強度角度を、所定の角度に調整することが可能となる。

[0164] 試料101～104は、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ 及び $[\theta_1 \leq \theta_3]$ のいずれかを満たしている。このため、最も長波長の光（R又はY）を放出する発光ユニットの消費電力を、他の色（B、G）と同程度まで小さくすることができている。

[0165] 一方、試料105は、第3発光ユニット（G）の最大強度角度が 0° 、第2発光ユニット（R）の最大強度角度が 20° 、第1発光ユニット（B）の最大強度角度が 0° であり、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ 及び $[\theta_1 \leq \theta_3]$ をいずれも満たしていない。このため、長波長の光（R）の正面方向での視認性が低くなり、この光（R）を放出する第2発光ユニットの消費電力が大きくなっている。

[0166] 同様に、試料106は、第2発光ユニット（Y）の最大強度角度が 20°

、第3発光ユニット（B）の最大強度角度が 0° であり、 $[\theta_1 \leq \theta_2]$ を満たしていない。このため、長波長の光（Y）の正面方向での視認性が低くなり、この光（Y）を放出する第2発光ユニットの消費電力が大きくなっている。

[0167] 上述のように、長波長の光の最大強度角度を小さくすることにより、正面方向での視認が向上するため、この長波長の光を放出する発光ユニットの消費電力を低減することが可能となる。従って、有機EL素子の高効率化、低消費電力化が可能となる。

[0168] なお、本発明は上述の実施形態例において説明した構成に限定されるものではなく、その他本発明構成を逸脱しない範囲において種々の変形、変更が可能である。

符号の説明

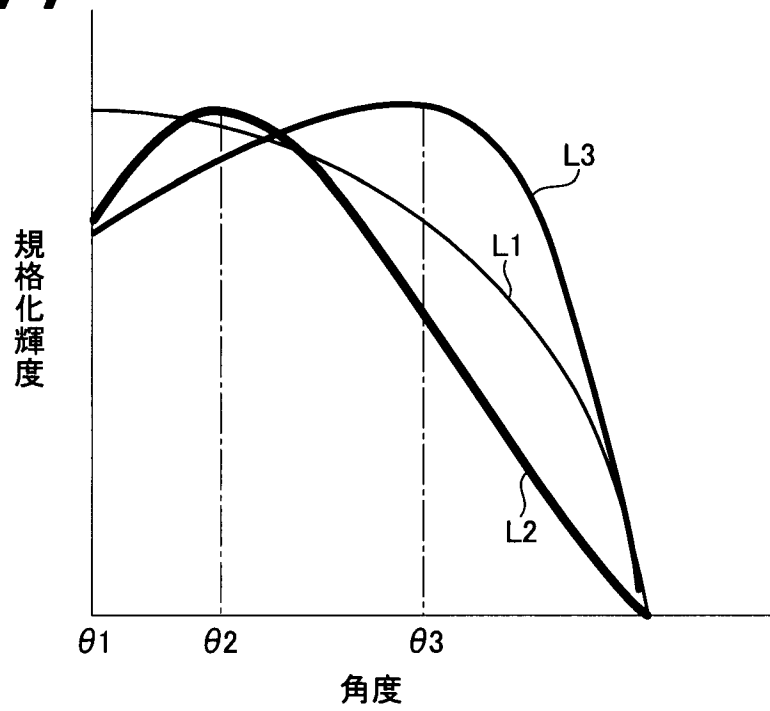
[0169] 1・・・有機EL素子、2，11，21・・・透明電極、4，12・・・第1発光ユニット、5，7・・・電源、6・・・中間電極、8，14・・・第2発光ユニット、9・・・制御部、10，17，27・・・反射電極、13・・・第1中間電極、15・・・第2中間電極、16・・・第3発光ユニット、20・・・透明基板、22・・・発光ユニット

請求の範囲

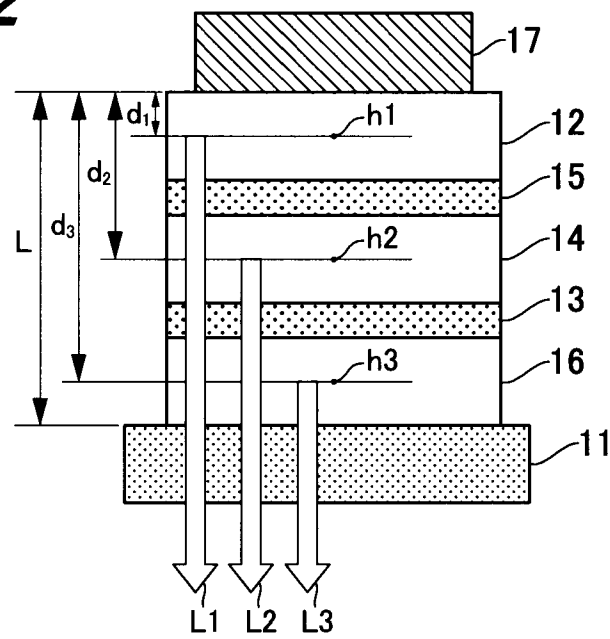
- [請求項1] 2層以上の発光ユニットと、前記発光ユニットを挟持する3層以上の電極とを備える有機エレクトロルミネッセンス素子であって、
- 第1発光ユニットと、前記第1発光ユニットよりも波長の短い光を放出する第2発光ユニットとを有し、
- 正面方向から測定した、前記第1発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 1$ と、前記第2発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 2$ とが $[\theta 1 \leq \theta 2 \quad (\text{但し、} 0^\circ \leq \theta 1 \leq \theta 2 < 90^\circ)]$ を満たす
- 有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項2] 前記第2発光ユニットよりも波長の短い光を放出する第3発光ユニットを有し、
- 正面方向から測定した、前記第1発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 1$ と、前記第2発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 2$ と、前記第3発光ユニットの発光強度が最大となる角度 $\theta 3$ とが $[\theta 1 \leq \theta 2、\text{且つ、} \theta 1 \leq \theta 3 \quad (\text{但し、} 0^\circ \leq \theta 1 \leq \theta 2 < 90^\circ、0^\circ \leq \theta 1 \leq \theta 3 < 90^\circ)]$ を満たす、
- 請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項3] $0^\circ \leq \theta 1 \leq 5^\circ$ の関係を満たす請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項4] 前記第1発光ユニットの[全光束／正面輝度]を $P 1$ 、前記第2発光ユニットの[全光束／正面輝度]を $P 2$ としたとき、 $[P 1 \leq P 2]$ を満たす請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項5] 前記第2発光ユニットよりも波長の長い光を放出する第3発光ユニットを有し、前記第3発光ユニットの[全光束／正面輝度]を $P 3$ としたとき、 $[P 1 \leq P 2 \leq P 3]$ を満たす請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [請求項6] 請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備える発光

装置。

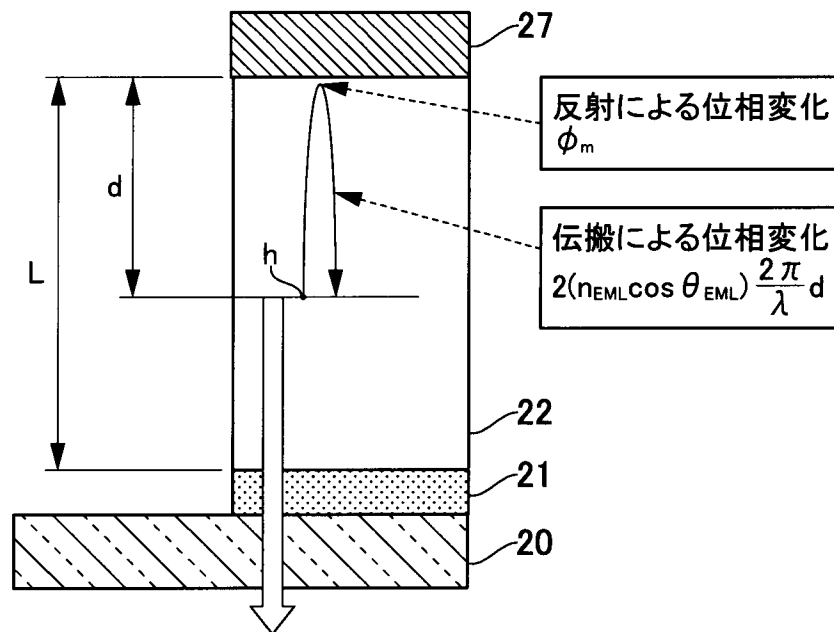
[図1]

FIG. 1

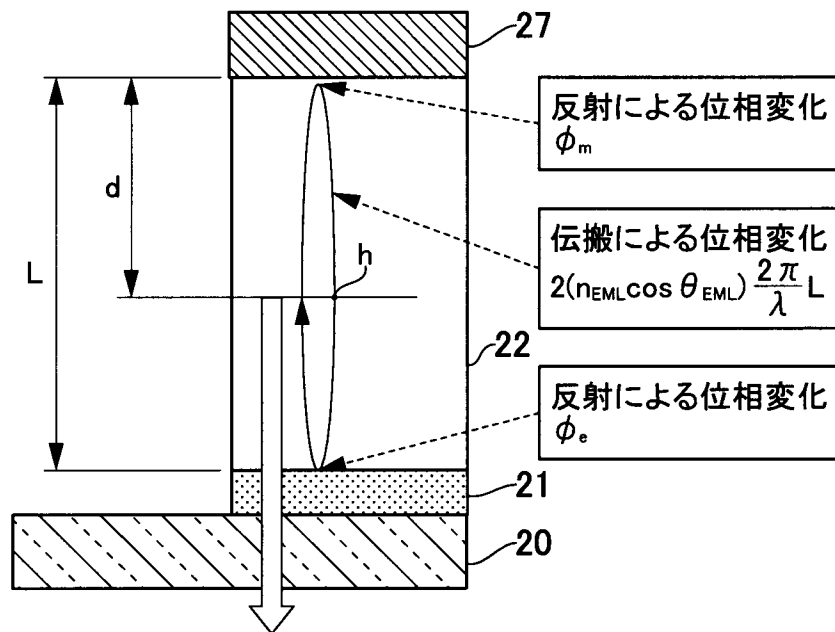
[図2]

FIG. 2

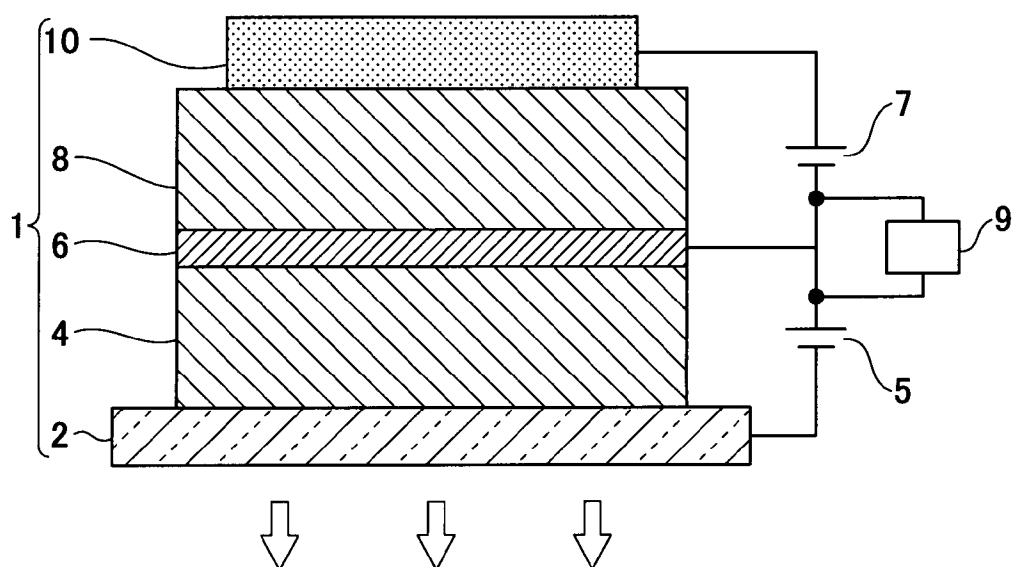
[図3]

FIG. 3

[図4]

FIG. 4

[図5]

FIG. 5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074499

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/12(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/24(2006.01)i, H05B33/26(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)

H05B33/12, H01L51/50, H05B33/24, H05B33/26

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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 2010-15787 A (Canon Inc.), 21 January 2010 (21.01.2010), paragraphs [0053], [0079] to [0091]; fig. 2 (Family: none)	1-3, 6 4-5
Y	JP 2013-77383 A (Canon Inc.), 25 April 2013 (25.04.2013), paragraphs [0028], [0050] & US 2013/0082246 A1 paragraphs [0032], [0050] & CN 103077954 A	1-6

☒ 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
17 November 2016 (17.11.16)

Date of mailing of the international search report
29 November 2016 (29.11.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074499

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2011/040294 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 07 April 2011 (07.04.2011), paragraph [0054]; fig. 2 & US 2012/0181921 A1 paragraph [0070]; fig. 2 & EP 2485568 A1 & CN 102577618 A & TW 201129238 A & KR 10-2012-0091023 A	1-6
Y	JP 9-296166 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 November 1997 (18.11.1997), paragraph [0003] (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H05B33/12(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/24(2006.01)i, H05B33/26(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 (IPC))

Int.Cl. H05B33/12, H01L51/50, H05B33/24, H05B33/26

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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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 請求項の番号
X	J P 2010-15787 A (キヤノン株式会社) 2010.01.21、段落 [0053]、[0079] - [0091]、図2	1-3、6
Y	(ファミリーなし)	4-5
Y	J P 2013-77383 A (キヤノン株式会社) 2013.04.25、段落 [0028]、[0050] & US 2013/0082246 A1 段落 [0032]、[0050] & CN 103077954 A	1-6

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

17.11.2016

国際調査報告の発送日

29.11.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/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)

中山 佳美

20

3911

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 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 請求項の番号
Y	WO 2011/040294 A1 (住友化学株式会社) 2011. 04. 07、段落 [0054]、図2 & US 2012/0181921 A1 段落 [0070]、図2 & EP 2485568 A1 & CN 102577618 A & TW 201129238 A & KR 10-2012-0091023 A	1-6
Y	J P 9-296166 A (出光興産株式会社) 1997. 11. 18、段落 [0003] (ファミリーなし)	1-6