(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
2009 年 11 月 26 日(26.11.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/141903 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 51/50 (2006.01) *H05B 33/22* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/059349

(22) 国際出願日: 2008 年 5 月 21 日(21.05.2008)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): パイオニア株式会社(Pioneer Corporation) [JP/JP]; 〒1538654 東京都目黒区目黒１丁目４番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小山田 崇人(OYAMADA, Takahito) [JP/JP]; 〒3502288 埼玉県鶴ヶ島市富士見６丁目１番２号 パイオニア株式会社 総合研究所内 Saitama (JP).

(74) 代理人: 藤村 元彦(FUJIMURA, Motohiko); 〒1040045 東京都中央区築地４丁目１番１号 東劇ビル 藤村合同特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, 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, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

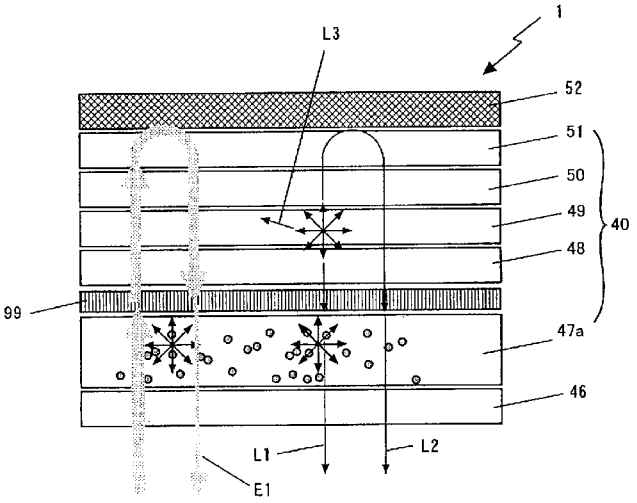
添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機発光素子

[図7]



(57) **Abstract**: This invention provides an organic electroluminescent element which can ensure luminescence intensity while cutting external light. The organic electroluminescent element comprises a plurality of organic semiconductor layers stacked between a first electrode and a second electrode and including an organic luminescent layer and is characterized in that at least one of the organic semiconductor layers disposed between the organic luminescent layer and at least one of the first and second electrodes is a light scattering layer comprising an organic material having a carrier injection transport property by which electrons and/or holes are transported so that light emitted from the organic luminescent layer is transmitted, and a plurality of particles dispersed within the organic material.

(57) 要約: 外光をカットしつつ発光強度を確保できる有機発光素子は、第１電極及び第２電極の間に積層されかつ有機発光層を含む複数の有機半導体層からなる有機発光素子であって、有機発光層と第１及び２電極の少なくとも一方との間に配置された有機半導体層の少なくとも一つが、有機発光層からの発光光が透過するように電子及び又はホールを輸送するキャリア注入輸送性を有する有機材料と有機材料内に分散された複数の粒子とを含む光散乱層である、ことを特徴とする。

WO 2009/141903 A1

明 細 書

有機発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、電流の注入によって発光するエレクトロルミネセンス(以下、ELともいう)を呈する有機化合物を利用した有機半導体素子の一例であり、かかる有機化合物材料からなる有機発光層を備えた有機発光素子に関する。

背景技術

[0002] 一般に、EL有機化合物材料を用いた有機発光素子は、ダイオード特性を有する電流注入型の素子である。2色以上の発光色を呈する有機発光素子の複数をマトリクス状に配列してディスプレイパネルが開発されている。

[0003] 個々の有機発光素子1は、例えば、図1に示すように、透明基板2の透明陽極3上に、真空蒸着法などを利用して、発光層を含む複数の有機化合物材料層4、金属からなる反射陰極5を、順次、積層した構造を有している。また、有機化合物材料層4として、発光層を挟んで、機能層として、陽極側にホール輸送機能層(ホール注入層、ホール輸送層)、陰極側に電子輸送機能層(電子注入層、電子輸送層)が適宜設けられる。

[0004] 有機ELディスプレイでは有機発光素子の陰極がAlなどからなり高反射率であるために明所でのコントラストが低下するので、光取り出し側(透明基板)に円偏光フィルタを貼り付けることが提案されている(特許文献1参照)。また、有機ELディスプレイのコントラストを改善するために光吸収層、マトリックス材料中に金属ナノ粒子を含んだ光吸収層を電極近傍に備えた構造(特許文献2参照例)などが提案されている。

特許文献1:特開2004－327195

特許文献2:特開2006－332046

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] 従来の有機発光素子、円偏光フィルタを用いた素子では円偏光板により外光をカットすることが出来るが、EL発光強度も同時に低下する問題がある。

[0006] また、光取り出し側に金属ナノ粒子を含んだ光吸収層を用いた素子では、光取り出し効率は十分に向上しないが分かった。

[0007] 外光をカットしつつ、EL発光強度を低下させない有機発光素子技術が望まれている。

[0008] そこで本発明は、有機発光素子に使用される透明部材においても光散乱、光打消し技術を用い外光をカットし、更にEL発光(EL輝度)を円偏光フィルタを用いた素子以上の発光強度を確保するとともに構造が簡単な有機発光素子を提供することが一例として挙げられる。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の有機発光素子は、第1電極及び第2電極の間に積層されかつ有機発光層を含む複数の有機半導体層からなる有機発光素子であって、

前記有機発光層と前記第1及び2電極の少なくとも一方との間に配置された前記有機半導体層の少なくとも一つが、前記有機発光層からの発光光が透過するように電子及び又はホールを輸送するキャリア注入輸送性を有する有機材料と前記有機材料内に分散された複数の粒子とを含む光散乱層である、ことを特徴とする。

[0010] 以上の構成によれば、光散乱層が導入されていることにより、干渉効果が減るために、素子構成を比較的自由に設定することができる。よって、たとえ膜厚を厚くしても、円偏光フィルタを用いた素子よりも効率のよい素子が作製できる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]有機発光素子を示す概略部分断面図である。

[図2]本発明による実施形態の複数の有機発光素子が表示パネルに適用された場合の有機EL表示パネルを示す部分背面図である。

[図3]基本的な有機発光素子の有機半導体層の概略を説明するための断面図である。

[図4]図3に示す有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図5]本発明による実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図6]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図7]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図8]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図9]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図10]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図11]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図12]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図13]本発明による実施形態の有機発光素子の反射スペクトルを示すグラフである。

[図14]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

[図15]本発明による他の実施形態の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。

符号の説明

[0012] 46 陽極(第1電極に相当)

47 ホール注入層

47a 光散乱層

48 ホール輸送層

49 有機発光層

50 電子輸送層

51 電子注入層

51a 光散乱層

52 陰極(第2電極に相当)

99 半透明金属層

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明の実施の形態を図面を参照しつつ説明する。

[0014] 図2は、複数の有機発光素子が表示パネルに適用された場合の一例、パッシブ駆動型有機EL表示パネルを示す部分背面図である。図において、複数の有機発光素子1は基板45上にマトリクス状に配置されている。有機EL表示パネルは、透明電極層を含む行電極の複数の第1電極46と、有機半導体層と、該行電極に交差する金属電極層を含む列電極の複数の第2電極52と、が基板45上に順次積層されて構成されている。行電極は、各々が帯状に形成されるとともに、所定の間隔をおいて互いに平行となるように配列されており、列電極も同様である。このように、マトリクス表示パネルは、複数の行と列の電極の交差点に形成された複数の有機発光素子1の発光部からなる表示領域DRを有している。第2電極52は、接続部Cnを介して配線電極19に接続されている。なお、第2電極52の上には図示しないが封止膜として窒化酸化シリコン、窒化シリコンなどの窒化物、或いは酸化物又は炭素などの無機物からなる無機パッシベーション膜を備え、無機パッシベーション膜の封止膜には、フッ素系やシリコン系の樹脂、その他、フォトレジスト、ポリイミドなど合成樹脂膜との多層とすることもでき、有機発光素子は外気から遮断されている。電流印加時に例えば発光色の青、緑、赤を呈する有機化合物材料から有機発光層は構成され得る。すなわち、有機発光素子は、例えば赤色、緑色及び青色に対応させて各々形成される。基板45を透明材料から構成し、第1及び2電極をそれぞれ透明電極及び金属電極とすることで基板45から発光光が取り出されるボトムエミッション型とし、逆に、第1及び2電極を金属電極及び透明電極とすることでトップエミッション型とすることもできる。

[0015] 図3の基本的な有機半導体層40は、例えば、各層の区切りを「／」で表すものとして、陽極の第1電極46から陰極の第2電極52へ順に積層されたホール注入層47／ホール輸送層48／発光層49／電子輸送層50／電子注入層51のそれぞれの機能を持つ複数の機能有機材料の膜からなる。さらに、ホール輸送層及び発光層間に電子ブロック層を、発光層及び電子輸送層にホールブロック層を機能有機膜として設け

ることもできる。なお有機発光素子は、発光層49内に電荷及び励起子を各々閉じ込めるための電荷及び励起子拡散層が積層された構造を採用してもよい。またなお、発光層を除き、ホール注入層、ホール輸送層、電子輸送層、電子注入層、電子ブロック層及びホールブロック層のいずれかは省略する場合もある。

[0016] 図3を用いて、個々の有機発光素子1の前提となる基本的概略を説明する。例えば、図示するボトムエミッション型の基本的な有機発光素子では、基板45側から順に積層された第1電極46、少なくとも有機発光層49を含む積層された有機半導体層40、及び第2電極52を有し、基板45側から発光光が取り出される。ここで、第1電極46及び第2電極52がそれぞれ陽極及び陰極である場合、有機半導体層40の主に有機物からなる発光層において、第1電極46の陽極からホールが第2電極52の陰極から電子が注入され、再結合し発光する。

[0017] 図4は、図3に示す有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、ホール注入層47、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。

[0018] 有機発光素子の発光層49では、ホールと電子の再結合によって様々な方向にEL発光する。発光層49では各発光点において次のような光路の光線が生成される。陽極46へ向かう光線L1(各界面の臨界角未満)は有機半導体層40及び透過性を有する陽極46を透過して有機発光素子の外部に出力される。一方、陰極52側へ向かう光線L2は陰極52で反射され、すべての有機半導体層40及び陽極46を透過して有機発光素子の外部に出力される(各界面の臨界角未満)。残る発光層49が放射した一部の光L3(各界面の臨界角以上)は、有機発光素子の外部に取り出されることなく、有機発光素子内において消失する。

[0019] 基本的構成の有機発光素子では、外部からの外光も有機半導体層40を透過し陽極46で反射して再び有機半導体層40を透過して有機発光素子の外部に出力されるので、外光反射光E1と発光層49のEL発光の強度の割合に応じて、特に、明所でのコントラストが低下する。

[0020] ＜有機発光素子の構成材料＞

基板45は、ガラス、プラスチックなどの透明、半透明又は不透明な材質によって構成されている。陽極46は、ITO（Indium Tin Oxide）、IZO（Indium ZincOxide）、酸化スズなど酸化物の透明材料や、および金およびパラジウムなどAu、Ag、Cu、Si、Pt、Pd等の薄膜でも良く、それらの合金も採用することができる。またその他にも陽極46は、Al、Mo又はTiなどを採用することができる。陽極46材料に、導電性炭素、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等のπ共役ポリマーなどが挙げられる。陰極52材料には、有機半導体層40に接する面においては低仕事関数の金属、リチウムまたはナトリウムなどのアルカリ金属、ベリリウム、マグネシウム、カルシウムまたはバリウムなどの2A族すなわちアルカリ土類金属、および希土類金属を含むIII族金属およびスカンジウム、イットリウム、ランタン、セリウム、ユーロピウム、テルビウム、若しくはアクチニウムなどのアクチニド族金属またはこれらの合金が用いられるが、これに限定されるものではない。陰極52材料は有機半導体層40に接する面の低仕事関数金属と他の金属層との2層以上の積層とすることもできる。

[0021] ホール注入層47は、陽極46からホールを取り出し易くする機能を有する。このホール注入層47は、例えば、ホール注入層としては、特に限定はないが、CuPc（銅フタロシアニン）等の金属フタロシアニン類および無金属フタロシアニン類、カーボン膜や、PEDOT（ポリ（3，4？エチレンジオキシチオフェン））、ポリアニリン、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリアルキルフェニレン、ポリアセチレン誘導体等を好適に採用することができる。

[0022] ホール輸送層48は、ホール注入層47によって陽極46から取り出されたホールを発光層49に輸送する機能を有する。このホール輸送層48は、例えば、ホール輸送性を有する有機化合物として、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’－ジ（3－メチルフェニル）－4，4’－ジアミノビフェニル、2，2－ビス（4－ジ－p－トリルアミノフェニル）プロパン、N，N，N’，N’－テトラ－p－トリル－4，4’－ジアミノビフェニル、ビス（4－ジ－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、4－N，N－ジフェニルアミノ－（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、1，1－ビス（4－ジ－p－トリアミノフェニル）－シクロヘキサン、1，1－ビス（4－ジ－p－トリアミノフェニル）－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、N，N，N－トリ（p－トリル）アミン、4－（ジ－p－トリルアミノ）－4’－［4（ジ－p－トリルアミノ）スチリル］スチルベン、N，N，N’，N’－テトラ－p－トリル－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－ビフェニルN－フェニルカルバゾール、4，4’－ビス［N－（1－ナフチル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’’－ビス［N－（1－ナフチル）－N－フェニル－アミノ］p－ターフェニル、4，4’－ビス［N－（2－ナフチル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’－ビス［N－（3－アセナフテニル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、1，5－ビス［N－（1－ナフチル）－N－フェニル－アミノ］ナフタレン、4，4’－ビス［N－（9－アントリル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’’－ビス［N－（1－アントリル）－N－フェニル－アミノ］p－ターフェニル、4，4’－ビス［N－（2－フェナントリル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’－ビス［N－（8－フルオランテニル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’－ビス［N－（2－ピレニル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’－ビス［N－（2－ペリレニル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、4，4’－ビス［N－（1－コロネニル）－N－フェニル－アミノ］ビフェニル、2，6－ビス（ジ－p－トリルアミノ）ナフタレン、2，6－ビス［ジ－（1－ナフチル）アミノ］ナフタレン、2，6－ビス［N－（1－ナフチル）－N－（2－ナフチル）アミノ］ナフタレン、4．4’’－ビス［N，N－ジ（2－ナフチル）アミノ］ターフェニル、4．4’－ビス｛N－フェニル－N－［4－（1－ナフチル）フェニル］アミノ｝ビフェニル、4，4’－ビス［N－フェニル－N－（2－ピレニル）－アミノ］ビフェニル、2，6－ビス［N，N－ジ（2－ナフチル）アミノ］フルオレン、4，4’’－ビス（N，N－ジ－p－トリルアミノ）ターフェニル、ビス（N－1－ナフチル）（N－2－ナフチル）アミン等が挙げられる。また、このホール輸送材質はホール注入層を兼ねる事ができる材質でもある。

[0023] 発光層49は光電変換層に相当し、印加電圧によって第1、2電極の間に生じた電

界によって発光する機能を有する。この発光層49は、その外部から電界を用いて受け取ったエネルギーに基づく光を放出する現象を利用し、自ら光を出力する。

[0024] 電子輸送層50は、電子注入層51によって陰極52から取り出された電子を効率的に発光層49に輸送する。例えば、発光層49や電子輸送性有機半導体層の主成分の電子輸送性を有する有機化合物としては、p－テルフェニルやクアテルフェニル等の多環化合物およびそれらの誘導体、ナフタレン、テトラセン、ピレン、コロネン、クリセン、アントラセン、ジフェニルアントラセン、ナフタセン、フェナントレン等の縮合多環炭化水素化合物及びそれらの誘導体、フェナントロリン、バソフェナントロリン、フェナントリジン、アクリジン、キノリン、キノキサリン、フェナジン等の縮合複素環化合物およびそれらの誘導体や、フルオロセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、オキシン、アミノキノリン、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、キナクリドン、ルブレン等およびそれらの誘導体等を挙げることができる。金属キレート錯体化合物、特に金属キレート化オキサノイド化合物では、蛍光物質でもあるトリス(8－キノリノラト)アルミニウム、ビス(8－キノリノラト)マグネシウム、ビス[ベンゾ(f)－8－キノリノラト]亜鉛、ビス(2－メチル－8－キノリノラト)アルミニウム、トリス(8－キノリノラト)インジウム、トリス(5－メチル－8－キノリノラト)アルミニウム、8－キノリノラトリチウム、トリス(5－クロロ－8－キノリノラト)ガリウム、ビス(5－クロロ－8－キノリノラト)カルシウム等の8－キノリノラト或いはその誘導体を配位子として少なくとも一つ有する金属錯体も挙げることができる。

[0025] また、電子輸送性を有する有機化合物として、オキサジアゾール類、トリアジン類、スチルベン誘導体およびジスチリルアリーレン誘導体、スチリル誘導体、ジオレフィン誘導体も好適に使用され得る。

[0026] さらに、電子輸送性を有する有機化合物として使用できる有機化合物として、2，5－ビス(5，7－ジ－t－ペンチル－2－ベンゾオキサゾリル)－1，3，4－チアゾール、4，4’－ビス(5，7－t－ペンチル－2－ベンゾオキサゾリル)スチルベン、4，4’－ビ

ス[5，7－ジー（2－メチル－2－ブチル）－2－ベンゾオキサゾリル]スチルベン、2，5－ビス（5．7－ジーt－ペンチル－2－ベンゾオキサゾリル）チオフェン、2，5－ビス[5－（α，α－ジメチルベンジル）－2－ベンゾオキサゾリル]チオフェン、2，5－ビス[5，7－ジー（2－メチル－2－ブチル）－2－ベンゾオキサゾリル]－3，4－ジフェニルチオフェン、2，5－ビス（5－メチル－2－ベンゾオキサゾリル）チオフェン、4，4’－ビス（2－ベンゾオキサゾリル）ビフェニル、5－メチル－2－{2－[4－（5－メチル－2－ベンゾオキサゾリル）フェニル]ビニル}ベンゾオキサゾール、2－[2－（4－クロロフェニル）ビニル]ナフト（1，2－d）オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2，2’－（p－フェニレンジビニレン）－ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2－{2－[4－（2－ベンゾイミダゾリル）フェニル]ビニル}ベンゾイミダゾール、2－[2－（4－カルボキシフェニル）ビニル]ベンゾイミダゾール等も挙げられる。

[0027] さらに、電子輸送性を有する有機化合物として、1，4－ビス（2－メチルスチリル）ベンゼン、1，4－ビス（3－メチルスチリル）ベンゼン、1，4－ビス（4－メチルスチリル）ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1，4－ビス（2－エチルスチリル）ベンゼン、1，4－ビス（3－エチルスチリル）ベンゼン、1，4－ビス（2－メチルスチリル）－2－メチルベンゼン、1，4－ビス（2－メチルスチリル）－2－エチルベンゼン等も挙げられる。

[0028] また、さらに、電子輸送性を有する有機化合物として、2，5－ビス（4－メチルスチリル）ピラジン、2，5－ビス（4－エチルスチリル）ピラジン、2，5－ビス[2－（1－ナフチル）ビニル]ピラジン、2，5－ビス（4－メトキシスチリル）ピラジン、2，5－ビス[2－（4－ビフェニル）ビニル]ピラジン、2，5－ビス[2－（1－ピレニル）ビニル]ピラジン等が挙げられる。

[0029] その他、さらに、電子輸送性を有する有機化合物として、1，4－フェニレンジメチリディン、4，4’－フェニレンジメチリディン、2，5－キシリレンジメチリディン、2，6－ナフチレンジメチリディン、1，4－ビフェニレンジメチリディン、1，4－p－テレフェニレンジメチリディン、9，10－アントラセンジイルジメチリディン、4，4’－（2，2－ジ－t－ブチルフェニルビニル）ビフェニル、4，4’－（2，2－ジフェニルビニル）ビフェニル等、有機EL素子の作製に使用されている公知のものを適宜用いることができる。

[0030] 各々の有機半導体層40は、低分子や、デンドリマー高分子の有機物からなる。低

分子有機化合物からなる有機半導体層40は一般に蒸着法などのドライプロセス(真空プロセス)によって、高分子やデンドリマーの有機化合物からなる有機半導体層40は一般に塗布法によって、それぞれ形成され得る。一部に、塗布法が可能である有機溶媒に可溶な低分子材料、蒸着が可能である高分子材料も存在する。一般に、有機半導体層40に用いられる発光層などの材料には、P型やN型の有機半導体、もしくはバイポーラ性の有機半導体を用いることが多い。

[0031] 更に、これらの有機半導体層40に用いる高分子材料の場合は、溶媒にその前駆体を溶解し、塗布される。溶媒としては、トルエン、ベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロホルム、テトラリン、キシレン、アニソール、ジクロロメタン、γブチロラクトン、ブチルセルソルブ、シクロヘキサン、NMP(N－メチル－2－ピロリドン)、ジメチルスルホキシド、シクロヘキサノン、ジオキサン、または、THF(テトラヒドロフラン)などの溶媒から選ばれた1種または複数種が用いられる。前述の溶媒の他、PGME(propyleneglycol monomethyl ether)、PGMEA(propyleneglycol monomethyl ether acetate)、乳酸エチル、DMAc(N.N-dimethylacetamide)、MEK(methyl ethyl ketone)、MIBK(methyl isobutyl ketone)、PSS(ポリスチレンスルホネート)、IPA(iso propyl alcohol)、エタノールなど、既知の溶剤を用いることができる。塗布方法としては、スピンコート、ブレードコート、ロールコート、スプレーなどの基板45の略全面に塗布する方法、インクジェット、フレキソ印刷法、ディスペンス法などの各種印刷法など、所定のパターンに塗布する方法がある。

[0032] ＜有機発光素子の例＞

＜例NP＞

図5は、例NPの有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数が分散されたホール注入層である光散乱層47a、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。光散乱層47aは、部分的に光を反射しかつ透過性を有するように設定された、ホール注入層の母材とそこに分散された粒子とかなる薄膜である。粒子は、例えば金

属ナノ粒子であり、Au, Agなどの金属や、TiOx, ZrOx, ZnOx, MoOx, WOx, SiOx, FeOx, YxOy, CuOxなどの酸化物や、TiMOx(M=Si, Fe, Zr, Sn, Sb, W, Ce)、AgMoOx、IMOx(M=In, Zn)などの2種類以上の金属イオンを含む複合酸化物や、AlF_3, MgF_2などのフッ化物や、ポリスチレンなどの高分子材料である。なお、xは原子比を表す。個々の粒子は針状、円柱状、板状、矩形状、立体状、円錐、球状や角柱状等の個体、或いは凝集又は集合体である。粒子は平均粒径が0.1nmから10000nmを有する。分散粒子の半径は、入射外光の波長よりも非常に小さく、レイリー散乱が生じるように、粒径分布も設定される。粒子は隣接するもの同士間の距離が0.1nm以上1μm以下である密度で分散されている。粒子は、分散される有機半導体層の有機材料と0.01以上の屈折率差があるものが選択される。光散乱層47aは高低差0.1nm以上1000nm以下の凹凸界面を有する。光散乱層47aは、1×10^{-10}～1×10^{10}cm^2／Vsのキャリア移動度、又は10^{10}～10^{-10}Ω・cmの導電性を持つように設定される。

[0033] 図5ではホール注入層であるが、ホール輸送層に粒子を分散させて光散乱層とするなど、光散乱層は有機発光層49と陽極46の間に配置されたいすれの半導体層でもよい。

[0034] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図3に示す有機発光素子の場合と同様であるが、陽極46側へ向かう光線のうち発光層49にやや沿った方向への光線は光散乱層47aのレイリー散乱に応じて光線が散乱されて、陽極46から有機発光素子の外部に出力される。有機発光素子は光散乱層47aによって光取り出し効率が向上するため、全体として発光量が増大する。このとき各層の屈折率が上述のように設定されていると、横方向への光伝搬を抑制し、さらに光取り出し効率を向上することができる。

場合の散乱。レイリー散乱の散乱光の強度は外光の波長の4乗に反比例する。

[0035] ＜例BL＞

図6は、例BLの有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、ホール注

入層47、半透明金属層99、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。半透明金属層99はホール注入層47とホール輸送層48との間に形成されている。半透明金属層99は、部分的に光を反射しかつ透過性を有するように設定された、例えばAg及びMoO_3を少なくとも1層からなる薄膜である。半透明金属層99は、その他にも、例えば銀の合金の薄膜であってもよい。なお、金属としては銀に限られず、その代わりに、例えば金を採用してもよい。酸化物としてはMo酸化物に限られず、その代わりに、遷移金属酸化物を採用してもよい。半透明金属層99は10nm以上50nm以下の範囲の膜厚で成膜される。つまり半透明金属層99は透明或いは半透明の薄膜であり、反射率が高い薄膜が好ましく、更に隣接する層より屈折率が低くことが好ましい。この半透明金属層99の材質としては、例えばAg, Au, Cu, Al, Pt, Mgの単体の金属、MgAg, MgAuなどの合金系の薄膜、酸化物の薄膜、フッ化物の薄膜、酸化物、フッ化物と金属の混合系の薄膜などを採用することができる。特にAg, Ag合金、Mg合金系は反射率が高く、Agはバルクの屈折率は1以下と低い性質を有する。これらの金属、合金系材料を使用した薄膜は、例えば半透明の10nm以上50nm以下の膜厚として使用することができる。酸化物の薄膜、フッ化物の薄膜、フッ化物と金属の混合系の薄膜は、透明性が高い場合もあるので膜厚は限定されない。さらに、その薄膜は10nm以下でラフネス(界面が平坦ではない)があるので、そのラフネスによって横方向への伝播した光が散乱され、正面方向へ放射される。基板45上の厚さ3nmのAuのラフネスは2．6nmである。

[0036] 半透明金属層99は、膜厚を、例えば10～50nmとした場合、その透過率が400nm～700nmの可視域で1%～99%以下、特に10～90%、更には20～70%とすることができる。また半透明金属層99は、その反射率が400nm～700nmの可視域で1%～99%以下、特に5～95%、更には10～70%とすることができる。

[0037] 発光層49は隣接する層より屈折率が同程度、或いは低いことが望ましい。

[0038] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図3に示す有機発光素子の場合と同様であるが、外光反射光E1と発光層49のEL発光の強度の割合に応じて、特に、明所でのコントラストが増加する。

[0039] ＜例BL1＞

図7は、例BL1の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。この有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数が分散されたホール注入層である光散乱層47a、半透明金属層99、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。例BL1の有機発光素子は、図5の例NPの光散乱層47aを有する有機発光素子に半透明金属層99（光散乱層47aとホール輸送層48の間）を設けたものである。部分的に光を反射しかつ透過性を有する半透明金属層99は、図6の例BLと同様に、例えばAg及びMoO_3を少なくとも1層からなる薄膜である。

[0040] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図5、図6に示す有機発光素子の場合と同様であるが、陽極46側へ向かう光線のうち発光層49にやや沿った方向への半透明金属層99を透過した光線は光散乱層47aのレイリー散乱に応じて光線が散乱されて、陽極46から有機発光素子の外部に出力される。有機発光素子は光散乱層47aによって光取り出し効率が向上するため、全体としてコントラストが増大する。

[0041] ＜例BL2＞

図8は、例BL2の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数を含む粒子膜100、ホール注入層47、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。図8の例BL2の有機発光素子は粒子膜100が陽極46とホール注入層47との間に成膜されている以外、図4のものと同一構成である。粒子膜100は、部分的に光を反射しかつ透過性を有するように設定された、粒子の複数を含む薄膜である。粒子膜100の粒子は酸化物、複合酸化物、フッ化物、金属で形成され、その粒子が有機バインダーにより凝集され、粒子膜100は凝集膜となっている。粒子膜100はそれ複数を組

み合わせて使用することができる。粒子膜100は10～50nmの範囲の膜厚で成膜される。

[0042] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図3に示す有機発光素子の場合と同様であるが、外光反射光E1と発光層49のEL発光の強度の割合に応じて、特に、明所でのコントラストが増加する。

[0043] ここで、粒子膜や、上記光散乱層に分散された粒子や、半透明金属層を構成する粒子が金属である場合に、例えば金属ナノ粒子では、可視～近赤外域の光電場とプラズモンがカップリングして光吸収が起こり、鮮やかな色調を呈する効果がある。プラズモンとは、金属中の自由電子が集団的に振動することで、金属ナノ粒子ではプラズモンが表面に局在することになる。この表面プラズモン共鳴(Surface Plasmon Resonance:SPR)が局所的に著しく増強された電場も発生する。つまり、光エネルギーが表面プラズモンに変換されることにより、金属ナノ粒子表面に光のエネルギーが蓄えられるばかりでなく、光の回折限界より小さな領域での光制御が可能となる。

[0044] ＜例BL3＞

図9は、例BL3の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。この有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数を含む粒子膜100、ホール注入層47、半透明金属層99、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。例BL3の有機発光素子は、図8の例BL2の粒子膜100を有する有機発光素子に半透明金属層99（ホール注入層47とホール輸送層48の間）を設けたものである。部分的に光を反射しかつ透過性を有する半透明金属層99は、図6の例BLと同様に、例えばAg及びMoO_3を少なくとも1層からなる薄膜である。

[0045] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図8に示す有機発光素子の場合と同様であるが、外光反射光E1と発光層49のEL発光の強度の割合に応じて、特に、明所でのコントラストが増加する。

[0046] ＜例BL4＞

図10は、例BL4の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図

である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。この有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数を含む粒子膜100、粒子の複数が分散されたホール注入層である光散乱層47a、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。例BL4の有機発光素子は、図5の例NPの光散乱層47aを有する有機発光素子に粒子膜100(陽極46と光散乱層47aとの間)を設けたものである。粒子膜100は、図8の例BL2と同様に、部分的に光を反射しかつ透過性を有するように設定された、粒子の複数を含む薄膜である。

[0047] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図5、図6に示す有機発光素子の場合と同様であるが、陽極46側へ向かう光線のうち発光層49にやや沿った方向への光線は光散乱層47aのレイリー散乱に応じて光線が散乱されて、粒子膜100を経て陽極46から有機発光素子の外部に出力される。有機発光素子は光散乱層47a及び粒子膜100によって光取り出し効率が向上するため、全体としてコントラストが増大する。

[0048] ＜例BL5＞

図11は、例BL5の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。この有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数を含む粒子膜100、粒子の複数が分散されたホール注入層である光散乱層47a、半透明金属層99、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。例BL5の有機発光素子は、図5の例NPの光散乱層47aを有する有機発光素子に、粒子膜100(陽極46と光散乱層47aとの間)及び半透明金属層99(光散乱層47aとホール輸送層48の間)を設けたものである。粒子膜100は、図8の例BL2と同様に、部分的に光を反射しかつ透過性を有するように設定された、粒子の複数を含む薄膜である。部分的に光を反射しかつ透過性を有する半透明金属層99は、図6の例BLと同様に、例えばAg及びMoO_3を少なくとも1層からなる薄膜である。

[0049] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図5、図6に示す有

機発光素子の場合と同様であるが、陽極46側へ向かう光線のうち発光層49にやや沿った方向への半透明金属層99を透過した光線は光散乱層47aのレイリー散乱に応じて光線が散乱されて、粒子膜100を経て陽極46から有機発光素子の外部に出力される。有機発光素子は光散乱層47a及び粒子膜100によって光取り出し効率が向上するため、全体としてコントラストが増大する。

[0050] ＜例BL6＞

図12は、例BL6の有機発光素子内における光路の一例を示す断面のイメージ図である。なお図示の各層の間には隙間が存在しているが、これは図面の見やすさを考慮し、設けたものである。この有機発光素子1は、ガラス基板上に、透明陽極46、粒子の複数が分散されたホール注入層である光散乱層47a、ホール注入層47、半透明金属層99、ホール輸送層48、発光層49、電子輸送層50、電子注入層51及び金属陰極52が順次積層された構造となっている。例BL6の有機発光素子は、図7の例BL1の光散乱層47aを有する有機発光素子にホール注入層47（半透明金属層99と光散乱層47aの間）を設けたものである。部分的に光を反射しかつ透過性を有する半透明金属層99は、図6の例BLと同様に、例えばAg及びMoO_3を少なくとも1層からなる薄膜である。

[0051] 有機発光素子の発光層49におけるEL発光及び外光の光路は図5、図6に示す有機発光素子の場合と同様であるが、陽極46側へ向かう光線のうち発光層49にやや沿った方向への半透明金属層99を透過した光線は光散乱層47aのレイリー散乱に応じて光線が散乱されて、陽極46から有機発光素子の外部に出力される。有機発光素子は光散乱層47aによって光取り出し効率が向上するため、全体としてコントラストが増大する。

実施例

[0052] ＜基準例ref＞：ガラス基板／透明電極／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0053] ガラス基板上にITO（インジウムスズ酸化物）の透明電極を常温スパッタにより形成し、その上に、NPB（ナフチルペンチルベンジジン）のホール輸送層を70nm厚さで、次いで、Alq3（トリス（8－キノリノラト）アルミニウム、緑色発光色素）の電子輸送性

有機発光層を60nm厚さで、最後にアルミニウムの反射電極を80nm厚さで順に真空蒸着によりに成膜した。

[0054] ＜基準例偏光板付きref'＞:ガラス基板／透明電極／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0055] 基準例refの有機EL素子を作製し、そのガラス基板に偏光板を貼り付けた。

[0056] ＜例NP－t＞:ガラス基板／透明電極／光散乱層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0057] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、粒径11nmのナノシリカ(SiO_2)(7wt%)を混合したPEDOT(ポリ(3, 4-エチレンジオキシチオフェン))を31nm厚で形成し、その上に、NPBホール輸送層を39nm厚さで成膜した以外、基準例refと同様に有機EL素子を作製した。PEDOTとPSS(ポリスチレンスルホネート)とIPA(イソプロピルアルコール)を含むPEDOT溶液を調製しこれにナノシリカを添加して塗布した。

[0058] ＜例NP－r＞:ガラス基板／透明電極／光散乱層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0059] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、ナノシリカに代えて粒径8nm～10nmの銀ナノ粒子(Ag)(50wt%)を混合したPEDOTを45nm厚で形成し、その上に、NPBホール輸送層を25nm厚さで成膜した以外、例NP－tと同様に有機EL素子を作製した。PEDOT溶液を調製しこれに銀ナノ粒子を添加して塗布した。

[0060] ＜例BL＞:ガラス基板／透明電極／ホール注入層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0061] ガラス基板上のITO透明電極上に、ホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、ナノシリカ又は銀のナノ粒子を含まないPEDOTのみを30nm厚で形成し、その上に、半透明金属層として、Ag及びMoO_3をそれぞれ15nm及び3nm厚さで順に真空蒸着によりに成膜し、その上に、NPBホール輸送層を42nm厚さで成膜した以外、基準例refと同様に有機EL素子を作製した。PEDOTスピンコートでは、PEDOT溶液を調製しこれのみを塗布した。

[0062] ＜例BL1(1)＞:ガラス基板／透明電極／光散乱層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0063] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、粒径11nmのナノシリカ(SiO_2)(7wt%)を混合したPEDOTを31nm厚で形成し、その上に、半透明金属層を成膜した以外、例BLと同様に有機EL素子を作製した。

[0064] ＜例BL1(2)＞:ガラス基板／透明電極／光散乱層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0065] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、ナノシリカに代えて粒径8nm～10nmの銀ナノ粒子(Ag)(50wt%)を混合したPEDOTを45nm厚で形成し、その上に、半透明金属層を成膜した以外、例BLと同様に有機EL素子を作製した。

[0066] ＜例BL2＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／ホール注入層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0067] ガラス基板上のITO透明電極上に、粒子膜として、銀ナノ粒子混合溶液をスピンコートにより塗布後、焼成(200℃)して粒径8nm～10nmの銀ナノ粒子(Ag)を24nm厚で形成し、その上に、ホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、ナノシリカ又は銀のナノ粒子を含まないPEDOTのみを32nm厚で形成し、その上に、NPBホール輸送層を42nm厚さで成膜した以外、基準例refと同様に有機EL素子を作製した。銀ナノ粒子スピンコートでは、銀ナノ粒子を攪拌したアルコール水溶液を調製しこれを塗布した。金属微粒子はスピンコートにて成膜にした場合、基板面方向に導通があると、パターニングされたITO陽極よりも発光面積が拡大してしまう。このため、発光面積を規定するため、金属ナノ粒子パターニングが必要となる。しかしながら、膜厚さを43nm以下と薄くし、ITO上にAgナノ粒子の不連続な凝集体構造を形成することで、凝集体同士の接点がなくなり、基板面方向の導通がなくなることが知見された。このため、発光面積を規定するようなAgナノ粒子層などの粒子膜のパターニングが不要となるメリットがある。PEDOTスピンコートでは、PEDOT溶液を調製しこれのみを塗布した。

[0068] ＜例BL3＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／ホール注入層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0069] PEDOTホール注入層の上に、半透明金属層として、Ag及びMoO_3をそれぞれ15nm及び3nm厚さで順に真空蒸着によりに成膜し、その上に、NPBホール輸送層を42nm厚さで成膜した以外、例BL2と同様に有機EL素子を作製した。

[0070] ＜例BL4＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／光散乱層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0071] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、粒径11nmのナノシリカ(SiO_2)(7wt%)を混合したPEDOTを31nm厚で形成し、その上に、NPBホール輸送層を39nm厚さで成膜した以外、例BL2と同様に有機EL素子を作製した。

[0072] ＜例BL5(1)＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／光散乱層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0073] ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、粒径11nmのナノシリカ(SiO_2)(7wt%)を混合したPEDOTを31nm厚で形成し、その上に、半透明金属層として、Ag及びMoO_3をそれぞれ15nm及び3nm厚さで順に真空蒸着によりに成膜し、その上に、NPBホール輸送層を42nm厚さで成膜した以外、例BL2と同様に有機EL素子を作製した。

[0074] ＜例BL5(1)'＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／光散乱層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0075] ホール輸送層として、CuPc(銅フタロシアニン)及びNPBをそれぞれ15nm及び27nm厚さで順に真空蒸着によりに成膜した以外、例BL5(1)と同様に有機EL素子を作製した。

[0076] ＜例BL5(2)＞:ガラス基板／透明電極／粒子膜／光散乱層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を

作製した。

[0077] ガラス基板上のITO透明電極上に、粒子膜として、銀ナノ粒子混合溶液をスピンコートにより塗布後、焼成(200℃)して粒径8nm～10nmの銀ナノ粒子(Ag)を24nm厚で形成した以外、例BL1(1)と同様に有機EL素子を作製した。

[0078] ＜例BL6＞:ガラス基板／透明電極／光散乱層／ホール注入層／半透明金属層／ホール輸送層／有機発光層／電子注入層／反射電極という構成の有機EL素子を作製した。

[0079] 粒子膜を設けずに代わりに、ガラス基板上のITO透明電極上に、光散乱層のホール注入層として、スピンコート塗布及び焼成(200℃)より、ナノシリカに代えて粒径8nm～10nmの銀ナノ粒子(Ag)(50wt%)を混合したPEDOTを45nm厚で形成した以外、例BL3と同様に有機EL素子を作製した。

[0080] 上記例の有機EL素子の主な素子構造(粒子膜／ホール注入層(光散乱層)／半透明金属層／ホール輸送層)を下表1に示す。

[0081] [表1]

例	粒子膜 (膜厚)	ホール注入層 (膜厚)	半透明金属層 (膜厚)		ホール輸送層 (膜厚)
ref	—	—	—	—	NPB (70nm)
ref'	—	—	—	—	NPB (70nm)
NP-t	—	PEDOT+ナノシリカ (31nm)	—	—	NPB (39nm)
NP-r	—	PEDOT+Agナノ粒子 (45nm)	—	—	NPB (25nm)
BL	—	PEDOT (30nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL1(1)	—	PEDOT+ナノシリカ (31nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL1(2)	—	PEDOT+Agナノ粒子 (45nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL2	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT (32nm)	—	—	NPB (13nm)
BL3	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT (32nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL4	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT+ナノシリカ (31nm)	—	—	NPB (39nm)
BL5 (1)	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT+ナノシリカ (31nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL5 (1)'	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT+ナノシリカ (31nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	CuPc/NPB (15nnm/27nm)
BL5 (2)	Agナノ粒子 (24nm)	PEDOT+Agナノ粒子 (45nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)
BL6	—	PEDOT+Agナノ粒子 /PEDOT (45nm/32nm)	Ag (15nm)	MoO_3 (3nm)	NPB (42nm)

[0082] 上記例の有機EL素子の所定電流密度における駆動電圧に対する輝度(輝度率)及びCIE色度を測定した。その結果を下表2に示す。

[0083] [表2]

例	駆動電圧 V@7.5mA/cm^2	輝度(輝度率) L@7.5mA/cm^2	CIE	
			x	y
ref	4.4	323 (1)	0.358	0.549
ref'	4.4	118 (0.36)	0.355	0.558
NP-t	4.3	301(0.93)	0.349	0.561
NP-r	ND (発光確認)			
BL	5.2	513 (0.46)	0.3	0.624
BL1(1)	4.3	150 (0.46)	0.289	0.578
BL1(2)	実施しておりません。			
BL2	4.3	195 (0.6)	0.258	0.600
BL3	4.8	243 (0.75)	0.215	0.667
BL4	ND (発光確認)			
BL5 (1)	ND (発光確認)			
BL5 (1)'	ND (発光確認)			
BL5 (2)	—			
BL6	4.8	370 (1.15)	0.275	0.625

[0084] 円偏光板付きの例ref'では45%以下にEL発光が低下するが、他の例では半減はしていない。

[0085] NDの値が得られなかった例は、粒子膜を使用するため界面が荒れ、リークし易くなっためと考えられるが、その発光は確認された。

[0086] 上記例の有機EL素子の反射スペクトルを測定した。その結果を図13に示す。

[0087] 上記例の有機EL素子の反射スペクトルの所定波長の外光反射率比を測定し、EL

輝度と外光カットの程度を判定した。その結果を下表3に示す。外光反射率比は可視領域を選択し、例refを1と規格化した際の値(割合)を示す。反射率に関して基準ref素子より反射率が10%以下に低下した値の素子があった。

[0088] EL輝度は円偏光板使用時(例ref')より高い値を○と判定し、外光カット(反射率)は波長550nm下で反射率が低減した値を○判定した。

[0089] [表3]

	各波長の外光反射率比			判　定	
例	450nm	550nm	650nm	EL輝度	外光カット(反射率)@550nm
ref	1	1	1	—	—
ref'	0.06	0.02	0.04	—	—
NP-t	1.05	1	1.04	○	×
NP-r	0.54	0.35	0.44	ND (○)	×
BL	1.05	0.36	0.92	○	×
BL1(1)	0.70	0.09	0.23	○	○
BL1(2)	—			—	
BL2	1.05	0.36	0.320	○	×
BL3	0.65	0.07	0.06	○	○
BL4	0.85	0.55	0.51	ND (○)	×
BL5 (1)	0.65	0.19	0.09	ND (○)	△
BL5 (1)'	0.54	0.12	0.10	ND (○)	○
BL5 (2)	—			—	
BL6	0.61	0.19	0.60	○	△

[0090] 上記例の有機EL素子の結果から、ホール注入層としての光散乱層すなわち、キャリア注入輸送性を有する有機材料と有機材料内に分散された複数の粒子とを含む光散乱層を備えた素子が適度な外光遮断性を示すことが分かった。

[0091] 上記実施形態における有機発光素子は、各層を次のように構成することもできる。

[0092] ＜積層構成の変形例＞

上述した実施形態は、主としてボトムエミッションタイプの有機発光素子について説明してきたが、光L1、L2が発光層49から透明陰極52から出力されるトップエミッションタイプの有機発光素子にも適用することができる。

[0093] たとえば、図14に示すように透明陰極52と電子輸送層50との間の位置に電子注入層である光散乱層51aを形成するようにしてもよい。このようにすると、光取り出し効率が向上する。

[0094] さらに、図15に示すように透明陰極52と電子輸送層50との間において、透明陰極52側から順に電子注入層である光散乱層51aと半透明金属層99とを形成されていてもよい。このようにすると、上述のように光取り出し効率を向上することができる。両図に示す有機発光素子において、反射性の陽極46上にホール注入層47、ホール輸送層48、有機発光層49、電子輸送層50が順に形成されている。

[0095] このように、有機発光層40と陽極46又は陰極52との間に配置された有機半導体層40の少なくとも一つが、有機発光層49からの発光光が透過するように電子及び又はホールを輸送するキャリア注入輸送性を有する有機材料と有機材料内に分散された複数の粒子とを含む光散乱層である構成にすればよい。このようにすると、上述のように光取り出し効率を向上することができる。

請求の範囲

[1] 第1電極及び第2電極の間に積層されかつ有機発光層を含む複数の有機半導体層からなる有機発光素子であって、

前記有機発光層と前記第1及び2電極の少なくとも一方との間に配置された前記有機半導体層の少なくとも一つが、前記有機発光層からの発光光が透過するように電子及び又はホールを輸送するキャリア注入輸送性を有する有機材料と前記有機材料内に分散された複数の粒子とを含む光散乱層である、ことを特徴とする有機発光素子。

[2] 前記粒子は針状、円柱状、板状、矩形状、立体状、円錐、球状や角柱状等の個別、集合体であることを特徴とする請求項1記載の有機発光素子。

[3] 前記粒子は平均粒径が0．1nmから10000nmを有することを特徴とする請求項1又は2記載の有機発光素子。

[4] 前記粒子は隣接するもの同士間の距離が0．1nm以上1μm以下である密度で分散されていること特徴とする請求項1又は2記載の有機発光素子。

[5] 前記粒子は前記有機材料と0．01以上の屈折率差があることを特徴とする請求項1～4のいずれか1に記載の有機発光素子。

[6] 前記粒子は金属、酸化物、複合酸化物、フッ化物、又は高分子材料であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1に記載の有機発光素子。

[7] 前記光散乱層は高低差0．1nm以上1000nm以下の凹凸界面を持つことを特徴とする請求項1～6のいずれか1に記載の有機発光素子。

[8] 前記光散乱層は、1×10^{-10}～1×10^{10} cm^2／Vsのキャリア移動度、又は10^{10}～10^{-10}Ω・cmの導電性を持つことを特徴とする請求項1～7のいずれか1に記載の有機発光素子。

[9] 前記光散乱層と前記第1及び2電極の少なくとも一方との間に配置された粒子の複数を含む粒子膜をさらに有することを特徴とする請求項8記載の有機発光素子。

[10] 前記粒子膜の粒子は酸化物、複合酸化物、フッ化物、金属で形成され、前記粒子膜の粒子が有機バインダーにより凝集した凝集膜であること特徴とする請求項9記載の有機発光素子。

[11] 前記粒子膜は導電性を有することを特徴とする請求項9又は10記載の有機発光素子。

[12] 前記粒子膜は、1×10^{-10}～1×10^{10}cm^2／Vsのキャリア移動度、又は10^{10}～10^{-10}Ω・cmの導電性を持つことを特徴とする請求項9～11のいずれか1に記載の有機発光素子。

[13] 前記粒子膜は前記第1及び2電極の少なくとも一方に接していることを特徴とする請求項9～12のいずれか1に記載の有機発光素子。

[14] 光を取り出す側の前記第1電極又は第2電極は透明又は半透明な電極であり、光を取り出す側の反対の前記第1電極又は第2電極は光を反射する電極であることを特徴とする請求項1～13のいずれか1に記載の有機発光素子。

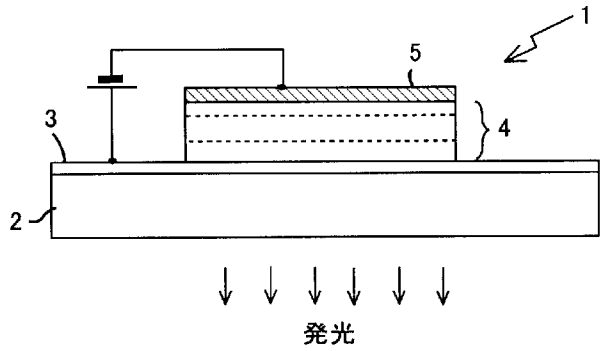
[15] 前記光散乱層と前記第1及び2電極の少なくとも一方との間に配置された、部分的に光を反射しかつ透過性を有する半透明金属層をさらに有することを特徴とする請求項1～14のいずれか1に記載の有機発光素子。

[16] 前記半透明金属層の膜厚が10nm以上50nm以下であることを特徴とする請求項15記載の有機発光素子。

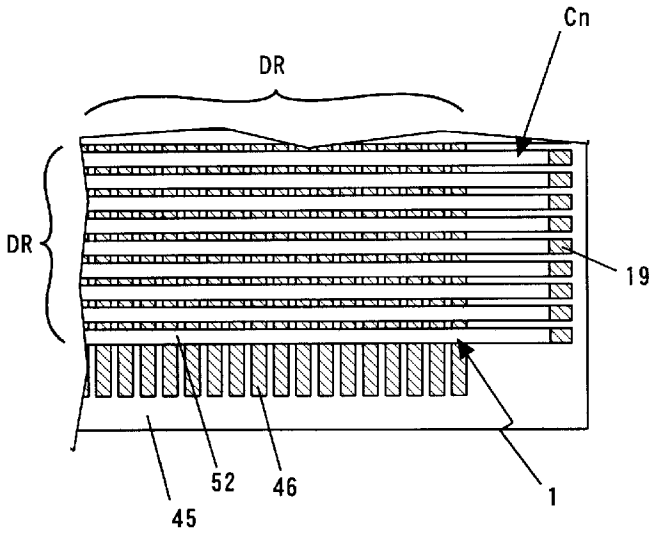
[17] 前記光を取り出す側の前記第1電極又は第2電極は陽極であり、前記陽極と前記有機発光層との間にある前記有機発光層は、前記陽極に接しホールを取り出し易くするホール注入層、及び前記ホールを前記有機発光層に輸送するホール輸送層のすくなくとも1つを含むことを特徴とする請求項1～16のいずれか1に記載の有機発光素子。

[18] 前記光を取り出す側の反対の前記第1電極又は第2電極は陰極であり、前記陰極と前記有機発光層との間にある前記有機発光層は、前記陽極に接し電子を取り出し易くする電子注入層、及び前記電子を前記有機発光層に輸送する電子輸送層のすくなくとも1つを含むことを特徴とする請求項1～17のいずれか1に記載の有機発光素子。

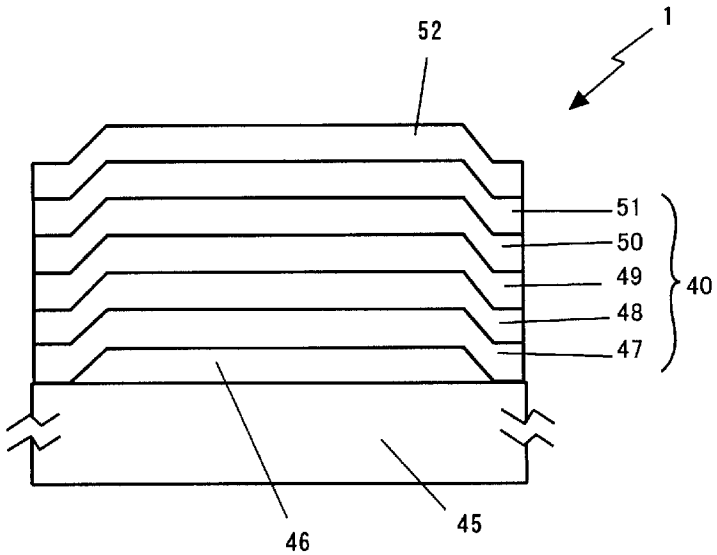
[図1]



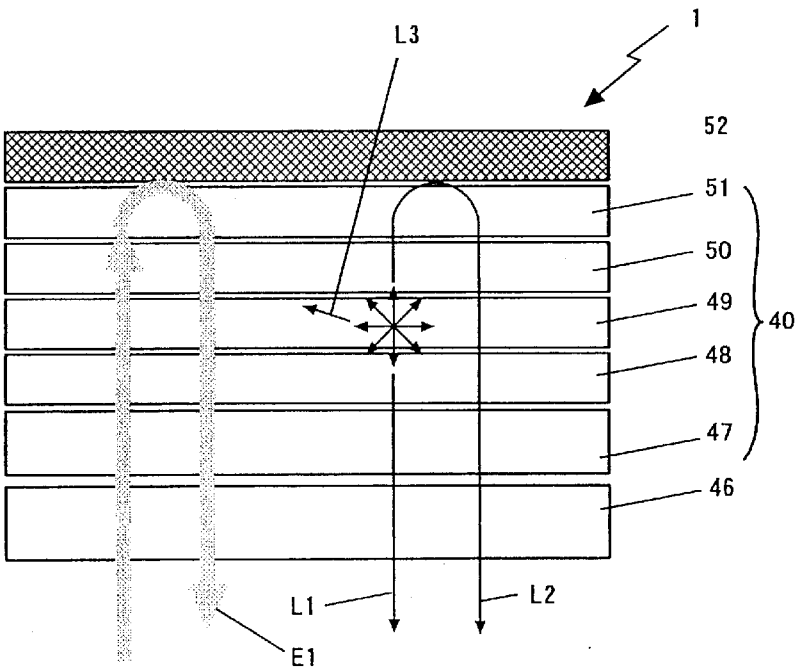
[図2]



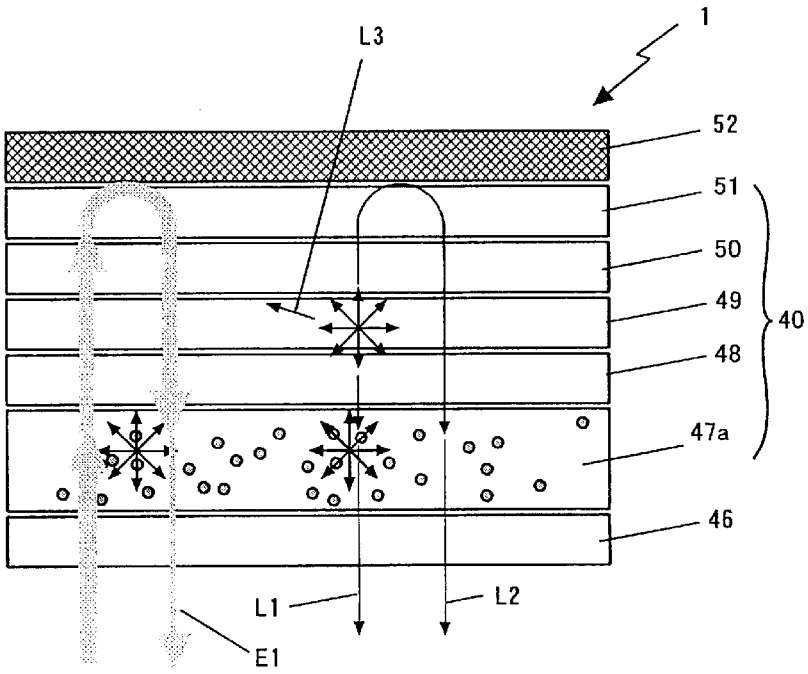
[図3]



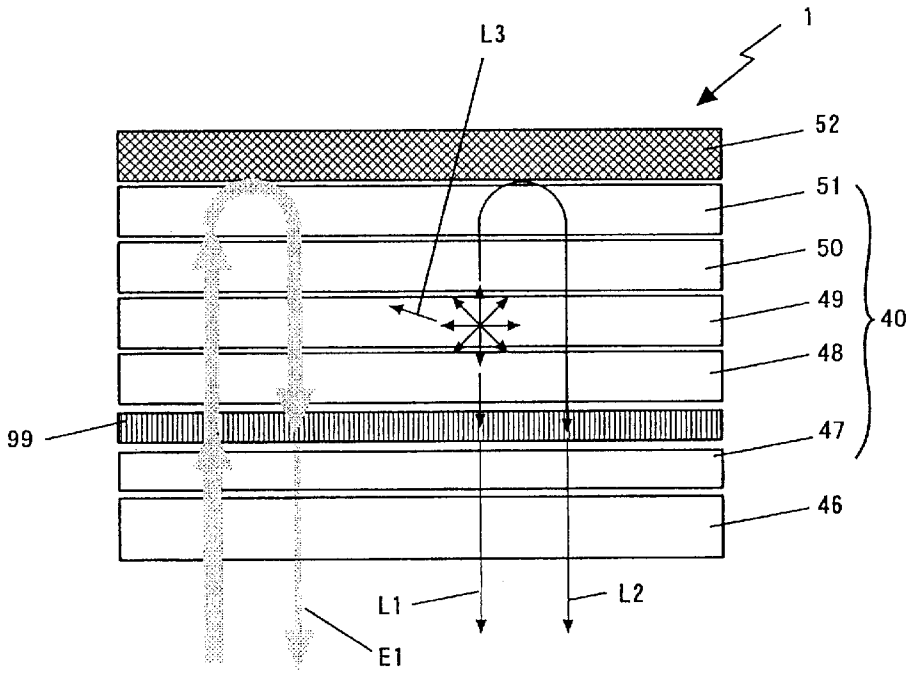
[図4]


L3
1
52
51
50
49
48
47
46
40
L1
L2
E1

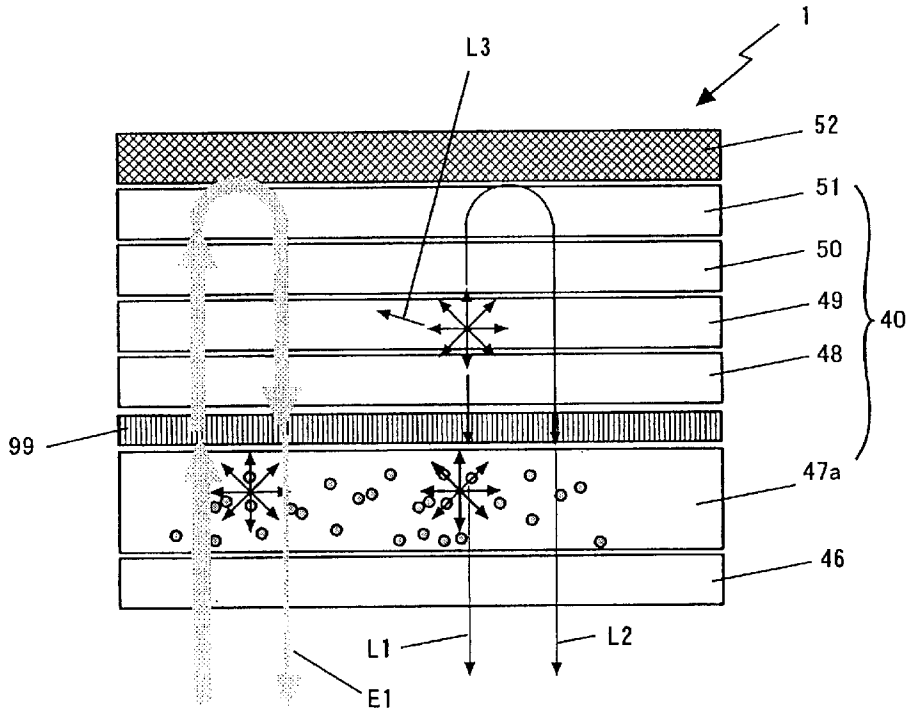
[図5]


L3
1
52
51
50
49
48
47a
46
40
L1
L2
E1

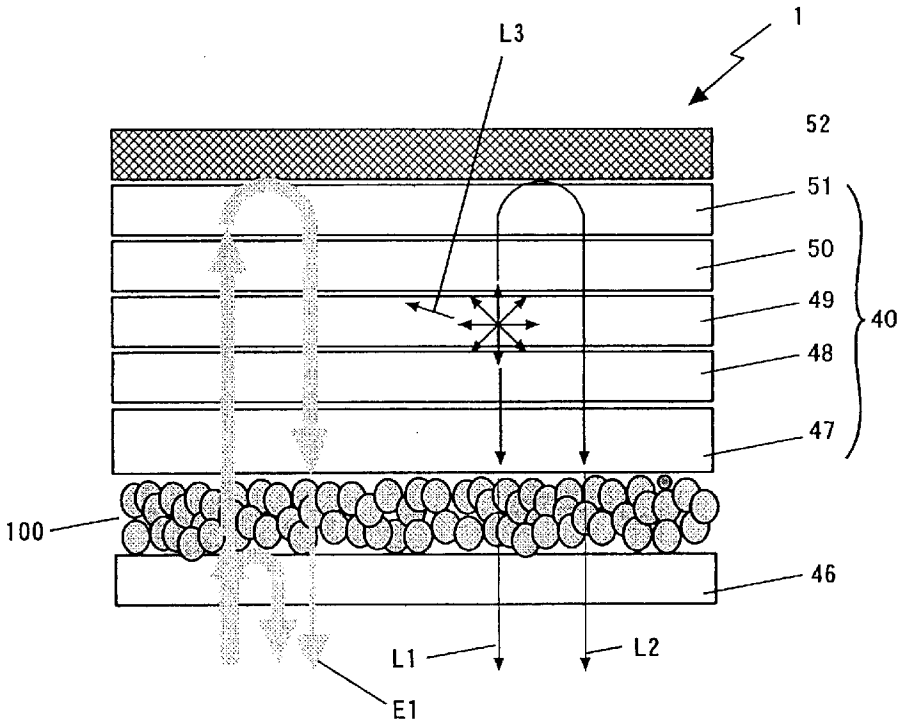
[図6]


1
L3
52
51
50
49
48
40
99
47
46
L1
L2
E1

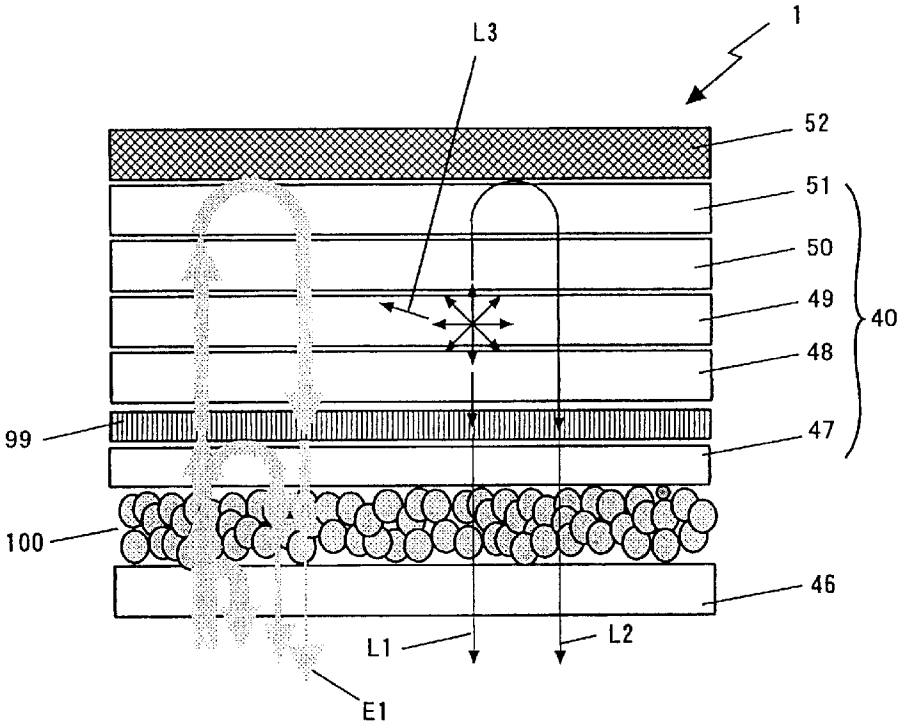
[図7]


1
L3
52
51
50
49
48
40
99
47a
46
L1
L2
E1

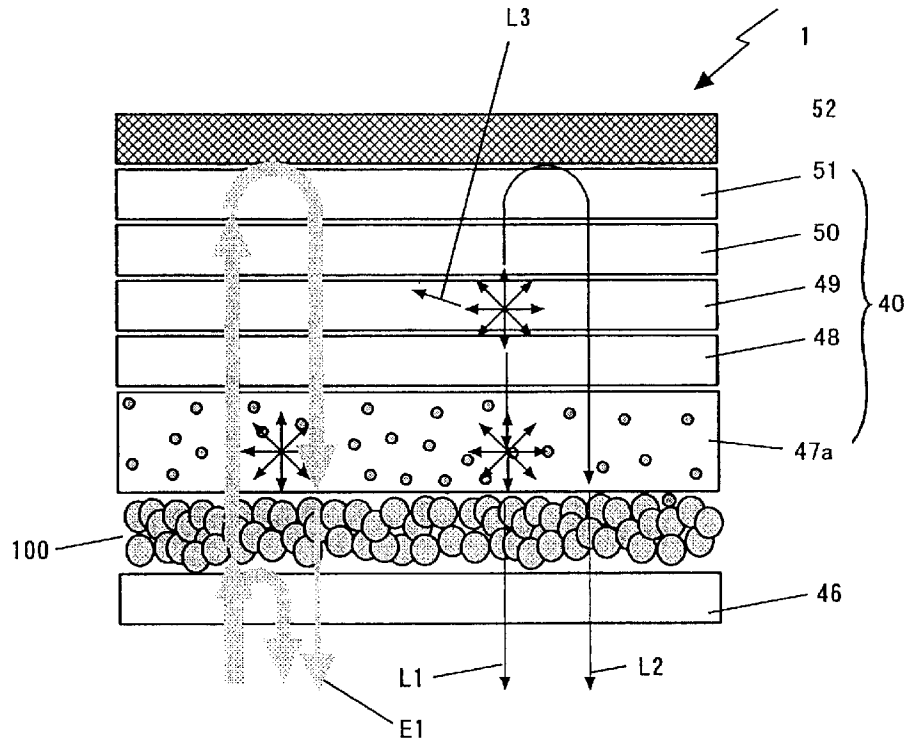
[図8]


L3
1
52
51
50
49
48
47
40
100
46
L1
L2
E1

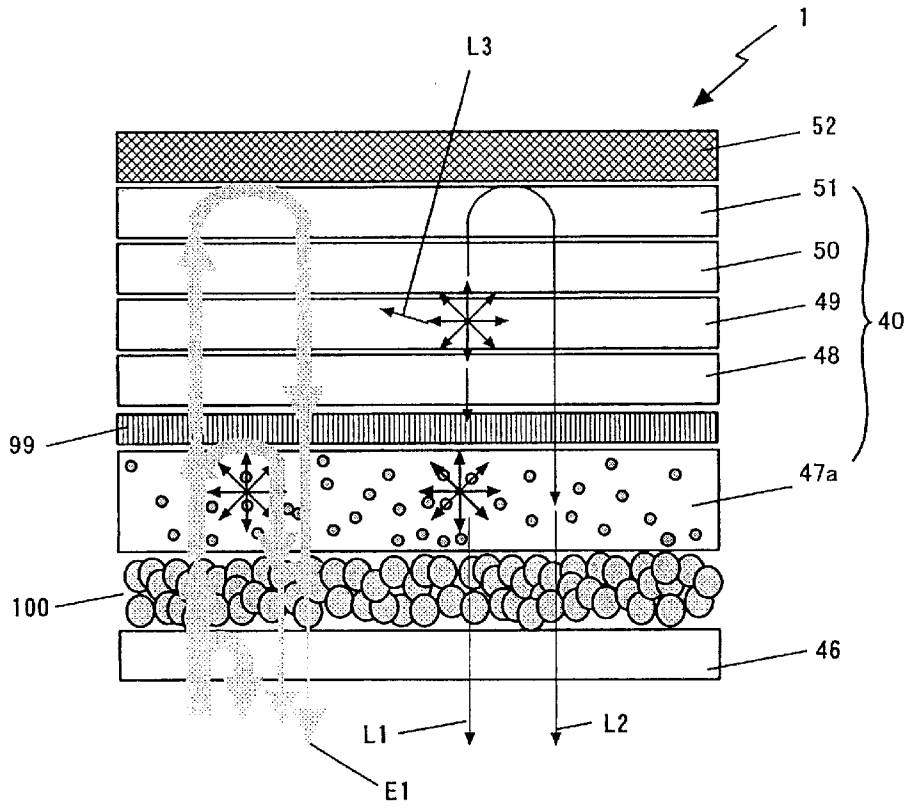
[図9]


L3
1
52
51
50
49
48
40
99
47
100
46
L1
L2
E1

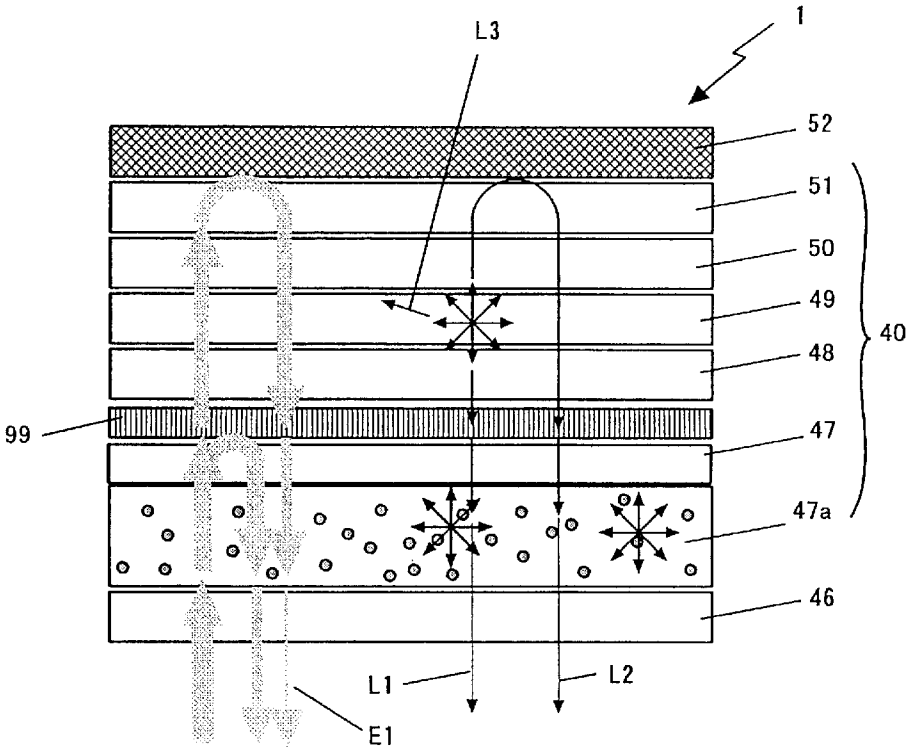
[図10]


L3
1
52
51
50
49
48
40
47a
100
46
L1
L2
E1

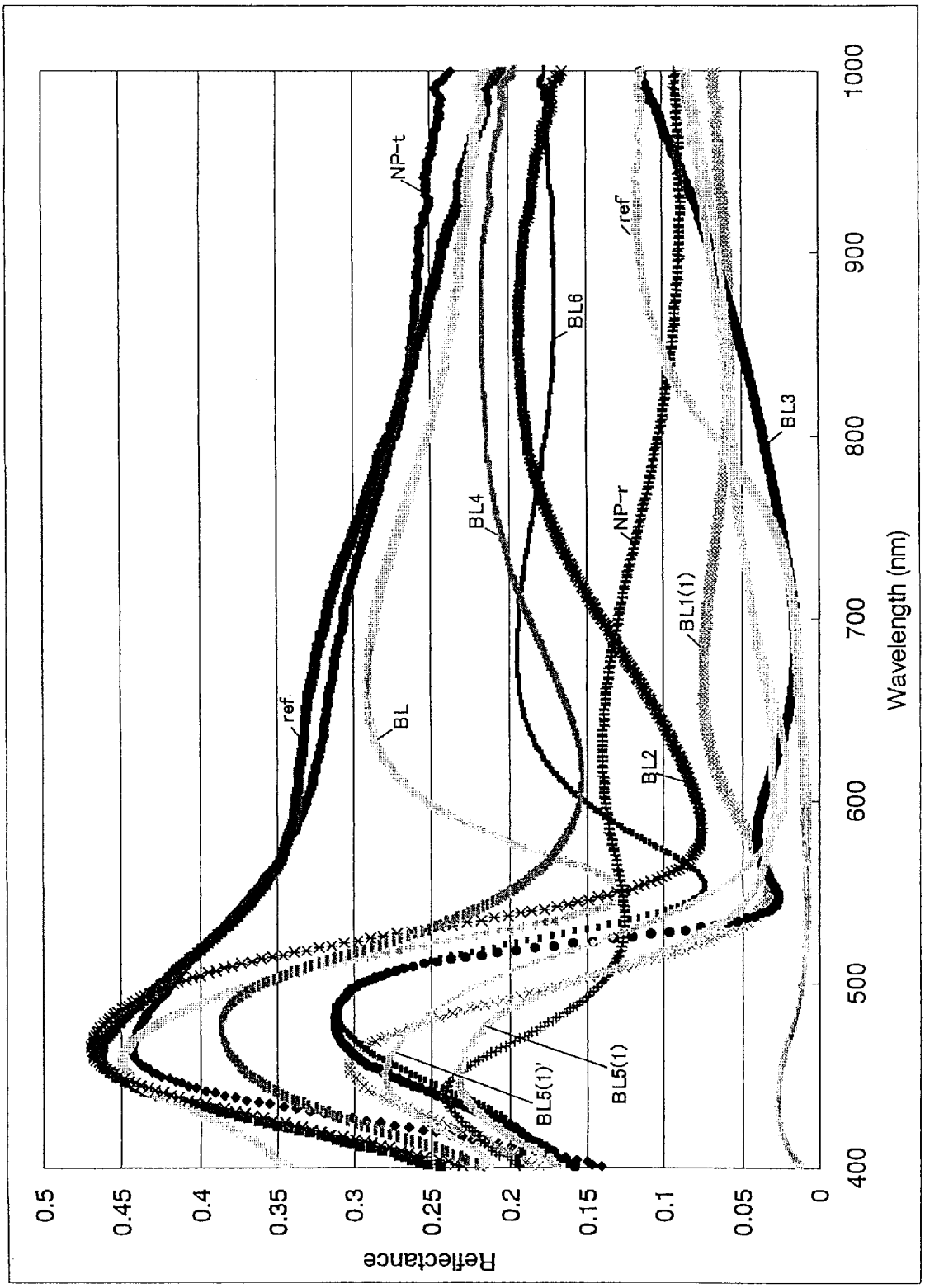
[図11]


1
L3
52
51
50
49
48
40
99
47a
100
46
L1
L2
E1

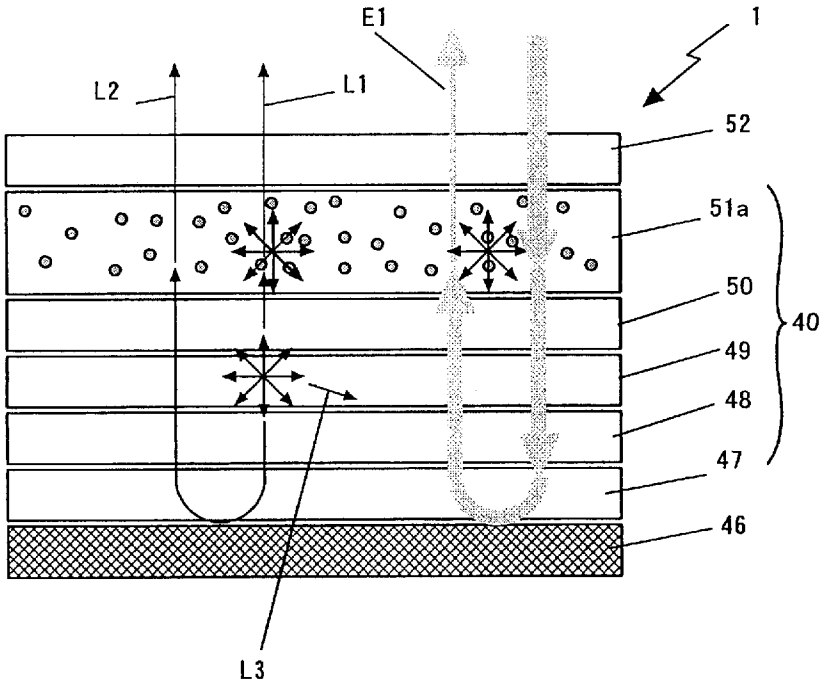
[図12]



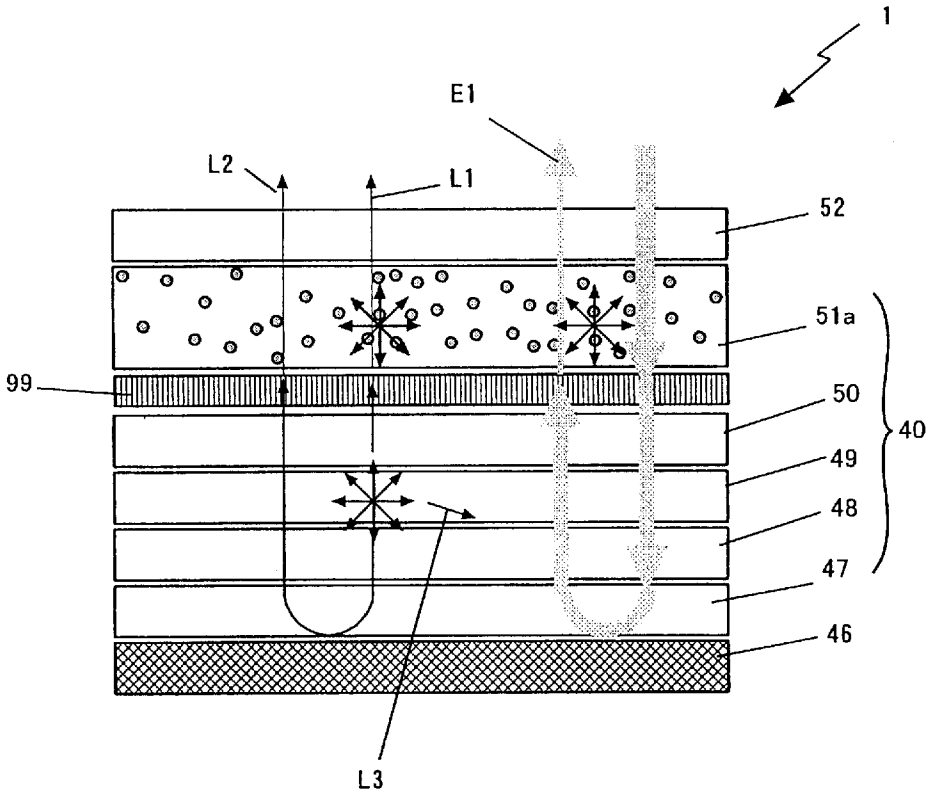
[図13]


Reflectance
0.5
0.45
0.4
0.35
0.3
0.25
0.2
0.15
0.1
0.05
0
400
500
600
700
800
900
1000
Wavelength (nm)
NP-t
ref
BL6
ref
BL3
BL4
NP-r
BL1(1)
BL
BL2
BL5(1)'
BL5(1)

[図14]


E1
1
L2
L1
52
51a
50
40
49
48
47
46
L3

[図15]


1
E1
L2
L1
52
51a
99
50
40
49
48
47
46
L3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/059349

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01L51/50(2006.01)i, *H05B33/22*(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)
H01L51/50-51/56, H01L27/32, H05B33/00-33/28

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 1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008

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 2005-63704 A (Stanley Electric Co., Ltd.), 10 March, 2005 (10.03.05), Claim 7; Par. Nos. [0008], [0009], [0054], [0055], [0078], [0079]; Fig. 4(b) (Family: none)	1-8,14,17,18 9-13,15,16
Y	JP 2007-165284 A (Seiko Instruments Inc.), 28 June, 2007 (28.06.07), Par. Nos. [0014] to [0018]; Fig. 1 & US 2007/0114523 A1 & KR 10-2007-0053144 A & CN 1967901 A	9-13
Y	JP 2008-59905 A (Tokyo Institute of Technology), 13 March, 2008 (13.03.08), Par. Nos. [0044] to [0046] (Family: none)	15,16

☐ 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	Date of mailing of the international search report
12 June, 2008 (12.06.08)	24 June, 2008 (24.06.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／０５９３４９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L51/50(2006.01)i, H05B33/22(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.　H01L51/50-51/56, H01L27/32, H05B33/00-33/28

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	１９７１－２００８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００８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　２００５－６３７０４　Ａ　（スタンレー電気株式会社）２００５．０３．１０、請求項７、段落【０００８】、【０００９】、【００５４】、【００５５】、【００７８】、【００７９】、図４（ｂ）（ファミリーなし）	1-8、１４、１７、１８
Ｙ		9-１３、１５、１６

☑　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	国際調査報告の発送日
１２．０６．２００８	２４．０６．２００８

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　２Ｏ　３９１１
中山　佳美
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	関連する請求の範囲の番号
Ｙ	ＪＰ　２００７－１６５２８４　Ａ　（セイコーインスツル株式会社） ２００７．０６．２８、段落【００１４】乃至【００１８】、図１ ＆　ＵＳ　２００７／０１１４５２３　Ａ１ ＆　ＫＲ　１０－２００７－００５３１４４　Ａ ＆　ＣＮ　１９６７９０１　Ａ	９－１３
Ｙ	ＪＰ　２００８－５９９０５　Ａ　（国立大学法人東京工業大学） ２００８．０３．１３、段落【００４４】乃至【００４６】 （ファミリーなし）	１５、１６