

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷

H05B 33/08



[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 02815610.2

H05B 33/14 H05B 33/22
G09C 3/20

[43] 公开日 2004 年 10 月 27 日

[11] 公开号 CN 1541502A

[22] 申请日 2002.7.8 [21] 申请号 02815610.2

[30] 优先权

[32] 2001.8.9 [33] JP [31] 242610/2001

[86] 国际申请 PCT/JP2002/006889 2002.7.8

[87] 国际公布 WO2003/017730 日 2003.2.27

[85] 进入国家阶段日期 2004.2.9

[71] 申请人 出光兴产株式会社

地址 日本东京

[72] 发明人 松浦正英 细川地潮

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利
商标事务所

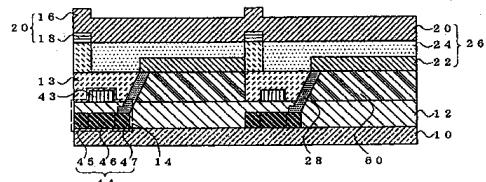
代理人 杜日新

权利要求书 2 页 说明书 23 页 附图 5 页

[54] 发明名称 有机电致发光显示装置及其驱动方法

[57] 摘要

在具有于上部电极(20)与下部电极(22)之间夹持有机发光介质(24)而构成的有机电致发光元件(26)和用于驱动此有机电致发光元件(26)的驱动电路(14)的有机电致发光显示装置(30)中，此有机发光介质(24)包含三重态相关性发光化合物，而此驱动电路(14)则施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 、占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电压或电流，由此可以提供耗电低、发光寿命长的有机电致发光显示装置及其驱动方法。



1.一种有机电致发光显示装置，包括：在上部电极与下部电极之间由夹持包含有主体化合物与磷光性发光化合物的有机发光介质构成的有机电致发光元件，以及施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 而占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电流或脉冲电压以驱动此有机电致发光元件的驱动电路。

2.根据权利要求1所述的有机电致发光显示装置，其中上述磷光发光性化合物为三重态相关性发光化合物。

3.根据权利要求1所述的有机电致发光显示装置，其中上述驱动电路在施加用于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流后，施加与有机电致发光元件的电极间所加脉冲电压(V1)反向的电压(V2)。

4.根据权利要求3所述的有机电致发光显示装置，其中上述驱动电路施加比脉冲电压(V1)小的反向电压(V2)。

5.根据权利要求1所述的有机电致发光显示装置，其中上述三重态相关性发光化合物是有机金属络合物。

6.根据权利要求5所述的有机电致发光显示装置，其中上述金属络合物包含有从Ir,Pt,Pd,Ru,Rh,Mo,Re,Pb与Bi构成的组中选择的至少一种金属。

7.根据权利要求5所述的有机电致发光显示装置，其中在上述有机发光介质与阴极之间具有空穴阻挡层。

8.根据权利要求7所述的有机电致发光显示装置，其中上述空穴阻挡层含有菲咯啉衍生物。

9.根据权利要求1所述的有机电致发光显示装置，其中上述驱动电路包含有机电致发光元件的发光控制用薄膜晶体管(TFT)。

10.有机电致发光显示装置的一种驱动方法，该有机电致发光显示装置具有在上部电极与下部电极之间夹持有机发光介质构成的有机电致发光元件，此驱动方法包括：

通过驱动电路施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 而占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电流或脉冲电压，驱动上述有机电致发光元件。

11.根据权利要求 10 所述的有机电致发光显示装置的驱动方法，其中上述驱动电路在施加用于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流后，施加与有机电致发光元件的电极间所加脉冲电压（V1）反向的电压（V2）。

有机电致发光显示装置 及其驱动方法

技术领域

本发明涉及有机电致发光显示装置及其驱动方法（这种显示装置以后有时也称为有机 EL 显示装置）。更详细地说，本发明涉及低功率消耗，能获得长发光寿命的有机 EL 显示装置及其驱动方法。

此外，本申请说明书中提到的“EL”则是电致发光（ELECTROLUMINESCENCE）的缩写表示。

背景技术

周知有通过矩阵电极结构驱动在电极间夹持有机发光层的有机 EL 元件的单纯驱动型有机 EL 显示装置，例如特开平 2-37385 号公报与特开平 3-233891 号公报中所示。

在这种单纯驱动型有机 EL 发光装置中，由于是进行所谓线性顺次驱动，对于扫描线数有好几百时，所要求的瞬时亮度达到观察亮度的数百倍，结果产生了下述问题。

(1)，由于驱动电压高达直流稳压的 2-3 倍以上，使发光效率降低或增大电功率消耗。

(2)，由于瞬时流过的电流量达到数百倍，易使有机发光层恶化。

(3)，与(2)相同，由于电流量极大，致使电极配线的电压降加剧。

为此提出了驱动有机 EL 元件的有源驱动型有机 EL 发光装置，配备有薄膜晶体管（以后有时用其英文词缩写 TFT）以解决单纯驱动型有机 EL 发光装置的问题。

这种有源驱动型有机 EL 发光装置与单纯驱动型有机 EL 发光装置比较具有能显著降低驱动电压、提高发光效率且能减少电耗。

但是即便是在具有这种效果的有源驱动型有机 EL 发光装置中，例

如在具有包含铱的铬合物的有机发光介质的情形，一方面固然可以获得高的发光亮度，另一方面则有缩短了发光寿命的问题。具体地说，三重态相关性化合物中，分子激励与张驰时间与一重线相关性化合物相比较长，于是电荷积聚于内部，结果空穴与电子的平衡容易破坏。根据《日本应用物理》第38卷 L1502-L1504页(1999)，对于具有包含铱络化物的有机发光介质的情形，在发光亮度 $500\text{cd}/\text{cm}^2$ 的条件下，虽然发光效率在 $40\text{Lm}/\text{W}$ 以上，但半衰期则短到200小时以下。

为此，本发明人等对上述问题进行了深入探讨，作为有机发光媒体即使是应用主体化合物与三重态相关性发光化合物的组合形式时，也能提供耗电低、长时间驱动的有机EL显示装置，由此得知也可能在平板显示器件等领域中获得应用。

这就是说，本发明的目的在于提供耗电低的即令在经长时间驱动的情形下，也不降低发光亮度的有机EL显示装置。

本发明的另一目的则在于提供能以低的消耗功率和长时间驱动上述有机EL显示装置的驱动方法。

发明内容

根据本发明，提供了这样的有机EL(电致发光)显示装置，它包括：于上部电极与下部电极之间由夹持包含有主体化合物与磷光性发光化合物的有机发光媒体构成的有机EL元件；以及施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 而占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电流或脉冲电压，用于驱动此有机EL元件的驱动电路。

通过这样地构成有机EL显示装置，即便是采用三重态相关性发光化合物的情形，也能降低功率消耗和延长发光寿命。

此外，在构成本发明时最好具有这样的驱动电路，它在施加用于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流后，施加与有机EL元件的电极间所加脉冲电压(V1)反向的电压(V2)。

通过这样地构成有机EL显示装置，即便是把三重态相关性发光化合物用作有机发光介质，由于能除去内部积聚的电荷，从而可以进一步延长发光寿命。

在构成本发明之际还再好具有用于施加比脉冲电压（V1）小的反向电压（V2）的驱动电路。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，即便是采用三重态相关性发光化合物时，也能进一步延长发光寿命。

在构成本发明时，此三重态相关性发光化合物最好是有机金属络合物。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，可以使耗电量更低。

在构成本发明时，上述有机金属络合物最好包括从 Ir、Pt、Pd、Ru、Rh、Mo、Re、Pb、Bi 这个组中选取的至少一种金属。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，可以使耗电量更低。

在构成本发明之际。最好于有机发光媒体和阴极之间设置空穴阻挡层。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，即便是应用三重态相关性发光化合物时，也能有更低的耗电量和更长的发光寿命。

在构成本发明之际，最好使空穴阻挡层中包含菲咯啉衍生物。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，即便是应用三重态相关性发光化合物时，也能有更低的耗电量和更长的发光寿命。

在构成本发明之际，上述驱动电路最好包含有机 EL 元件的发光控制用薄膜晶体管（TFT）。

通过这样地构成有机 EL 显示装置，即便是应用三重态相关性发光化合物时，也能有更低的耗电量和更长的发光寿命。

本发明的另一形式是，于上部电极与下部电极之间具有由夹持有机发光媒体构成的有机 EL 元件的有机 EL 显示装置的驱动方法，这一驱动方法是包括通过驱动电路施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 而占空比 $< 1/5$ 的脉冲电流或脉冲电压，以驱动上述有机 EL 元件的有机 EL 显示装置的驱动方法。其中最好是施加脉冲电流。

通过这样地驱动有机 EL 显示装置，即便是应用三重态相关性发光化合物时，也能有更低的耗电量和更长的发光寿命。

此外，在实施本发明的驱动方法之际，所述驱动电路最好在施加用

于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流后，施加与有机 EL 元件的电极间所加脉冲电压（V1）反向的电压（V2）。

通过这样地驱动有机 EL 显示装置，即便是使用三重态相关性发光化合物时，由于能有效地除去内部积聚的电荷，从而可以进一步延长发光寿命。

附图说明

图 1 是本发明的有机 EL 显示装置的剖面图。

图 2 表示占空比与半衰期的关系。

图 3 是包含 TFT 的电路图。

图 4 是包含 TFT 的配置图。

图 5 是施加发光用脉冲时的时间图。

图 6 是施加反电压时的时间图。

图 7 是施加反电压时的时间图。

图 8 是施加反电压时的时间图。

图 9 是施加反电压时的时间图。

具体实施方式

下面参考附图具体说明本发明的实施形式。在所参考的附图中，仅仅概示了能理解本发明程度内的各结构部件的大小、形状与配置关系。因此，本发明并不只是限定于图示的例子，此外在附图中有时省除了表示剖面的阴影。

[第一实施形式]

第一实施形式的有机 EL 发光装置如图 1 所示，有机 EL 显示装置 30 具有设于支承基板 10 上的上部电极 20 与下部电极 22 之间夹持着有机发光介质 24 构成的有机 EL 元件 26 以及用于驱动该有机 EL 元件 26 的驱动电路 14，其特征在于，此有机 EL 显示装置 30 中，有机发光介质 24 包括主体化合物与三重态相关性发光化合物，而驱动电路 14 则施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 、占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电压（V1）或脉冲电流，此时有机 EL 元件

26 的电极间加有电压 (V1)。

此外，图1中虽设有TFT电路，但也可省除此TFT电路，在设有TFT电路的有机EL显示装置中，在通常设定为直流驱动时，于本发明中则假定施加前述的脉冲电压或脉冲电流。

下面于本发明的有机EL发光装置的实施形式中，适当地参考图1，同时说明其结构部件与驱动方法等。

1. 支承基板

有机EL显示装置中的支承基板（下面有时也称作基板）是用于支承有机EL元件与驱动电路等部件，因此最好具有优越的机械强度与尺寸稳定性。

作为这种基板，具体地可以举出玻璃板、金属板、陶瓷板或塑料（如聚碳酸酯树脂、丙烯酸树脂、氯乙烯树脂、聚对苯二甲酸乙酯树脂、聚酰亚胺树脂、聚酯树脂、环氧树脂、酚醛树脂、硅树脂、氟树脂）板。

此外，上述材料组成的基板为免水份侵入有机EL显示装置内，最好于其表面形成无机膜或以氟树脂涂布，施加防湿处理或疏水处理。

因此，为了避免水份侵入有机发光介质，宜通过防潮处理与疏水处理等，此减小基板的含水率与气体透过系数。具体地说，最好是使支承基板的含水率 $< 0.0001\%$ （重量）而气体透过系数 $< 10^{-13} \text{cc} \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.cmHg}$ 。

2. 有机EL元件

(1) 有机发光介质

有机发光介质可以定义为包含有通过电子与空穴的再结合，能进行EL发光的有机发光层的介质。所述有机发光介质例如可以于下部电极之上通过叠层以下各层构成，而三重态相关性发光化合物也可包含于以下任一有机层中。

(i) 有机发光层

(ii) 空穴输送层/有机发光层

(iii) 有机发光层/电子注入层

(iv) 空穴输送层/有机发光层/电子注入层

(v) 空穴输送层/有机发光层/空穴阻挡层/电子注入层

(vi) 空穴输送层/电子阻挡层/有机发光层/电子注入层

①结构材料 1

作为有机发光介质中的发光材料（主体化合物）例如有：咔唑衍生物、对四联苯衍生物、对五联苯衍生物、苯并噻唑系化合物、苯并咪唑系化合物、苯并恶唑系化合物、金属螯合八羟基喹啉盐化合物、恶二唑系化合物、苯乙烯基苯系化合物、联苯乙烯吡嗪衍生物、丁二烯系化合物、萘二甲酰亚胺化合物、菲衍生物、醛连氮衍生物，吡嗪衍生物、茂衍生物、吡咯并基吡咯衍生物、苯乙烯胺衍生物、香豆素系化合物、芳香族二甲基啶系化合物、以 8-喹啉醇衍生物为配位体的金属络合物与聚苯基系化合物等之中的一种或两种以上的组合物。

此外，在上述主体化合物之中最好采用作为芳香族二甲基啶系化合物的 4, 4'-双(2, 2-叔丁基苯)联苯（简记为 DTBPBBI）和 4, 4'-双(2, 2-二苯基乙烯基)联苯（简记为 DPVBi）以及它们的衍生物。

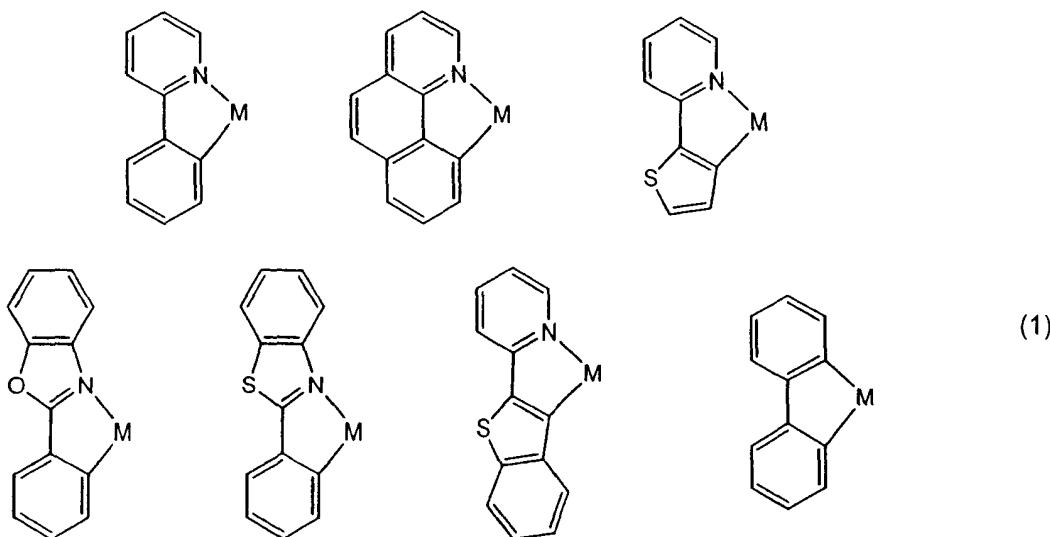
此外，主体化合物为了能利用由三重态相关性发光化合物获得的三重态激励能，最好采用具有较此能级更大的一重线激励能的化合物，而尤为最好是采用具有较此能级更大的三重态激励能的化合物。

②结构材料 2

另一方面，作为磷光性发光化合物指的是发生磷发的化合物，而激励状态寿命保持在 100ns 以上且作为发光弛豫成份其寿命可以观察的化合物也是可以使用的。寿命观察方法则可采用时分发光测定法。

作为磷光发光性化合物最好采用在发光过程中与三重态相关的三重态相关性化合物，特别是从 Ir、Pt、Pd、Ru、Rh、Mo、Re、Pb、Bi 这个组中选择至少一种金属为中心金属，而对其最好采用包括了具有以下式(1)表示的骨架结构的 CN 配位体的化合物及其衍生物。更好是使 CN 配位体为 1 配位或 2 配位，且最好是具有以 LX（这里，LX=OO 或 ON 等）为 1 配位的混合配位体的络合物。作为 LX 配位体，有乙酰丙酮衍生物(acac) 和甲基吡啶衍生物(pic)。作为这种三种线相关性发光化合物例如有铱络合物、铂铬合物、钯铬合物、钌络合物、铷络化物、钼

络合物、铼络合物等之一或两种以上的组合物。



在这类三重态相关性化合物之中，更具体地说，最好是三（2-苯基吡啶基）铱（记为 $(Ir(ppy)_3)$ ）、双（2-苯基吡啶基）钼、三（2-苯基吡啶基）钯、三（2-苯基吡啶基）钌、三（2-苯基吡啶基）铷、三（2-苯基吡啶基）钼、 $Ir(ppy)_2(acac)$ 、 $Ir(btp)_2(acac)$ 、 $Btppt(acac)$ 、 $Ir(bo)_2(acac)$ 、 $Ir(bt)_2(acac)$ 、 $Ir(ppy)_2(Pic)$ 、 $Ir(btp)_2(pic)$ 。

者是采用上述这些三重态相关性化合物，即使在室温状态下也能求得与三重态相关的发光特性。

上述络合物也可以具有取代基，取代基的例子有烷基、氟、芳基等。

最好是使三重态相关性化合物的电离势值大于主体化合物的电离势。

采用这种三重态相关性化合物能使从阳极移动到有机发光层的空穴有效地停止于有机发光层内，从而能进一步提高发光效率。

三重态相关性发光化合物的添加量最好是相对于有机发光介质的总量为0.1-50%（重量）。其理由是，若此添加量<0.1%（重量）则有时不能发挥添加效果，另一方面若此添加量>50%（重量）则有时半衰期过度地短。

因此，三重态相关性发光化合物的添加量相对于有机发光介质的总量最好是1-30%（重量）而尤为最好是5-20%（重量）。

③ 结构材料 3

作为构成空穴输送层的空穴输送材料例如有三唑衍生物、恶二唑系衍生物、咪唑衍生物、聚芳基烷烃衍生物、吡唑啉衍生物、吡唑啉酮衍生物、苯二胺衍生物、芳酰胺衍生物、氨基取代的查耳酮衍生物、恶唑衍生物、芳酮衍生物、腙(hydrozone)衍生物、苯乙烯葱衍生物、芪衍生物、硅胺烷衍生物、聚硅烷、苯胺系共聚物、导电性高分子齐聚物(特别是噻吩剂聚物)等中的一种或二种以上的组合形式。

更具体地说，在这些空穴输送材料之中，特别是双(二芳基氨基)丙炔衍生物、芳基采用聚苯基而亚芳基采用聚亚苯基的衍生物由于寿命特别长是最理想的。

在此，最理想的聚苯基是联苯或三苯基。

④ 构成材料 4

作为构成电子注入层的电子注入材料例如有三(8-羟基喹啉酯)铝、三(8-羟基喹啉酯)钉、双(10-苯并[b]喹啉酯)钡、三唑衍生物、恶二唑衍生物、三嗪衍生物、芑衍生物、喹啉衍生物、喹喔啉衍生物、二苯醌衍生物、硝基取代芳酮衍生物、二氧化噻噁衍生物等之中的一种或二种以上的组合形式。

作为上述电子注入材料的掺杂剂，最好添加碱金属、碱土类金属、稀土类金属、碱性化合物、碱土类化合物、稀土类化合物、有机化合物配位的碱金属。

⑤ 厚度

有机发光介质的厚度虽无特别限制，但以例如厚 $5\text{nm}-5\mu\text{m}$ 为宜。

理由是，若有机发光介质的厚度 $<5\text{nm}$ ，则有时会降低发光亮度与耐久性；而当有机发光介质的厚度超过 $5\mu\text{m}$ ，有时会使施加的电压值升高。

因此，有机发光介质的厚度以 $10\text{nm}-3\mu\text{m}$ 为宜，而最好是 $20\text{nm}-1\mu\text{m}$ 。

(2) 电极

现在说明上部电极与下部电极。在此，对应于有机EL元件的结构，此上部电极与下部电极相当于阳极层与阴极层或有时相当于阴极层与阳

极层。

①下部电极

下部电极根据有机 EL 显示装置的结构相当于阳极层或阴极层，例如在相当于阳极层时，最好采用功函数大的（例如 4.0eV 以上的）金属、合金、导电化合物或是它们的混合物，具体地说，最好单独地使用铟锡氧化物、铟锌氧化物、锶铜氧化物、氧化锡、氧化锌、金、铂、钯等电极材料，或是将这类电极材料两种以上组合使用。

通过使用上述电极材料，可以由真空蒸镀法、溅射法、离子电镀法、电子束蒸镀法、CVD（化学汽相沉积）法、MOCVD（金属氧化物 CVD）法以及等离子体 CVD 法等于干燥状态下成膜的方法，形成具有均匀厚度的电极。

此外，本发明中由于需要从下部电极取出 EL 所发的光，应使此下部电极为透明电极。因此，使用上述电极材料时，最好使其具有 $\geq 70\%$ 的对 EL 发光的透过率。

下部电极的膜厚虽未特别限制，但例如以 10-1000nm 为宜而最好是 10-200nm。

之所以取定上述范围是因为当下部电极的膜厚在此范围内时能获得充分的导电性，同时对于 EL 的发光能获得 $\geq 70\%$ 的高的透过率。

②上部电极

上部电极对应于有机 EL 显示装置也相当于阳极层或阴极层，例如在相当于阴极层时，与阳极层比较，最好采用功函数小的（例如 $< 4.0\text{eV}$ = 的金属、合金、导电性化合物或它们的含有物。

具体地说，最好使用钠、钠-钾合金、铈、镁、锂、镁-银合金、铝、氧化铝、铝锂合金、铟、稀土类金属、这些金属与有机发光介质材料的混合物以及这些金属与电子注入层材料的混合物等组成的电极材料，或将其单独使用或使用其两种以上的组合材料。

至于上部电极的膜厚也无特别限制，但具体地说，以 10-1000nm 为宜而最好是 10-200nm。

其理由是，通过将上部电极的膜厚设定于上述范围内，可以获得预

定的表面电阻和良好的电气连接可靠性。

上部电极 20 如图 1 所示，最好由主电极 16 和较低电阻材料组成的辅助电极 18 构成。

3. 彩色转换介质

有机 EL 元件的发光面上最好设置彩色转换介质。作为这种彩色转换介质，例如有滤色片或用于发出与 EL 发光有不同颜色的光的荧光膜，而最好是使用它们的组合形式。

(1) 滤色片

滤色片设置用于将光分解或截止，进行颜色调节或提高反差，由只由色素组成的色素层构成，或构成为将色素溶解或是分散于粘合剂树脂中所成的层状物。

作为滤色片的结构，以包括有蓝色、绿色、红色色素的为宜。通过将这种滤色片与发白光的有机 EL 元件相组合，能获得蓝色、绿色与红色三原色，可用于全色显示。

此外，滤色片与荧光介质相同，最好采用印刷法、光刻法等图案化。

(2) 荧光介质

有机 EL 显示装置中的荧光介质具有吸收有机 EL 元件的发光而发出更长波长的荧光的功能，构成为在平面上分离配置的层状物，各荧光介质最好对应于有机 EL 元件的发光区，例如下部电极与上部电极交叉部分的位置配置。通过这种结构，当下部电极与上部电极交叉部分的有机发光层发光时，所发的光为各荧光介质接收，能将不同颜色（波长）的光提取到外部。特别是在有机 EL 元件发蓝色光的同时，若通过荧光媒体成为能变换为发绿色、红色光的结构，则即便是一种有机 EL 元件也能获得蓝色、绿色、红色的光的三原色，而能良好地用于全色显示。

此外，在各荧光介质之间，遮断有机 EL 元件的发光与各荧光介质的光，则可提高反差，还最好配置用于减小视场角相关性的遮光层（黑色矩阵）。

荧光介质为了防止因外光降低反差，也可构成为与上述滤色片相组合。

4. 驱动电路

(1) 电压

施加电压(或注入电流)时的电压值最好设定为 1-20V.

其理由在于，当上述电压值 $< 1V$ 时，不能求得所希望的发光亮度，另一方面，当上述电压值 $> 20V$ 时，有时会使耗电加大。

因此，施加电压或注入电流时的电压值以 3-15V 为宜而最好是 8-13V.

(2) 频率

在施加电压或注入电流时采用脉冲波，其频率要求 $\geq 30Hz$.

理由在于，上述频率小于 30Hz 时，所求得的 EL 显示出现闪烁。但当频率值过大则会加速有机发光介质恶化，有时将降低发光寿命。

为此，在施加电压或注入电流时的频率宜为 40-120Hz 而最好为 50-100Hz.

(3) 占空比

在施加电压(或注入电流)时脉冲波的占空比(相当于图 5 中的 $t1/T$) 应 $\leq 1/5$.

理由是若此占空比 $> 1/5$ 则会缩短有机 EL 显示装置的半衰期。但若此占空比过小，则有时会降低发光亮度。

因此，施加电压(或注入电流)时的占空比宜为 1/1000-1/10，而最好为 1/500-1/20.

下面参看图 2 进一步详细说明占空比与半衰期的关系。图 2 的横轴用于表示占空比(-)，以纵轴表示实施例 1 等的有机 EL 显示装置中的半衰期(小时)。

从图 2 易知，占空比愈大，半衰期愈短，占空比在 0.1-0.2 时半衰期的变化大，占空比为 0.1 时的半衰期约 400Hr，占空比超过 0.2 时，半衰期减小到 200Hr. 相反，当占空比 $< 1/5=0.2$ 时，则可获得较长的半衰期，而当此占空比 ≤ 0.1 时虽可求得很长的半衰期，但可以看到半衰期的值趋向饱和。

于是从图 2 也可得到这样的结论，正如以上所述，为了获得长的半

衰期，占空比应 $\leq 1/5$ ，最好是 $1/1000-1/10$ ，而最好是 $1/500-1/20$ 。这一结果也使在原本为直流驱动的有源驱动中敢于采用上述占空比的理由。

(4) 薄膜晶体管 (TFT)

① 结构

本发明的有机 EL 显示装置如图 1 所示，最好于支承基板 10 上具有至少一个 TFT14 和由此 TFT14 驱动的有机 EL 元件 26。

具体地说，在 TFT14 和有机 EL 元件 26 的下部电极 22 之间设有平坦化的层间绝缘膜 13 与彩色变换介质 60，此 TFT14 的漏极 47 和有机 EL 元件 26 的下部电极 22 通过层间绝缘膜 13 与彩色变换介质 60 电连。

如图 3 的包括 TFT 的电路图和图 4 的包括 TFT 的布置图所示，TFT14 上电连着以 ZY 矩阵形式设置的多根(n 根， n 为 1-1000)的扫描电极线($Y_j \sim Y_{j+n}$) 50 和信号电极线($X_i \sim X_{i+n}$) 51，此外，TFT14 上还电连有相对于信号电极线 51 平行设置的共通电极线($C_i \sim C_{i+n}$) 52。

上述电极线 50、51、52 同 TFT14 电连，还最好与电容器 57 在一起构成用于驱动有机 EL 元件 26 的电气开关，这就是说，此电气开关最好在与扫描电极线 50 和信号电极线 51 等电连的同时，由例如 1 个以上第一晶体管(下面有时称为 Tr1) 55、第二晶体管(下面有时称为 Tr2) 56 以及电容器 57 构成。

此外，第一晶体管 55 最好具有选择发光像素的功能，而第二晶体管 56 最好具有驱动有机 EL 元件的功能。

再如图 1 所示，第一晶体管(Tr1) 55 与第二晶体管(Tr2) 56 的激活层 44 由掺杂到 n 型的半导体区 45、47 与未掺杂的半导体区 46 构成，可以表示为 $n+/i/n+$ 。

于是，掺杂到 n 型的半导体区域分别成为源极 45 与漏极 47，而在未掺杂的半导体区域的上方则通过栅极氧化膜 12 设置栅极 43，它们在一起整体地构成了晶体管 55、56。

在激活层 44 中，将掺杂到 n 型的半导体区域 45、47 掺杂为 P 型，也可成为 $P+/i/p+$ 的结构。第一晶体管(Tr1) 55 与第二晶体管(Tr2) 56 的激活层 44 最好由多晶硅等无机半导体与噻吩低聚物、聚对亚苯基亚乙

烯基等的有机半导体构成。特别是多晶硅，它与无定形 Si(α -Si)相比，相对于通电显示出充分的稳定性，是理想的材料。

② 驱动方法

下面说明 TFT 的有机 EL 元件的驱动方法。此 TFT 如图 3 中电路图所示，最好包括第一晶体管 (Tr1) 55 与第二晶体管 (Tr2) 56，构成电气开关。

通过这样地构成电气开关，经 XY 矩阵的电极输入扫描信号脉冲与信号脉冲，进行开关操作即可驱动有机 EL 元件 26。

更具体地说，借助电气开关使有机 EL 元件 26 发光或停止发光就能进行图像显示。

这样，在电气开关驱动有机 EL 元件 26 时，利用经由扫描电极线（有时也称作栅极线）(Yj ~ Yj+n) 50 传送的扫描脉冲和经由信号电极线 (Xi ~ Xi+n) 51 传送的扫描脉冲，选择所希望的第一晶体管 (Tr1) 55，将光通电极线 (Ci ~ Ci+n) 52 与第一晶体管 (Tr1) 55 的源极 45 之间形式加电容器 57 充电至预定的电荷。

由此，第二晶体管 (Tr2) 56 的栅压成为常值而第二晶体管 (Tr2) 56 成为接通状态。在此接通状态下，由于直到栅脉冲传送到时都保持着栅压，就继续有电流供给与第二晶体管 (Tr2) 56 的源极 47 连接的有机 EL 元件 26 的下部电极 22。

于是，通过供给的电流就能驱动有机 EL 元件 26，在能显著降低有机 EL 元件 26 的驱动电压的同时，提高发光效率和能降低电耗。

5. 密封件

有机 EL 显示装置中最好设置密封件。这类密封件设于有机 EL 显示装置周围用以防止水份侵入内部，还最好在这样设置的密封件与有机 EL 显示装置之间封入周知的密封材料如干燥剂、干燥气体、氟烃等惰性液体。

上述密封件在将荧光介质、滤色片设于上部电极的外部时也可用作支承基板。

作为这种密封件可以采用与支承基板同类的材料例如玻璃板。此外

也可用氧化物、氧氮化物、氮化物、硫化物等薄膜。理想的材料有 $\text{SiO}_x(1 < x \leq 2)$ 、 $\text{SiO}_x\text{Ny}(1 < x < 2, 0 < y < 1.5)$ 、 $\text{AlO}_x(0.6 < x \leq 1.5)$ 、 AlON 、 SiAlON 、 SiC 、 SiCN 等。 (x, y) 表示组成比，但未加以明确表示的 SiAlON 等则表示可取任意的组成比。至于密封件的形式也无特殊限制，例如以板状或罩状为理想。取板状形式时，厚度最好为 0.01-5mm。

密封件可以通过于有机 EL 显示装置的一部分中设置沟槽等而将其压入固定，或者应用光固化型粘合剂等固定于有机 EL 显示装置一部分之上。

[第二实施形式]

第二实施形式是这样的有机 EL 显示装置，它具有在上部电极与下部电极之间夹持有机发光介质而构成的有机 EL 元件以及用于驱动该有机 EL 元件的驱动电路，其特征在于，此有机发光介质包括主体化合物和三重态相关性发光化合物，而由此驱动电路施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 、占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电压或脉冲电流、且在施加了用于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流之后，再施加与此有机 EL 元件的电极间所加脉冲电压 (V_1) 反向的电压 (V_2)。

下面在此第二实施形式中，中心说明与第一实施形式不同的反电压的施加条件。

1. 反电压值 1

最好是在驱动电路对有机发光介质施加了用于使有机发光介质发光的脉冲电压或脉冲电流之后，亦即未施加脉冲电压或脉冲电流之时，施加与发光时所加脉冲电压 (V_1) 反向的电压 (V_2)。例如当发光时施加正向的电压时，即于不施加电压时对有机发光介质施加负向电压。

通过这样地给有机 EL 显示装置施加电压，即便是在采用三重态相关性发光化合物时，亦能降低电耗且可延长发光寿命。这是因为三重态相关性发光化合物由于电荷易积聚于内部，因而易有内部场强产生时效变化、空穴与电子的平衡破坏而改变发光性能的问题，于是通过如上所述施加反向电压，就能除去三重态相关性发光化合物内部积聚的电荷。

于是，通过对有机发光介质施加反电压，即便是采用三重态相关性

发光化合物，也能消除电荷积聚于内部的问题，使耗电更少而发光寿命更长。再有，当于发光时施加电流时，为施加此电流所需的电压设为 V1。

2. 反电压值 2

在未施加脉冲电压或电流时，所施加的反电压值最好为 0.01-15V。

理由是当此反电压值 $< 0.01V$, 不能充分除去三重态相关性发光化合物中积聚的电荷，从而不能获得加反电压的效果；而当此反电压值 $> 15V$ ；则有机发光介质或者恶化或者被破坏。

因此，反电压值宜为 0.1-10V 而更好是 0.5-5V。

在反电压的施加中虽可使用直流与交流的（包含脉冲的）或其中任一种电压，但为了能高效地除去三重态相关性发光化合物中积聚的电荷，最好使用脉冲电压。

对于电流，也可使用直流与交流的（包含脉冲的）或其中任一种电流。

3. 反电压值 3

在确定反电压的绝对值 (V2) 时，应考虑在有机发光介质发光时所施加的电压 (V1) 的值。具体地说，最好将反电压的绝对值 (V2) 设定为有机发光介质发光时所加电压 (V1) 的 1-90%。

理由是若此反电压的绝对值 $< 1\%V1$ ，则不能充分除去三重态相关性发光化合物中积聚的电荷，因而有时不能获得施加反电压的效果。

另一方面，当此反电压的绝对值 $> 90\%V1$ ，则有机发光介质有时会恶化或被破坏。

因此，此反电压的绝对值宜为 V1 的 5-80% 而最好是此 V1 的 10-50%。

4. 频率

施加反电压时最好使用脉冲电压而脉冲电压的频率以 10-120Hz 为宜。

理由是，当此频率 $< 10Hz$ 时，有时就不能充分地除去积聚的电荷；而当此频率 $> 20Hz$ ，则会加速有机发光介质的恶化，降低其发光寿命。

因此，反电压的脉冲频率宜为 20-100Hz 而最好为 30-80Hz。

5. 占空比

施加反电压时脉冲的占空比最好设定为顺向的脉冲占空比的 $1/20 \sim 1$ 。

理由是若此占空比 $< 1/20$ 则有时不能充分除去三重态相关性发光化合物中积聚的电荷，而不能取得施加反电压的效果。

另一方面，此占空比也不能大于 1 顺向脉冲的占空比。

因此，施加反电压时的脉冲的占空比宜在上述范围之内，而最好为 $1/10 \sim 90/100$ 。

6. 反电压的施加时间

施加反电压之际的时间，在用于使有机 EL 元件发光而施加脉冲电压或电流以外的时即不加电压之际时，不论是有机 EL 元件继续发光或不发光之际，都不会特别成为问题。

但为了不使加速有机发光介质的恶化，要能有效地除去三重态相关性发光化合物中积聚的电荷，则最好根据图 6-9 所示的时间图来施加反电压。

具体地说，如图 6 所示，在施加了用于使有机 EL 元件发光的电压后，进而于经过 t_2 的时间时，于 t_3 时间由脉冲波施加反电压，继而于经过 t_4 时间时再施加电压，图 7 示明在对有机 EL 元件不施加电压的 t_5 时间段内施加直流的反电压。

图 8 示明在未对有机 EL 元件施加电压时的 t_6 时间、 t_7 时间与 t_8 之间，由脉冲波多次施加反电压的情形。此外，在图 8 所示例子中，由于是随着时间的推进顺序地提高反电压的值，可以较少顾虑因反电压造成有机发光介质的损伤。

图 9 示明在未对有机 EL 元件加电压时施加交流的反电压的情形。此外，图中虽未示明，还最好是将此交流电压与上述脉冲电压进行适当的组合。

尤为最好的是，将 t_2 时间设定为 0 以上和三重态相关性发光化合物的发光寿命之下。

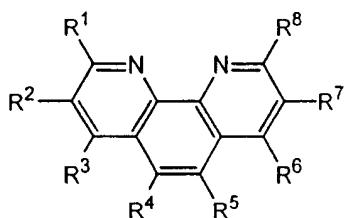
[第三实施形式]

第三实施形式的有机 EL 显示装置具有在上部电极与下部电极之间夹持有机发光介质而构成的有机 EL 元件以及用于驱动该有机 EL 元件的驱动电路，其中此有机发光介质包括主体化合物与三重态相关性发光化合物，而驱动电路则施加频率 $\geq 30\text{Hz}$ 、占空比 $\leq 1/5$ 的脉冲电压或脉冲电流，再于有机发光介质与阴极之间设置空穴阻挡层。

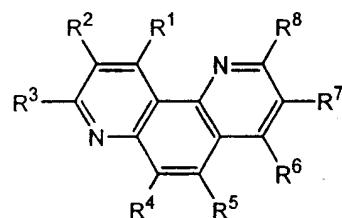
下面中心说明与第一和第二实施形式不同的空穴阻挡层。

1. 种类

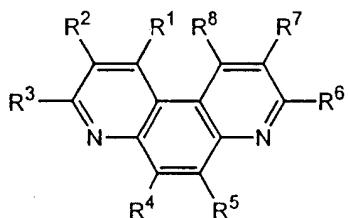
作为构成空穴阻挡层的化合物最好是使用具有比有机发光层大的电离电位的化合物。本发明认识到，在具有空穴阻挡层的元件中，特别能有效地除去积聚的电荷。这是由于电荷积聚于有机发光层与空穴阻挡层的界面，从而易于产生本发明的效果。作为构成这种空穴阻挡层的化合物例如有以下式(2) - (5)所示的邻二氮杂菲衍生物。



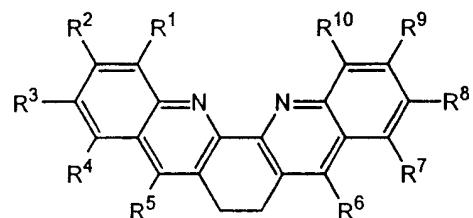
(2)



(3)



(4)



(5)

[以上各式中， R^1-R^{10} 是氢、卤素原子、氢氧基、 NO_2 、 CN 或是未取代的或是具有取代基烷基、芳基或氨基]

此外，作为其他理想的例子有以 γ -羟基喹啉衍生物为配位体的金属络合物，尤为最好的是能隙在 2.8eV 以上的前述金属络合物。

2. 电离电位

为了显示出优越的空穴阻挡性能，最好使空穴阻挡层电离电位值大于有机发光介质的电离电位值。

特别是把三重态相关性发光化合物用于有机发光层时，为了提高发光效率，最好是使空穴阻挡层的电离电位比有机发光介质的电离电位的值大 0.1-1eV。

3. 厚度

空穴阻挡层的厚度虽未特别限制，但例如最好使此厚度为 1nm ~ 1μm。

理由是，当空穴阻挡层的厚度 < 1nm，则有时会降低发光亮度与耐久性，而当此厚度 > 1μm，有时将加大施加电压的值。

因此，空穴阻挡层的厚度宜为 3nm ~ 500nm 而最好是 5nm ~ 100nm。

4. 形成方法

空穴阻挡层的形成方法虽无特别限制，但最好采用例如旋涂法、铸膜法、丝网印刷法等方法成膜，或是由溅射法、蒸镀法、CVD 法、离子电镀法等方法成膜。

实施例

[实施例 1]

(1) 有机 EL 元件的制备

① 阳极（下部电极）的形成

于纵 112mm、横 143mm、厚 1.1mm 的玻璃基板（OA2 玻璃，日本电气硝子（株）制）之上，用溅射法于整个表面上形成厚 130nm 的 ITO 膜。于此 ITO 膜上旋涂以正性抗蚀剂 HPR204（富士宏特电子公司（株）制），于温度 80℃ 下干燥 15 分钟。

然后通过具有条状图案（线宽 90μm，间距 20μm）的光掩模，进行以高压汞灯为光源的接触曝光，使曝光量为 100mJ/cm²。用 TMAH（氢氧化四甲铵）为显影液显影。

随即用烘箱于温度 130℃ 进行后烘焙处理，再用氢溴酸水溶液（浓度 47%（重量））作为蚀刻液蚀刻 ITO 膜。之后用剥离液 N303（长濑产业（株）制）除去正性抗蚀剂，形成作为阳极（下部电极）的条状 ITO 图

案(线数960)。

②第一层间绝缘膜的形成

随后于ITO图案之上旋涂以负性抗蚀剂V259PA(新日铁化学(株)制),于温度80℃下干燥15分钟,经由使ITO露出 $70\mu\text{m} \times 290\mu\text{m}$ 矩形的光掩模,进行以高压汞灯为光源的接触曝光(曝光量 300mJ/cm^2)。

然后用TMAH为显影液,再用烘箱于温度160℃下进行烘焙处理,作为第一层间绝缘膜。

③第二层间绝缘膜的形成

再于第一层间绝缘膜之上旋涂以线性酚醛树脂系负性抗蚀剂ZPN1100(日本Zeon公司(株)制)。经温度80℃干燥15分钟后,通过能获得相对于下部电极ITO图案正交的条状图案(线宽 $20\mu\text{m}$ 、间距 $310\mu\text{m}$)的光掩模,进行以高压水银灯为光源的接触曝光(曝光量: 70mJ/cm^2),然后于90℃温度下烘焙15分钟。

再用TMAH为显影液进行显影,形成用为隔膜的第二层间绝缘膜(线宽 $20\mu\text{m}$,间距 $310\mu\text{m}$,膜厚 $5\mu\text{m}$)。

④脱水工序

随后,相对于形成ITO图案等的玻璃基板(下面有时只称作玻璃基板)以异丙醇洗净并经紫外照射处理后,将此玻璃基板移至用于实施脱水工序的脱水装置中。亦即将玻璃基板置纳于具有惰性气体(N_2)循环部、露点控制部、加热装置部(热板)的干燥箱内。

再用上述热板以60℃加热干燥箱内的玻璃基板,在此状态下引入干燥氮气,将露点降低到-50℃,放置约2小时,以除去第一与第二层间绝缘膜中的水份以及玻璃基板表面等附着的水份。

⑤有机发光媒体的形成

在停止热板加热将玻璃基板的温度降低到室温后,不暴露于大气中,维持露点并固定于真空蒸镀装置(日本真空技术(珠)制)内的基板支撑座上。

然后于真空蒸镀装置内的钼制加热板上分别充填以下各种材料。

空穴输送材料:4,4'-双[N-(1-萘基)-N-苯氨基]-联苯(以下记为NPD),

有机发光材料：4,4'-N,N'-二咔唑联苯（以下记作 CBP）/三（2-苯基吡啶基）铱（以下记为 Ir (Ppy)₃，含量 8%（重量））。

电子注入材料：三（γ-羟基喹啉）铝（以下记为 Alq）

对向电极（阴极）：Al

随之将真空蒸镀装置的真空度减压至 665×10^{-7} Pa (5×10^{-7} Torr)，为达到以下的蒸镀速度与膜厚，在从空穴输送层到阴极的形成过程中，于途中不破坏真空状态，经一次抽真空进行层叠而形成有机发光介质等。

NPD：蒸镀速度 0.1-0.3nm/秒，膜厚 50nm；

CBP-Ir (Ppy)₃，蒸镀速度 0.1-0.3nm/秒，总计膜厚 40nm（混合蒸镀（CBP 与 Ir (Ppy)₃））

Alq：蒸镀速度 0.1-0.3nm/秒，膜厚 20nm

AlqLi：蒸镀速度 0.5-1.0nm/秒，总计膜厚 10nm

（混合蒸镀 Alq 与 Li）。

Al：蒸镀速度 0.5-1.0nm/秒，膜厚 150nm.

⑥ 密封工序

然后在引入有干燥氮气的密封装置内，将密封用玻璃基板（蓝色板玻璃，Diomafek (Ltd) 制）叠层到阴极侧，用光固化型粘合剂 TB310C (Three-bond (Ltd) 制) 密封基周围，用作发光性能测定用的有机 EL 显示装置。

（2）有机 EL 元件的评价

在求得的有机 EL 显示装置的下部电极（ITO 图案，阳极）与相对的上部电极（阴极）之间，通过驱动电路施加频率 60Hz、占空比 1/10 与电流密度 $24\text{mA}/\text{cm}^2$ 的脉冲电流，使各电极的交叉部分的各像素（约 23 万像素）发光。然后以彩色色差 CS100 (Minolta (Ltd) 制) 测定发光亮度，获得 $500\text{cd}/\text{m}^2$ 的值。为给出此时的脉冲电流需要的电压为 10V。

此外，在同样条件下使有机 EL 装置的各像素发光，则定 CIE 色度，确认求得了在 CIE 色度坐标中的 $\text{CIE}_x=0.30$ 、 $\text{CIE}_y=0.63$ 的蓝色光。

再将求得的有机 EL 显示装置设定于大气中，室温（25℃）下，进行连续驱动以测定其半衰期。测定的结果是半衰期为 400 小时。

也就是说，即便是三重态相关性发光化合物 $\text{Ir}(\text{Ppy})_3$ 掺杂时，通过采用特定的驱动电路，可以由 10V 以下的电压驱动，能降低电耗和延长发光寿命。

[实施例 2]

在实施例 1 的有机 EL 显示装置的发光层与电子注入层之间，除设置 2,9-甲基-7,7-联苯-1,10-邻二氮杂菲组成的空穴阻挡层（膜厚：10nm）外，与实施例 1 相同，制成有机 EL 元件，通过驱动电路施加频率 60Hz、占空比 1/10 和电流强度 $20\text{mA}/\text{cm}^2$ 的脉冲电流，进行了评价。

结果求得，发光亮度为 $500\text{cd}/\text{m}^2$ 而 CIE 色度为 $\text{CIE}_x=0.30$ 与 $\text{CIE}_y=0.63$ 。此外，半衰期为 400 小时。

通过设置空穴阻挡层，半衰期仍然为 400 小时，峰值电压降低至 8V，可知能降低电耗。

(实施例 3)

除了将实施例 2 的驱动电压的占空比从 1/10 改变到 1/100 外，其余与实施例 2 相同，通过驱动电路施加频率 60Hz、电流强度 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 的脉冲电流，进行有机 EL 元件的评价。

结果求得发光亮度为 $500\text{cd}/\text{m}^2$ 和 CIE 色度为 $\text{CIE}_x=0.30$ 与 $\text{CIE}_y=0.63$ 。此外，半衰期为 400 小时。

这就是说，减小了占空比后瞬间电流值与实施例 2 的相比虽然大了许多，但半衰期不变仍为 400 小时。通常，虽知在这样地瞬间电流值大的占空比大的驱动中将缩短寿命，但在此判明了则可保持寿命。

[实施例 4]

与实施例 2 的元件相同，使驱动电压的占空比从 1/10 改变到 1/100 而频率从 60Hz 变更到 500Hz。除施加脉冲电压（峰值电压 140）进行有机 EL 元件的评价外，还进行了与实施例 2 相同的评价。

结果求得发光亮度为 $500\text{cd}/\text{m}^2$ 而 CIE 色度为 $\text{CIE}_x=0.30$ 和 $\text{CIE}_y=0.63$ 。此外，半衰期为 460 小时。

这就是说，即令占空比小，通过提高频率可使半衰期比实施例 1 与 2 的大 15%。

[实施例 5]

除于实施例 2 中于不发光时施加反电压 IV 之外，与实施例 2 相同，通过驱动电路施加频率 60Hz、占空比 1/10。电流强度为 $20A/cm^2$ ，进行了有机 EL 元件的评价。

结果求得，发光亮度为 $500cd/m^2$ 而 CIE 色度为 $CIE_x=0.30$ 与 $CIE_y=0.63$ 。半衰期则为 600 小时。

由此可知，通过施加反电压，半衰期比实施例 1 与 2 的提高了 50%。

[实施例 6]

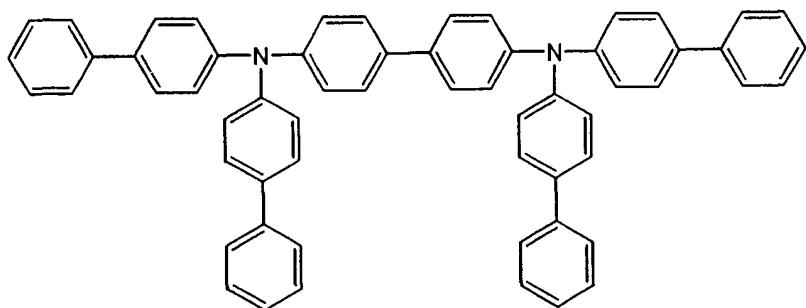
除使实施例 2 中驱动电压的占空比从 1/10 变更到 1/7 外，与实施例 2 相同，通过驱动电路施加频率 60Hz 和强度为 $12mA/cm^2$ 的电流值，进行了有机 EL 元件的评价。

结果求得，发光亮度为 $500cd/m^2$ 而 CIE 色度为 $CIE_x=0.30$ 与 $CIE_y=0.63$ 。半衰期则为 280 小时。

由此可知，若使占空比稍稍增大而降低电流值，则半衰期降低。

[实施例 7]

除取代实施例 2 的空穴输送材料的 NPD 而采用以下式(6)所表示的双(共胺基)联苯衍生物化合物外，其余与实施例 2 相同，制备有机 EL 元件，通过驱动电路施加频率 60Hz、占空比 1/10、电流强度为 $18.5mA/cm^2$ ，进行了评价。



(6)

结果求得，发光亮度为 $500cd/m^2$ ，CIE 色度为 $CIE_x=0.30$ 与 $CIE_y=0.63$ 。半衰期为 3000 小时。

由此可知，通过变更有机发光介质的种类，能极大地提高半衰期。

[比较例 1]

于实施例 2 中通过驱动电路施加恒定电流强度 1.2mA/cm^2 ，进行了评价。

结果求得，发光亮度为 500cd/m^2 而 CIE 色度为 $\text{CIE}_x=0.30$ 与 $\text{CIE}_y=0.63$ ，但半衰期为 200 小时，只是实施例 1 与 2 的 50%。

这就是说，当占空比过大 ($D=1/1$)，半衰期即会随此而显著降低。

[比较例 2]

在实施例 2 中通过驱动电路施加频率 50Hz、占空比 1/4 和强度为 5.8mA/cm^2 的电流，进行了评价。

结果求得，发光亮度为 500cd/m^2 而 CIE 色度为 $\text{CIE}_x=0.30$ 与 $\text{CIE}_y=0.63$ ，但半衰期为 200 小时，是实施例 1 与 2 的约 50%。

这就是说，当占空比过大 ($D=1/4$)，半衰期即随此而显著降低。

根据本发明的有机 EL 显示装置，即使将三重态相关性发光化合物用于有机发光介质时，也能降低电耗和延长发光寿命。

根据本发明的有机 EL 显示装置的驱动方法，即便将三重态相关性发光化合物用于有机发光介质时，也能降低电耗和延长发光寿命。

图 1

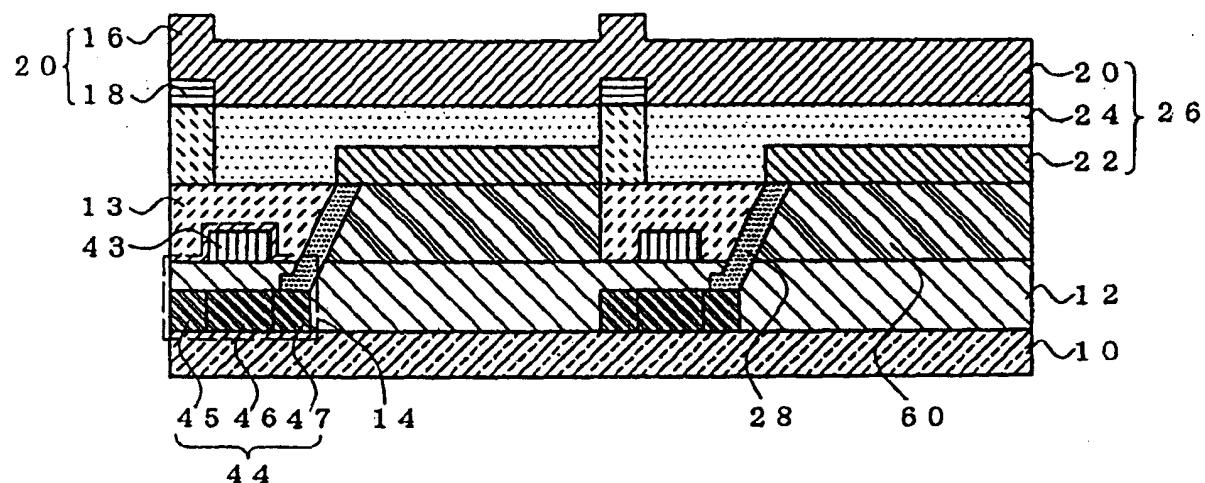


图 2

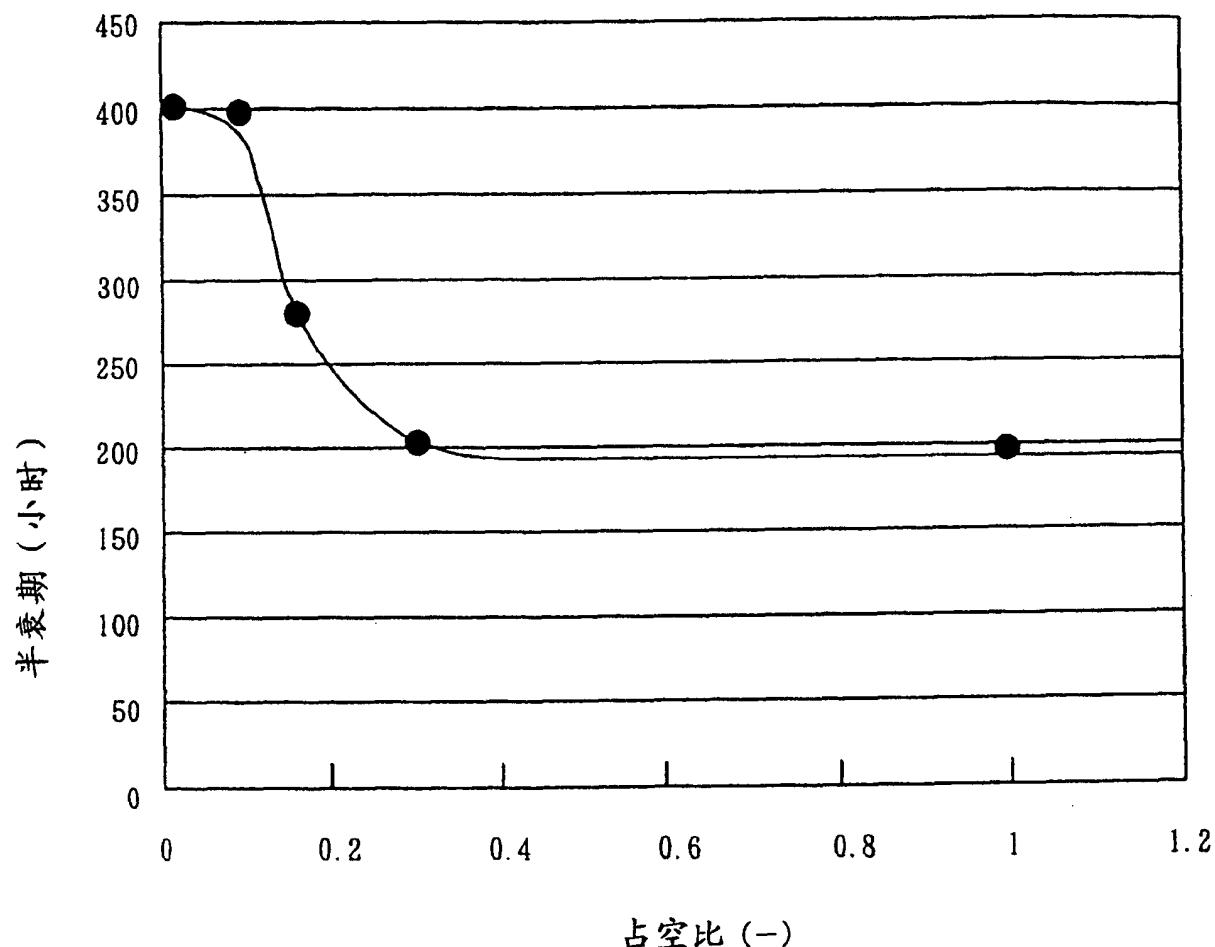


图 3

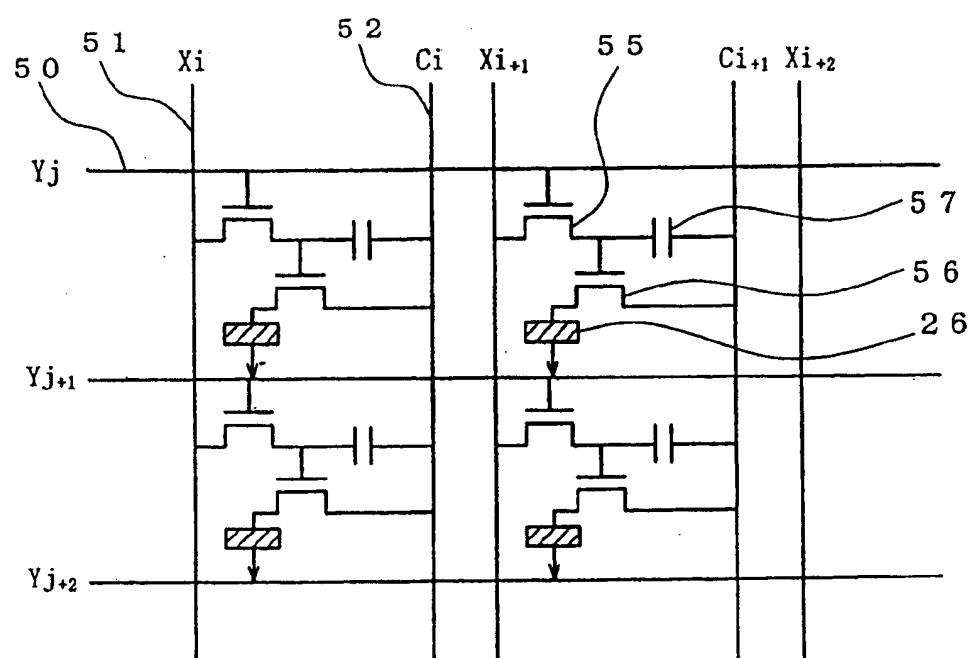


图 4

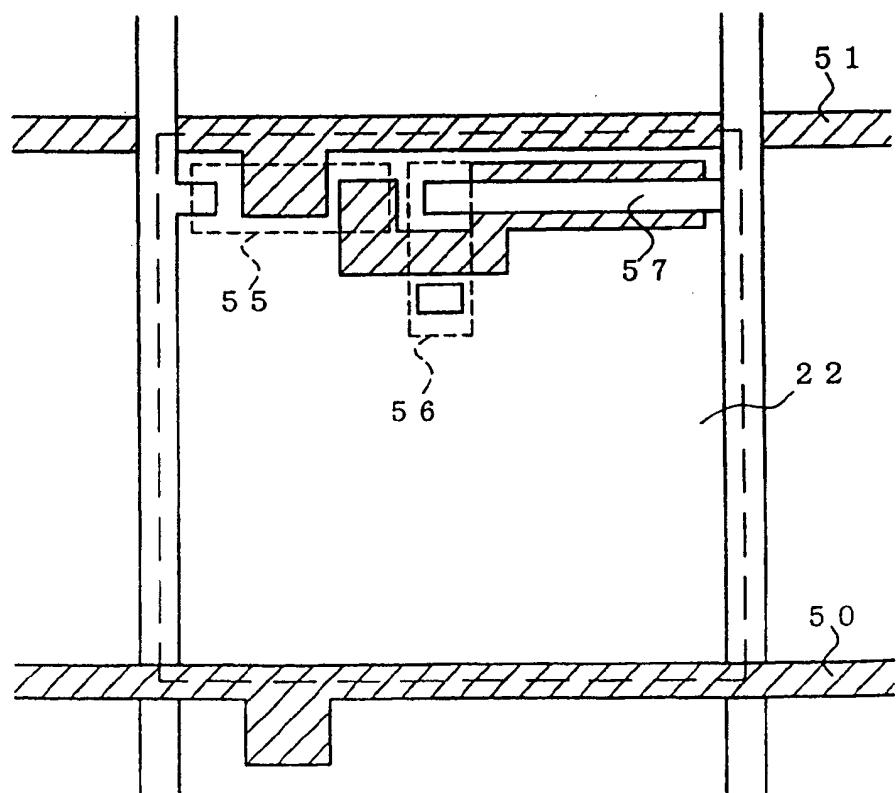


图 5

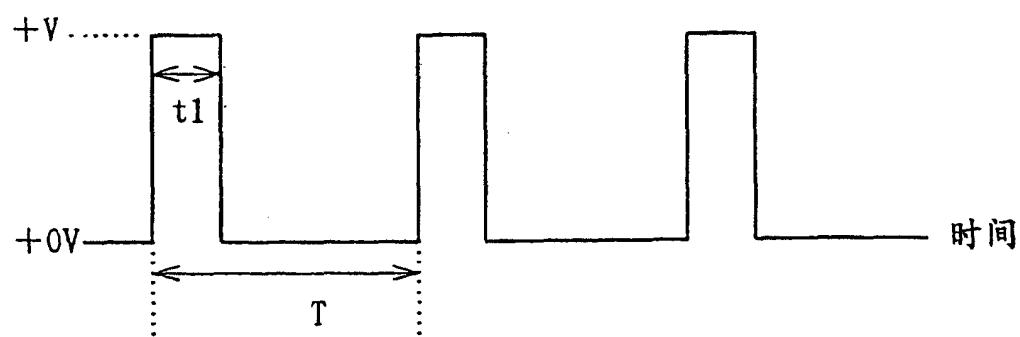


图 6

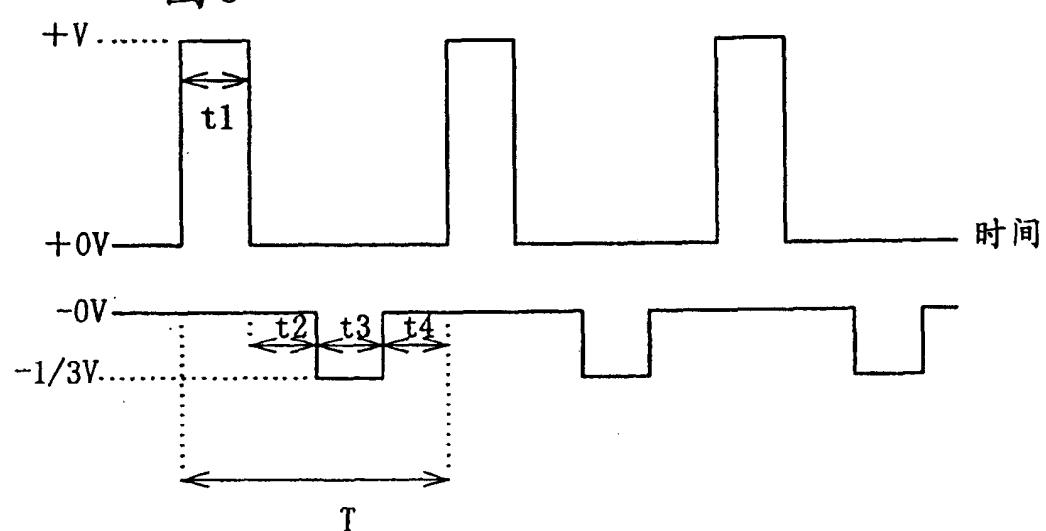


图 7

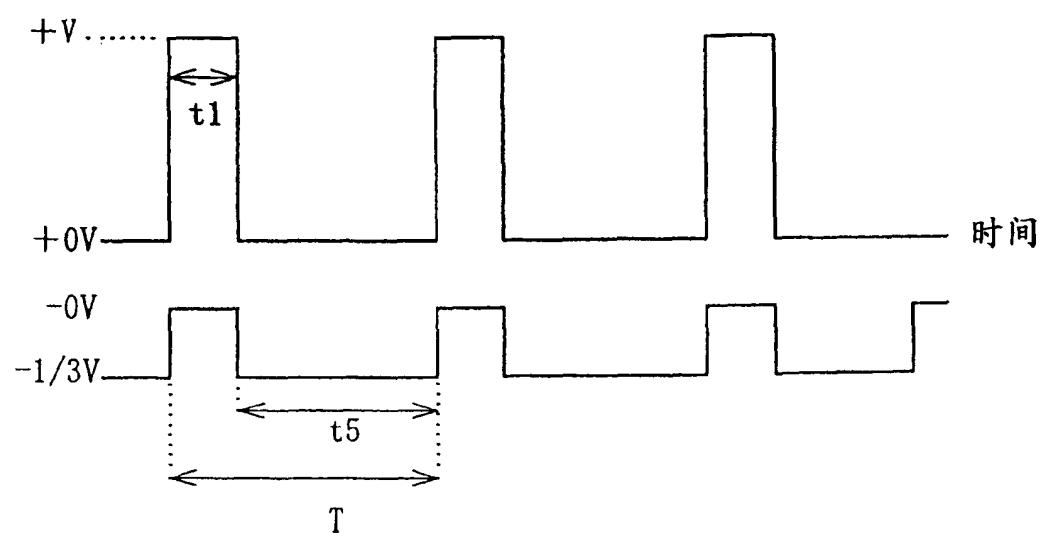


图 8

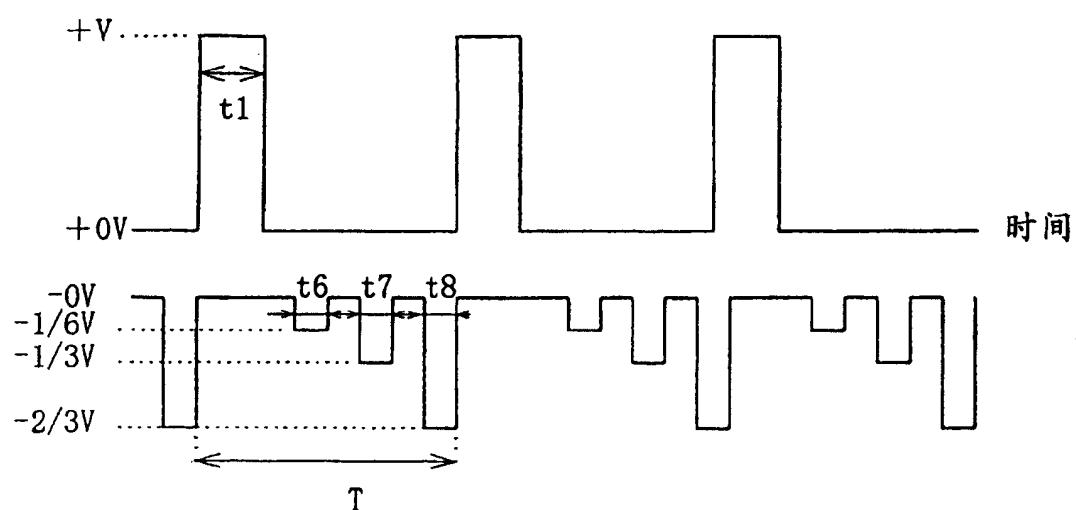


图 9

