

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5243534号
(P5243534)

(45) 発行日 平成25年7月24日(2013.7.24)

(24) 登録日 平成25年4月12日(2013.4.12)

(51) Int.Cl.	F 1
H05B 33/02	(2006.01) HO5B 33/02
H05B 33/10	(2006.01) HO5B 33/10
H01L 51/50	(2006.01) HO5B 33/14 A
H05B 33/04	(2006.01) HO5B 33/04

請求項の数 2 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2010-510338 (P2010-510338)
(86) (22) 出願日	平成20年5月29日 (2008.5.29)
(65) 公表番号	特表2010-529598 (P2010-529598A)
(43) 公表日	平成22年8月26日 (2010.8.26)
(86) 国際出願番号	PCT/US2008/006800
(87) 国際公開番号	W02008/150424
(87) 国際公開日	平成20年12月11日 (2008.12.11)
審査請求日	平成23年5月26日 (2011.5.26)
(31) 優先権主張番号	11/756,063
(32) 優先日	平成19年5月31日 (2007.5.31)
(33) 優先権主張国	米国(US)

(73) 特許権者	510059907 グローバル オーエルイーディー テクノロジー リミティド ライアビリティ カンパニー
	アメリカ合衆国、バージニア 20171, ハーフォード、パーク センター ロード 13873, スイート 330
(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敏
(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(74) 代理人	100128495 弁理士 出野 知

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】光出力が改善されたエレクトロルミネッセンス・デバイス

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の工程を含むエレクトロルミネッセンス(EL)デバイスの形成方法であり：

- a) 第1電極、第2透明電極、及び前記電極間に形成された1つ以上のELユニットを備える発光領域を有するLEDを準備し；
- b) 振発性溶媒と複数の透明な光散乱粒子と該光散乱粒子の質量の10%より少ない質量を有し且つ該光散乱粒子の屈折率より小さい屈折率を有する結合剤とを含む溶液を調製し；
- c) 前記1つ以上のELユニットと反対側の前記透明電極の面に前記溶液をコーティングし；そして、
- d) 前記溶液を乾燥させ前記透明電極上に光散乱層を形成する

工程を含むエレクトロルミネッセンス(EL)デバイスの形成方法であって、前記光散乱層の体積に対する光散乱粒子の体積の比率が前記発光領域の大部分に渡って0.55より大きい、エレクトロルミネッセンス(EL)デバイスの形成方法。

【請求項 2】

該光散乱粒子の平均最大径が0.5~2μmである、請求項1に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はエレクトロルミネッセンス(EL)発光ダイオード(LED)デバイスに関する

るものであり、より詳細には、光出力を改善するための光散乱層を有するエレクトロルミネッセンス・デバイス構造に関する。

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネッセンス・デバイスはフラットパネル・ディスプレイ及びエリア照明ランプにおいて有望な技術である。これらのデバイスは基板上に被覆した薄膜層材料からなり、これらのデバイスとしては有機、無機、及び無機-有機ハイブリッドの発光ダイオードが挙げられる。薄膜層材料としては、LEDの技術分野で知られているように、例えば、有機材料、量子ドット、溶融無機ナノ粒子、電極、導体、及びシリコン電子部品が挙げられる。

10

【0003】

このような広い分野の用途に応じて特定のエレクトロルミネッセンス・デバイス構造が形成されているにも関らず、いずれのエレクトロルミネッセンス・デバイスも一般的の原理は同じである。1つのエレクトロルミネッセンス(EL)ユニットは2つの電極に挟まれる。少なくとも電極の1つは少なくとも部分的に光透過性である。これらの電極は、従来のダイオードの端子と同様に一般的にアノード及びカソードと呼ばれる。アノードを電源の正極に接続しカソードを電源の負極に接続し電極間に電位をかけることを、LEDに順方向バイアスをかけるという。正電荷キャリア(正孔)はアノードからELユニットに注入され、負電荷キャリア(電子)はカソードからELユニットに注入される。このように電荷キャリアが注入されることにより電極からELユニットを通じて電流が流れる。発光層において正孔と電子が再結合することにより発光が起きる。例えば、量子ドット発光ダイオード(LED)構造を含むエレクトロルミネッセンス・デバイスでは、無機、又は無機-有機ハイブリッドのいずれかをとることができ、正孔と電子の再結合は発光層の量子ドットのコアの中で起きる。無機-有機ハイブリッドELユニットは複数の層を積層して形成することができ、低分子層又はポリマー層を含むことができる。

20

【0004】

1990年代後半に有機材料と量子ドットとの混合発光体を含むLEDデバイスが報告された(Mattoussi他、Journal of Applied Physics、第83巻、7965ページ、1998年)。量子ドットは発光性でナノサイズの半導体結晶である。発光層に量子ドットを加えると、デバイスの色域が増強された。赤、緑、及び青の発光が単に量子ドットの粒径を変えただけで得られ、製造コストも抑えられた。発光層において量子ドットが凝集するなどの問題があり、これらのデバイスの効率は一般的なOLEDデバイスに比較するとむしろ低かった。発光層として量子ドットのニート薄膜を使用すると、効率はますます低下した(Hikmet他、Journal of Applied Physics、第93巻、3509ページ、2003年)。

30

効率が低いのは、量子ドット層の絶縁性が原因であった。後に、量子ドットの単層膜を有機正孔輸送層と有機電子輸送層との間に設けることにより、効率が(約1.5cd/Aまで)向上した(Coe他、Nature、第420巻、800ページ、2002年)。量子ドットからのルミネッセンスは、主に有機分子のエキシトンからのフェルスターエネルギー移動の結果として起こると記載されている(電子-正孔再結合は有機分子上で起こる)。効率が改善されたにかかわらず、これらのハイブリッドデバイスは単純なOLEDデバイスが有するあらゆる欠点をいまだに有している。

40

【0005】

近年、単層の厚さのコア/シェルCdSe/ZnS量子ドット層を、真空蒸着した無機n-GaN層とp-GaN層との間に挟むことにより、ほぼ全体が無機のLEDが構築された(Muel ler他、Nano Letters、第5巻、1039ページ、2005年)。得られたデバイスは、外部量子効率が0.001~0.01%と小さかった。原因の1つとしては、成長後に存在したと報告されているトリオクチルホスフィンオキシド(TOPO)及びトリオクチルホスフィン(TOP)の有機リガンドが関与していた可能性がある。これらの有機リガンドは絶縁体であるため、量子ドットへの電子及び正孔の

50

注入が悪くなる結果となつたのであらう。

【0006】

Kahenによる本出願と同時係属、同一出願人のアメリカ合衆国特許出願公開2007/0057263（この文献は、その全体が引例としてこの明細書に組み込まれているものとする）に記載されているように、発光層の導電性を上げるために、発光層に量子ドットに加えて更に半導体ナノ粒子を加えることができる。

【0007】

OLEDデバイスは一般的に二通りの形式をとり得る。アメリカ合衆国特許第4,476,292号に開示されているような低分子デバイスとして知られるものと、アメリカ合衆国特許第5,247,190号に開示されているようなポリマーOLEDデバイスとして知られるものである。どちらのタイプのOLEDデバイスも順にアノード、有機EL素子、及びカソードを備えている。殆どの設計では、1つの電極が反射性であり、他の電極が透過性である。アノードとカソードとの間に設けられた有機EL素子は通常、有機正孔輸送層（HTL）、発光層（LEL）、及び有機電子輸送層（ETL）を備えている。正孔及び電子が再結合し、LELにおいて発光する。Tangら（Applied Physics Letters、第51巻、913ページ、1987年；Journal of Applied Physics、第65巻、3610ページ、1989年、及びアメリカ合衆国特許第4,769,292号）は、そのような層構造を利用した高効率のOLEDを示した。それ以降、ポリマー材料など、別の層構造を有する多くのOLEDが開示されてきており、デバイスの性能は向上してきている。

【0008】

LEDデバイスで光が発生するのは、それぞれカソード及びアノードから注入される電子及び正孔が対応する電荷輸送層を流れ、発光層で再結合するときである。この光発生過程の効率は多くの因子により決定される。例えば、アノード及びカソードの材料を選択することにより、電子及び正孔がどれほど効率的にデバイスに注入されるかを決定することができ、ETL及びHTLを選択することにより、電子及び正孔がどれほど効率的にデバイス内で輸送されるかを決定することができ、そして、LELを選択することにより、電子及び正孔がどれほど効率的に結合し、発光するかを決定することができる等である。

【0009】

また、LEDデバイスの効率を限定する主要な要因の1つとして、電子・正孔再結合により発生したフォトンをLEDデバイスから抽出する際の効率の悪さが知られている。使用する材料の屈折率が大きいと、再結合過程で発生したフォトンの殆どは実際には全反射のためにデバイス内に捕獲される。これら捕獲されたフォトンはLEDデバイスから出ていくことはないため、デバイスからの光出力に寄与しない。光はLED内の層からあらゆる方向に発生するため、光の一部はデバイスから直接外に出ていき、光の一部はデバイスの内部に向かって発生して反射されて戻ってくるか吸収され、光の一部は横方向に発生してデバイスに含まれるさまざまな層によって捕獲・吸収される。一般に、光の80%までがこのようにして失われる可能性がある。

【0010】

典型的なOLEDデバイスでは、ガラス基板、透明な導電性アノード（例えば、酸化インジウムスズ（ITO））、積層された複数の有機層、及び反射性カソード層が使用されている。デバイスから発生した光はガラス基板を通って放出される。これは一般にボトム-エミッショントイプデバイスと呼ばれている。あるいはデバイスは、基板、反射性アノード、積層された複数の有機層、及び上部の透明なカソード層と透明なカバーを備えることができる。デバイスで発生した光は上部の透明な電極及び透明なカバーを通して放出される。これは一般にトップ-エミッショントイプデバイスと呼ばれている。これらの典型的なデバイスでは、ITO層の屈折率、有機層の屈折率、及びガラスの屈折率はそれぞれ約2.0、1.7、及び1.5である。発生した光の60%近くはITO/有機EL素子内の内部反射によって捕獲され、20%はガラス基板の中で捕獲され、発生した光の約20%だけが実際にデバイスから放出され有用な機能を發揮すると見積もられる。

10

20

30

40

50

【0011】

これらのLED構造ではいずれも、放出された光が捕獲される問題と、周辺光が反射される問題がある。図8を参照すると、従来のボトム・エミッション型LEDデバイスは透明基板10、透明第1電極12、発光層を含むELユニット14、反射性第2電極16、ギャップ19、及びカバー20を備えている。ギャップ19は一般には乾燥材料で埋められている。ELユニット14から放出される光は、光線1で示されるように、デバイスから透明基板10を通って直接外に出ることができる。また、光は光線2で示されるように、放出された後、透明基板10及びELユニット14の内部を進むこともできる。あるいは、光は光線3で示されるように、放出された後、ELユニット14の内部を進むこともできる。反射性電極16の方向に放出された光線4は、基板10の方向に反射し返され、光線1、2、又は3のいずれかと同じ経路をたどる。周辺光6がLEDに入射し反射性電極16により反射されると、これにより、LEDデバイスの周辺光とのコントラストが低下する。先行技術のある実施態様では、電極16を不透明及び/又は光吸収性にすることができる。このような構成では、周辺光を吸収することによりコントラストが強まるが、電極16の方向に放出される光線4も吸収されてしまう。ここで示されたボトム・エミッション型の実施態様は、透明なカバーと透明な上部の電極16を用いることによりトップ・エミッション型の構成としても使用できる。

10

【0012】

薄膜発光デバイスからの光の出力カップリングを改善するために、様々な方法が提案されてきた。このような方法として、回折格子、回折特性を有する輝度増強膜、反射性構造、及び表面拡散体及び体積拡散体を用いることが挙げられる。マイクロキャビティ技術を利用することも知られている。しかしながら、これらの方法はいずれも、発生した光の全て又は発生した光の大部分をデバイスから放出させるものではない。さらに、回折法では、周波数が発光角度に大きく依存するため、デバイスから放出される光の色が見る者の視点によって変化する。散乱法もまた知られた方法であり、例えば、Cokによる「光出力が改善されたOLEDデバイス」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開2006/0186802に記載されている。この文献は、その全体が引例としてこの明細書に組み込まれているものとする。

20

【0013】

「直視型発光型ディスプレイの明度及びコントラストの増強」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開2005/0007000には、独立して操作可能な複数の発光体を含み、発光体が1つ以上の光透過層を通じて光を放出する発光型ディスプレイが記載されている。この発光型ディスプレイは更に発光体と光透過層との間に素子を備え、光透過層の1つ以上の界面（例えば、発光体と光透過層との間の界面や、又は光透過層と空気との間の界面）で起こる全反射を防止する。全反射を防止すると、発光型ディスプレイの明度は増強される。全反射を防止するための素子としては、体積拡散体、表面拡散体、微細構造体、及びこれらと、又は他の適当な素子との組合せが挙げられる。

30

【0014】

散乱法はLEDデバイスから光を抽出するのに役立つことが知られている。Chou（国際公開番号WO 02/37580）及びLiuら（アメリカ合衆国特許出願公開2001/0026124）は、光の抽出を改善するために体積散乱層又は表面散乱層を使用することを教示している。散乱層は有機層の隣か、又はガラス基板の外面に設けられていて、これらの層に合った屈折率を有する。臨界角より大きい角度（そうでないと光は捕獲される）でOLEDデバイスから放出される光は散乱層に侵入できるため、散乱されてデバイスの外に出る。そのことによってOLEDデバイスの効率は改善されるが、以下に説明する欠点がいまだ残されている。また、拡散照明では、デバイスのコントラストは改善されない。

40

【0015】

Dolらによる「有機エレクトロルミネッセンス・ディスプレイデバイス及びその製造方法」というタイトルの2004年9月7日に付与されたアメリカ合衆国特許第6,787

50

, 796号には、有機エレクトロルミネッセンス(EL)ディスプレイデバイス及びその製造方法が記載されている。有機ELデバイスは、基板層、基板層上に形成される第1電極層、第1電極層上に形成される有機層、及び有機層上に形成される第2電極層を備えており、各層の間で屈折率が大きく異なる有機ELデバイスの層の間に、屈折率がそれぞれ異なる複数の領域を有する光損失阻止層が形成されている。Garnierらによる「有機発光ダイオードから光を抽出するための設計」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開2004/0217702には、同様に、微細構造を利用して内部屈折率に変化をもたせるか、又は、内部又は表面に物理的に変化をもたせOLED内で内部導波モードの伝播を乱すことが開示されている。トップ-エミッション型の実施態様では、適切な屈折率を持つポリマーをカバーに隣接して用いることが開示されている。

10

【0016】

光散乱層をOLEDデバイスの外部で使用することが、Shianguによる「光抽出が改善された有機エレクトロルミネッセンス・デバイス」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開2005/0018431、及びHorikxらによる「フラットパネル・ディスプレイデバイスのための、光散乱特性を有する媒体からなる活性層を備えるシステム」というタイトルのアメリカ合衆国特許第5,955,837号に記載されている。これらの特許文献には、基板上に設けられた散乱層の特性が詳細に記載又は規定されている。同様に、Duggalらによる「光抽出が向上した有機エレクトロルミネッセンス・デバイス」というタイトルのアメリカ合衆国特許第6,777,871号には、特定の屈折率と散乱特性を有する複合層を含む出力カプラーを使用することが記載されている。この方法は、光抽出に役立つが、基板内を伝播する(光線2で示した)光のみを抽出するものであり、有機層及び電極を通じて伝播する(光線3で示した)光は抽出されないのである。

20

【0017】

いずれにせよ、散乱法それ自体は、光吸收材料層に光を何度も通過させるものであり、これにより、光は吸収され熱に変換される。しかも、捕獲された光は、散乱されてデバイス外に出るまでに、カバー、基板、又は有機層を通って水平にかなり遠くまで伝播するため、ディスプレイなどの画素化された用途ではデバイスのシャープさが低下する。例えば図10に示したように、従来の画素化されたボトム-エミッション型LEDデバイスは、独立に制御される複数の画素50、52、54、56、及び58、及び、透明第1電極12と基板10との間に設けられる散乱層22とを備えることができる。発光層から放出された光線5は、デバイス外に出るまでに、基板10、ELユニット14、及び透明第1電極12を通過しながら、散乱層22において何度も散乱されうる。光線5が最終的にデバイスから放出されるときには、光線5はその光線が最初に発生した元の画素50から、光が放出される離れた画素58までデバイスの様々な層を通過しながらかなりの距離をわたって移動していることになり、シャープさが低下する結果となる。横方向の移動は、たいてい基板10の中で起こる。というのも基板はパッケージの中で最も厚い層だからである。また、放出される光の量は、様々な層において光が吸収されるため低下する。

30

【0018】

Tyanらによる「光抽出効率が向上した有機発光デバイス」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開2004/0061136には、光散乱層を備えた光抽出が向上したOLEDデバイスが記載されている。ある実施態様においては、(有機エレクトロルミネッセンス素子の屈折率より実質的に小さい屈折率を有する)屈折率の小さい分離層を、光散乱層と組み合わせて反射層の隣に用いることにより、低角度の光が反射層に当たるのを妨げ、これにより、反射層からの多重反射による吸収損失を最小限に抑える。しかし、この特別な構成でもやはりデバイスのシャープさは低減し、コントラストは改善しない。

40

【0019】

LEDデバイスのコントラストを改善するために、例えば、発光領域の間に黒いマトリクス材料を使うか、又は、カラーフィルタを用いることが知られている。このような方法は有用であるが、反射電極が存在するため、依然として周囲とのコントラストは著しく低

50

下する。前記の通り、円偏光子を用いることができるかもしないが、本願出願人は、散乱層のような光抽出法はこのような偏光子と相容れない傾向にあることを確認している。

【0020】

従来技術において教示されているように、昔ながらの散乱理論には球配列が用いられる。これらの球を層形成するように互いに隣接して配置したとき、球の体積 ($V_p = (4 \times \pi r^3) / 3$) を層の体積 ($V_L = (2 \times r)^3$) で割った比は、 $\pi / 6$ 又は 0.5236 となる。「フラットパネル・ディスプレイデバイスのための、光散乱特性を有する媒体からなる活性層を備えるエレクトロルミネッセンス照射系」というタイトルのアメリカ合衆国特許第5,955,837号には、ボトム-エミッショニ型エレクトロルミネッセンス・デバイスの基板上に散乱粒子からなる半單一層を用いることが記載されている。このような層の体積比は、多数の球が接触して並ぶ通常の单層の多くて2分の1、又は、およそ 0.26 である。開示されたデバイスでは、基板に捕獲された光の抽出と基板に捕獲されない光の散乱との組み合わせを最適化しているが、このような材料層は、有機層及び電極層で捕獲された光を散乱しない可能性があり、また、このような材料層は形成が難しい。さらに、捕獲される光の量が放出される光の量に比べて増えるに従い、望まれる散乱の相対量も増えるため、前記の散乱粒子の半・单層では、目的のLEDデバイスから放出される光を全て適切に抽出しきれない可能性がある。また、有機エレクトロルミネッセンス材料、反射電極、及び透明電極はいずれも、ある程度光を吸収する。よって、捕獲された高角度の光をできるだけ早い時点で散乱し、吸収を最低限に抑えることが望ましい。また、出願人は実験を行うことにより、いくつかのLEDデバイス構造では、実際の粒子散乱層がこのような体積比を有した場合に最適な状態で光を抽出しないことを示している。10

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0021】

本発明は、基板上に形成された発光領域を備えたエレクトロルミネッセンス(EL)デバイスに関する。第1電極、第2電極、及びこれらの電極間に形成された少なくとも1つの発光層を伴う1つ以上のELユニットが備えられ、少なくとも1つの電極は透明である。カバーが発光領域の上に設けられており、光散乱層が基板とカバーとの間に設けられている。光散乱層は、透明な光散乱粒子を含み、光散乱層の体積に対する光散乱粒子の体積の比率が発光領域の大部分に渡って 0.55 より大きく、基板かカバーのいずれかは透明であり、ELユニットから放出された光を透過する。30

【0022】

別の態様として、本発明は以下の工程を含むエレクトロルミネッセンス(EL)デバイスの形成方法に関する：

- a) 第1電極、第2透明電極、及び前記電極間に形成された1つ以上のELユニットを含む発光領域を備えたLEDを準備し；
- b) 撥水性溶媒と複数の透明な光散乱粒子とを含む溶液を調製し；
- c) 前記溶液を前記1つ以上のELユニットと反対側の前記透明電極の面に塗布し；そして、
- d) 前記溶液を乾燥させ、前記透明電極上に光散乱層を形成する工程を含み、前記光散乱層の体積に対する光散乱粒子の体積の比率が前記発光領域の大部分に渡って 0.55 より大きい。40

【発明の効果】

【0023】

本発明は、エレクトロルミネッセンス・デバイスからの光出力を増加させる効果を有する。

【図面の簡単な説明】

【0024】

【図1】本発明による光散乱層を有するエレクトロルミネッセンス・デバイスの一実施態様の断面図である。50

【図2】本発明の作製方法を示すフロー・チャートである。

【図3】本発明による光散乱層の一実施態様の断面図である。

【図4】本発明による光散乱層の一実施態様の断面図である。

【図5】本発明による光散乱層を有するエレクトロルミネッセンス・デバイスの一実施態様の断面図である。

【図6】本発明による光散乱層の一実施態様の顕微鏡写真である。

【図7】本発明による光散乱層の一実施態様の顕微鏡写真である。

【図8】光の捕獲を示した従来のボトム・エミッション型LEDデバイスの断面図である。
。

【図9】LEDの断面図である。 10

【図10】散乱表面を有する、シャープさが低下した従来のボトム・エミッション型LEDデバイスの断面図である。

【0025】

図は正確な縮尺ではない。個々の層はとても薄く、様々な層の厚みの違いは図に示すには大きすぎるためである。

【発明を実施するための形態】

【0026】

本発明の一実施態様では、図1に示すように、エレクトロルミネッセンス・デバイスは、第1電極12、第2透明電極16、及び電極12と電極16との間に設けられた1つ以上のエレクトロルミネッセンスデバイス(EL)ユニット14を有するLEDを備える。 20
デバイスの発光領域とは、第1電極12、第2透明電極16、及び1つ以上のELユニット14が並ぶ範囲である。光散乱層22は1つ以上のELユニット14とは反対側の透明電極16の面上に形成される。光散乱層22は透明な光散乱粒子23を含み、光散乱層22の体積に対する光散乱粒子23の体積の比率が発光領域の大部分に渡って0.55より大きい。好ましくは、その比率は0.55～0.75であり、より好ましくは、0.55～0.65である。LEDは、カバー20が接着された基板10上に、カバー20の内側とLEDとの間にギャップ18ができるように、形成することができる。

【0027】

ELユニット14は図9により理解することができる。一般的なLED40は、第1電極12と第2電極16との間にエレクトロルミネッセンス(EL)ユニット14を含む構造をしている。図示されているように、ELユニット14は第1電極12と第2電極16との間の全ての層(例えば、発光層33、及び電荷制御層35、37)を含むが、電極12及び電極16自身は含まない。発光層33の材料は正孔と電子の再結合により光を発するものであればいずれでもよい。図9で示されている一実施態様では、発光層33は半導体マトリクス31中に発光量子ドット39を含む。この明細書中で用いられるように、量子ドットは発光ナノ粒子である。図9に示すように、量子ドットは球体をとりうるが、その形に限定されない。発光ナノ粒子は、少なくとも1つのディメンションの長さが100nmより小さい無機結晶ナノ粒子であればよく、球状、棒状、線状と、いかなる形でもよい。発光ナノ粒子は量子閉じ込め効果を示すことが好ましい。半導体マトリクス31としては、ハイブリッドデバイスの場合には有機母材が挙げられ、無機量子ドットLEDの場合には多結晶無機半導体マトリクスが挙げられる。電荷注入を改善するために、ELユニット14はp-タイプ又はn-タイプの電荷輸送層35及び37をそれぞれ任意に備えることができる。ELユニット14は更に電荷輸送層又は接触層(示されていない)を有することもできる。1つの典型的なLEDデバイスは、ガラス基板、透明な導電アノード(例えば、酸化インジウムスズ(ITO))、積層された複数の層を含むELユニット14、及び反射性カソード層を備える。ELユニット14の複数の層は有機、無機、又はそれらの組合せであることができる。 40

【0028】

本発明の様々な実施態様では、光散乱粒子23は、光散乱層22の中の光散乱粒子以外の部分の平均的屈折率に比べて比較的大きい屈折率を有することができる。つまり、散乱

10

20

30

40

50

粒子 23 は、比較的屈折率の小さい結合剤の中に設けられるか、又は、図 1 に示される空隙 18 のように真空かガスが充満した空隙中の表面（例えば、透明電極 16）上に形成される。本発明の別の実施態様では、発光粒子 23 は球状ではなく、ランダムな方向を向いている。このような粒子形状と方向のためランダム散乱構造が効率よく形成され、透明電極 16 の表面のあらゆる場所で光が全て散乱される。このため、光が光散乱層 22 に当たるたびに散乱され、高角度で捕獲される光の量が増える。このようなランダム効果により放出される光の色及び輝度の角度依存性が低下する。この特性はディスプレイヤーアリ亞照明のような殆どの発光デバイスにおいて有用なものであり、従来のまばらで体積比の小さい散乱層には見られないものである。本発明の更なる実施態様では、抽出できない捕獲光の量を最小限とするために、光散乱層 22 と E L ユニット 14との間に、層の屈折率が発光層の屈折率より小さくその差が 0.1 を超え、かつ、光を捕獲するのに十分な厚みを有する層を形成しない。光散乱層 22 は、E L ユニット 14 と光学的に直接接することがさらに好ましい。「光学的に直接接する」とは、光散乱層 22 と E L ユニット 14 との間に形成されるいすれの層も、発光材料層の屈折率と同じか大きい屈折率を有するか、又は光を捕獲するのに十分でない厚さを有することを意味する。どちらの場合も、光散乱層 22 と透明電極 16 との間に透明な保護層を設けることができる。

【 0029 】

光散乱層の体積は、光散乱粒子の下の面でありその上に光散乱粒子が形成され乗っている面と、その上の平行な面であり光散乱粒子に接している面と、その上下の面の両端において直角である面とに囲まれた体積である。平坦で固い基板を有するデバイスでは、光散乱層の体積は、その層における光散乱粒子全てが含まれる最も小さい四角い立体の体積である。

【 0030 】

本発明は、パターン電極と発光領域 50 とを有する画素化されたディスプレイデバイスに使用することができる。このようなデバイスでは、光散乱層 22 をそれぞれの発光領域 50 の上に別々に又は連続的なコーティングとして形成することができる。いずれの場合も、光散乱層 22 の体積には、発光領域 50 の上又は下に位置する光散乱粒子 23 のみが含まれる。本発明によると、光散乱層 22 の体積に対する光散乱粒子 23 の体積の比率が、少なくとも発光領域の大部分に渡って 0.55 より大きい。デバイスの発光領域全体に渡って比率が 0.55 より大きいことが望ましいが、発光領域のマイナーな部分の上の光散乱層 22 に光散乱が目的ではない比較的大きな突出粒子を含むこともまた望ましい（例えば、2005 年 7 月 12 日に出願された同時係属のアメリカ合衆国特許出願シリアル番号 11/179,409 に教示されるスペーサー粒子。この文献は、引例としてこの明細書に組み込まれている。）。このような大きい粒子を計算に含めると、光散乱は大きく影響されないのでに対し、突出粒子のとがった部分によって決定される層の体積は劇的に増大するため、このような比較的大きな粒子を含む領域は本発明の光散乱層 22 に対する散乱粒子の体積比を求める計算に含める必要はない。よって、本発明では、体積比が発光領域の大部分に渡って 0.55 より大きければよい。従って、このような大きい粒子でコーティングされたいすれの領域も、光散乱層の体積を決定するための面の範囲から除くことができる。

【 0031 】

本発明では、光散乱粒子 23 も光散乱粒子 23 に占有されていない他の体積部分同様に、様々な材料を含むことができる。本発明の一実施態様では、他の体積部分の大部分はガスか真空であることができる。空気又は不活性ガスを用いるのが好ましい。

【 0032 】

本発明の光散乱粒子 23 の屈折率は、E L ユニット 14 及び / 又は透明電極 16 の屈折率以上であることが好ましい。このような屈折率であれば、いすれの光も E L ユニット 14 及び / 又は透明電極 16 に捕獲されないため、デバイスから効率的に光を抽出することができる。実際のところ、光散乱粒子は 1.8 以上の屈折率を有することができる。

【 0033 】

10

20

30

40

50

本発明では、図2に示すように、光散乱層22を含むエレクトロルミネッセンス・デバイスは、第1電極、第2透明電極、及び前記電極間に形成された1つ以上のELユニットを含む発光領域を備えたLEDを準備し(100)；揮発性溶媒と複数の透明な光散乱粒子とを含む溶液(例えば分散液)を調製し(105)；前記1つ以上のELユニットと反対側の前記第2電極の面に前記溶液を塗布し(110)；前記溶液を乾燥させ、前記透明電極上に光散乱層を形成する(115)ことにより形成することができ、前記光散乱層の体積に対する光散乱粒子の体積の比率が少なくとも発光領域の大部分に渡って0.55より大きいものとする。LEDデバイスの形成方法はこの技術分野ではよく知られている。

【0034】

この溶液に別の材料を加えると、得られた層の効率や形成方法をさらに向上させることができる。例えば、界面活性剤や結合剤が使用できる。特に、光散乱粒子の屈折率より屈折率の小さい結合剤を光散乱粒子23の質量の10%より少ない量で使用できる。このような結合剤には例えばウレタンを含むものがあり、本願出願人は、これらが界面活性剤として、及び、電極に光散乱粒子23を付着させる手段として有用であることを示した。図3に示すように、光散乱粒子23の乾燥層22は透明電極16上に形成される。

【0035】

図4に示すように、本発明の別の実施態様では、結合剤を、光散乱粒子23及び透明で高屈折率のナノ粒子30の混合物を含む溶液に加え、透明電極16上に高屈折率の光散乱層22を形成することができる。この場合、結合剤とナノ粒子30とで、透明電極16に隣接してなめらかで平坦な層を形成することができる。本願出願人は、光散乱粒子23を有する光散乱層22の中に、このような高屈折率のナノ粒子30を用いた。高屈折率のナノ粒子30は光を散乱しないかもしれないが、光散乱粒子23と透明電極16との光学的カップリングを向上することができる。ナノ粒子30の屈折率は光散乱粒子23の屈折率とは異なる可能性がある。

【0036】

図1に示すように、光散乱層22を第2透明電極16に隣接させ、かつ、接触させることができる。このような構造をとる場合、光散乱層22は第2透明電極16に光学的に接するように配置することができ、これにより、第2透明電極から光散乱層22への光透過が向上する。本発明の別の実施態様では、図5に示すように、1つ以上の保護層26a/26bを、光散乱層22(26a)と第2透明電極16との間に、及び/又は、第2透明電極16とは反対側の光散乱層22の面上において光散乱層22(26b)を覆って形成することができる。保護層としては、例えば、酸化アルミニウムや酸化亜鉛のような金属酸化物、及びパリレンが当該技術分野では知られている。このような保護層を使用する場合、保護層の屈折率は、発光材料層の屈折率より小さくその差が0.1を超えることが好ましく(少なくとも発光材料層の屈折率と同一であることがより好ましく)、また、保護層は発光材料層から放出された光を捕獲するには十分でない薄さであることが好ましい。本発明の別の実施態様では、アメリカ合衆国特許出願公開2006/0186802で教示されるように、低屈折率の層をギャップ18中に、又は、ギャップ18として用い、OLEDデバイスをトップ-エミッション型ディスプレイデバイスとし、第1電極12を反射性電極にすることができる。

【0037】

他の実施態様では、封止用カバー20及び基板10としては、典型的な屈折率が1.4~1.6のガラス又はプラスチックを挙げることができる。透明な低屈折率素子18としては光学的に透明な材料からなる固体層、空孔、又はギャップが挙げられる。空孔又はギャップは真空でもよいし、光学的に透明な気体材料又は液体材料で満たされていてもよい。例えば、空気、窒素、ヘリウム、又はアルゴンはどれも屈折率が1.0~1.1であり、使用可能である。屈折率がより小さい使用可能な固体としては、フルオロカーボン又はMgFが挙げられ、屈折率はそれぞれ1.4よりも小さい。使用するどのガスも不活性であることが好ましい。反射性電極12は金属(例えば、アルミニウム、銀、又はマグネシウム)又は合金でできていることが好ましい。透明電極16は透明導電材料(例えば

10

20

30

40

50

、酸化インジウムスズ(ITO)又はそれ以外の金属酸化物)からできていることが好み。ELユニット14は、当該技術分野で知られている有機材料、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子注入層、及び/又は電子輸送層を含むことができる。このような有機材料層はOLEDの技術分野でよく知られている。有機材料層は、一般に屈折率が1.6~1.9であるのに対し、酸化インジウムスズは、屈折率が約1.8~2.1である。従って、有機LEDに含まれる透明電極層16及びELユニット層14は、屈折率が1.6~2.1の範囲である。一方、ELユニット14は、一般に屈折率が1.8~3.0の範囲の無機半導体材料を含むことができる。もちろん、様々な材料の屈折率はその中を通過する光の波長に依存する可能性があるため、その材料に関してこの明細書に記載した屈折率は概算値である。いずれにしても、透明な低屈折率素子18は、屈折率が、LED発光体にとって望ましい波長において、第1の範囲の屈折率及び第2の屈折率のそれよりも少なくとも0.1は小さいことが好み。10

【0038】

光散乱粒子23は金属酸化物(例えば酸化チタン)を含むことができる。一実施態様では、光散乱粒子の平均最大粒径は2ミクロンより小さく、また、別の実施態様では、光散乱粒子の平均最大粒径は1~2ミクロンである。また、別の実施態様では、光散乱粒子23の平均最大粒径は1ミクロンより小さい。光散乱粒子23それ自体がリン光性又は蛍光性粒子であってもよく、捕獲された光を抽出し、また、比較的高い周波数の光をそれとは異なる低い周波数の色の光に変換することができる。比較的低い周波数の光は変換されず単に抽出されうる。この場合のリン光性又は蛍光性の光散乱粒子の粒径は0.5~2ミクロンをとることができる。20

【0039】

作動中は、電流が電極12及び16からELユニット14の発光層33を流れ発光する。光の一部は散乱層22を通じてデバイスから放出され使用される。それ以外の光は、透明電極16及びELユニット14の屈折率が大きいため、及び全内部反射のため捕獲されうる。この捕獲された光は光散乱層22において光散乱粒子23と作用し有効な方向に向きを変えデバイスから放出されうるため、デバイスの明度を上げることができる。本願出願人はこのようなデバイスを完成させた。図6及び図7は、体積比が約0.6である本発明の実施態様にかかるTiO₂光散乱粒子を有する光散乱層の顕微鏡写真である。光散乱層は1ミクロンより薄く、0.5~2ミクロンのTiO₂粒子を、10質量%の樹脂界面活性剤及び結合剤(Avecia社によるSolisperse2000)と共に含む。光散乱層のコーティングは14質量%の濃度のキシレン分散液を用い、トップ-エミッション型OLEDデバイスの表面にインクジェットで60pLの液滴を100滴/秒の速さで70マイクロメーターの間隔で蒸着することにより薄い湿潤膜を形成し50で乾燥させることにより行った。他の溶媒(例えば、トルエン)、及び、他のコーティング方法(例えば、スピンドルコーティング及び吹付けコーティング)を代わりに用いることもでき、また、乾燥温度を変えることにより乾燥速度を変えることもできる。溶媒中の粒子密度を様々に変え、様々な速度で蒸着し、(温度を管理した環境下で行うか、又は分散液が蒸着された基板を加熱するかの方法で)様々な温度で乾燥することにより、特定の量の光散乱材料に対して様々な乾燥速度が得られた。特に、乾燥工程を制御することにより、最終的に様々な密度の光散乱層を得ることができる。本願出願人は、好みの温度である40~6030

の範囲外では、一般に、充填密度が0.55体積%より低くなり、OLEDデバイスから最適に光を抽出できないことを示した。さらに、分散液中の散乱粒子の一定体積が表面積に蒸着される速度(例えば、インクジェット蒸着システムからの1秒あたりの滴数)により、乾燥工程及び乾燥させた層の充填構造は影響を受ける。好みの体積比の光散乱層をOLEDデバイスの透明電極上に形成すると、光散乱層は所望の性能を有した。40

【0040】

散乱層22には様々な材料を用いることができる。例えば、ポリマー材料のマトリクス中に酸化チタンの球体をランダムに配置することができる。あるいは、ITO、酸化ケイ素、又は窒化ケイ素を用いてより構造的な配置にすることができる。屈折性素子の形状は50

、円筒状、矩形上、ルチル、又は球状にすることができるが、これらに限定されるものではない。散乱層22に含まれる材料間の屈折率の違いは、例えば、0.3~3にすることができる、一般的に差が大きい方が望ましい。散乱層の厚さ、又は散乱層の内部又は表面上の特徴的形状部(features)のサイズは、例えば、0.03~50μmにすることができるが、吸収を最小にしディスプレイデバイスの他の素子との適合性を最大にするためには散乱層の厚さは1ミクロンより薄いことが望ましい。散乱層の内部での回折効果を回避することが一般に望ましい。そのような効果を回避するには、例えば、特徴的形状部をランダムに配置させたり、又は、屈折素子のサイズ、形状、又は分布を変え、デバイスの発光領域から出る光の色の波長と同じにならないようにするとよい。

【0041】

10

光散乱層22の材料としては有機材料(例えば、ポリマー又は導電性ポリマー)や無機材料が挙げられる。有機材料は、例えば、ポリチオフェン、PEDOT、PET、又はPENのうちの1つ以上を含んでもよい。無機材料は、例えば、 SiO_x ($x > 1$)、 SiN_x ($x > 1$)、 Si_3N_4 、 TiO_2 、 MgO 、 ZnO 、 Al_2O_3 、 SnO_2 、 In_2O_3 、 MgF_2 、ハフニア(HfO_2)、ジルコニア(ZrO_2)、ジルコン($\text{ZrO}_2 \cdot \text{SiO}_2$)、ガドリニウム ガリウム ガーネット($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$)、硫酸バリウム、イットリア(Y_2O_3)、イットリウム アルミニウム ガーネット("YAG"、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$)、カルサイト(CaCO_3)、サファイア(Al_2O_3)、ダイアモンド、酸化マグネシウム、及び/又は、酸化ゲルマニウム、及び、 CaF_2 のうちの1つ以上を含んでもよい。散乱層22は、例えば、屈折率が1.6~1.8の酸化ケイ素及び窒化ケイ素を含むことができ、屈折率が2.5~3の酸化チタンでドープされてよい。屈折率が1.4~1.6の範囲のポリマー材料を用い、その中に屈折率がより大きな材料(例えば、二酸化チタン)からなる屈折性素子が分散させることができる。

【0042】

20

従来のリソグラフィ手段(例えば、当該技術分野で知られているフォトレジスト、マスク露光、及びエッチング)を利用して散乱層を作ることができる。あるいはコーティング法も利用できる。その場合、液体(例えば二酸化チタンを分散させた溶媒)で散乱層22を形成することができる。

【0043】

30

たいていの有機及び有機-無機ハイブリッドLEDデバイスは水分と酸素の一方又は両方に敏感であるため、これらは通常、不活性雰囲気(例えば、窒素やアルゴン)中で、乾燥剤(例えば、アルミナ、ボーキサイト、硫酸カルシウム、粘度、シリカゲル、ゼオライト、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、硫酸塩、又は、金属ハロゲン化物、及び、過塩素酸塩)と共に密封される。封入及び乾燥のための方法は、2001年5月8日に付与されたBorosonらによるアメリカ合衆国特許第6,226,890号に挙げられているが、これらに限定されるものではない。さらに、 SiO_x ($x > 1$)層、テフロン(登録商標)層、及び別の無機/ポリマー層などの障壁層が、封止用として当該技術分野で知られている。

【0044】

40

特に、図5に示すように、保護層26a/26bを設けることができる。例えば、透明な封入材料からなるとても薄い層を電極16上に蒸着することができる。この場合、散乱層22は保護材料層26aの上に蒸着することができる。この構造をとる場合、散乱層22が蒸着される間電極16が保護されるという利点がある。透明保護材料層26aの屈折率が、透明電極の屈折率範囲及び有機層の屈折率範囲と少なくとも同等であるか、又は透明保護材料層26aが非常に薄い(例えば、0.2ミクロンより小さい)ことが好ましい。こうすることにより、透明電極16及びELユニット14中の導波光は透明保護材料層26aを通過し散乱層22で散乱される。

【0045】

本発明のエレクトロルミネッセンス・デバイスは、必要に応じて、よく知られた様々な光学的効果を利用して特性を向上させることができる。この中には、層の厚さを最適化し

50

て光の透過を最大にすること、誘電体ミラー構造を設けること、反射性電極の代わりに光吸収電極を用いること、グレア防止又は反射防止のコーティングをディスプレイの表面に設けること、偏光媒体をディスプレイの表面に設けること、又は、カラーフィルタ、中性フィルタ、もしくはカラー変換フィルタをディスプレイの表面に設けることなどがある。フィルタ、偏光装置、及びグレア防止用又は反射防止用コーティングは、特に、カバーの表面に、又はカバーの一部として設けることができる。

【0046】

本発明はまたアクティブ - マトリクス式又はパッシブ - マトリクス式 O L E D デバイスのいずれでも実施することができる。本発明はまたディスプレイデバイス又はエリア照明装置に利用することができる。一実施態様では、本発明は、低分子 O L E D 又はポリマー O L E D からなるフラットパネル O L E D デバイスに用いられる。これらは、1988年9月6日に付与された T a n g らによるアメリカ合衆国特許第 4,769,292 号、及び 1991 年 10 月 29 日に付与された V a n S l y k e らによるアメリカ合衆国特許第 5,061,569 号に開示されているが、これらに限定されるものではない。別の実施態様では、本発明は、量子ドットを含むフラットパネル無機 L E D デバイスに用いられる。これらは、「量子ドット発光層」というタイトルのアメリカ合衆国特許出願公開 2007/0057263、及び、係属中の K a h e n によるアメリカ合衆国特許出願シリアル番号 11/683,479 に開示されているが、これらに限定されるものではない。これら両文献は、その全体が引例としてこの明細書に組み込まれているものとする。有機、無機、及びハイブリッドの発光ディスプレイの多くの組み合わせやバリエーションを利用してこのようなデバイスを製造することができる。このようなデバイスには、トップ - エミッショニ型構造又はボトム - エミッショニ型構造のいずれかを備えるアクティブ - マトリクス L E D デバイス及びパッシブ - マトリクス L E D デバイスの両方が含まれる。エレクトロルミネッセンス・デバイスの多くの組み合わせやバリエーションを利用してこのようなディスプレイを製造することができる。このようなディスプレイには、トップ - エミッショニ型構造又はボトム - エミッショニ型構造のいずれかを備えるアクティブ - マトリクス L E D デバイス及びパッシブ - マトリクス L E D デバイスの両方が含まれる。

【0047】

本発明は、本発明の特定の好ましい実施態様を例として詳細に説明されているが、本発明の範囲及び主旨から逸脱することなく変形及び修正が可能であることが理解されるであろう。

【符号の説明】

【0048】

1 , 2 , 3 , 4	光線
1 0	基板
1 2	電極
1 4	E L ユニット
1 6	透明電極
1 8	ギャップ
1 9	ギャップ
2 0	カバー
2 2	散乱層
2 3	散乱粒子
2 6 , 2 6 a , 2 6 b	保護層
3 0	透明な高屈折率粒子
3 1	半導体マトリクス
3 3	発光層
3 5 , 3 7	電荷輸送層
3 9	量子ドット
4 0	L E D

10

20

30

40

50

5 0 発光領域

1 0 0 O L E D 準備工程

1 0 5 分散液調製工程

1 1 0 分散液コーティング工程

1 1 5 分散液乾燥工程

【図1】

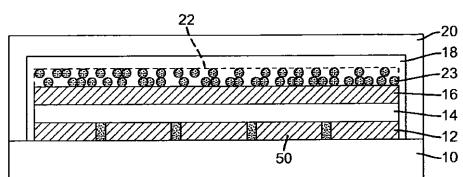


FIG. 1

【図3】

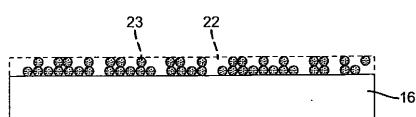


FIG. 3

【図2】

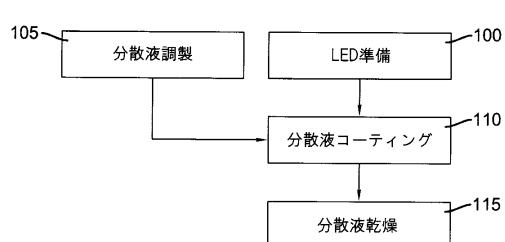


FIG. 2

【図4】

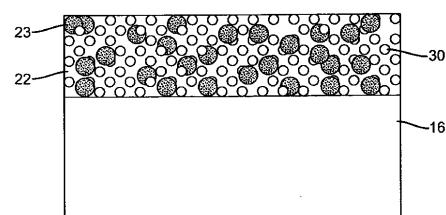


FIG. 4

【図5】

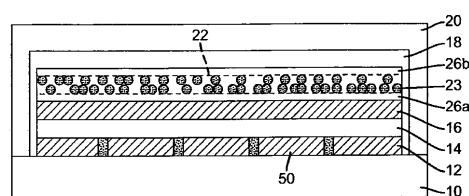


FIG. 5

【図6】

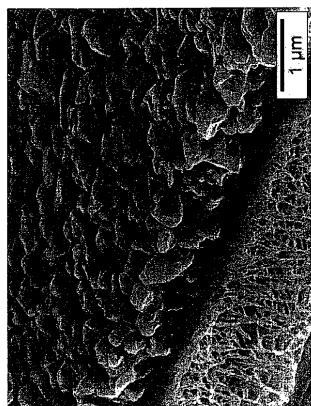


FIG. 6

【図7】

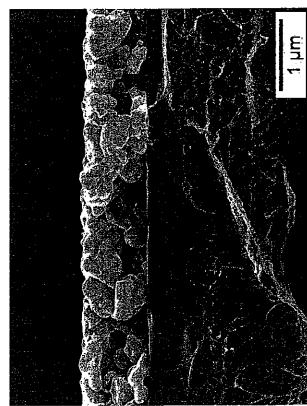
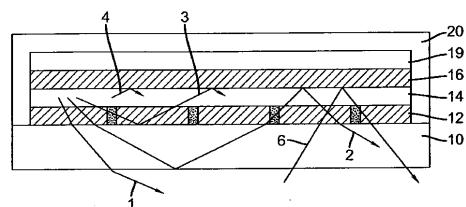
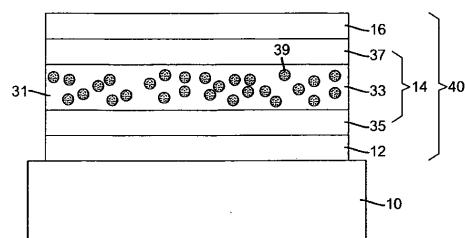


FIG. 7

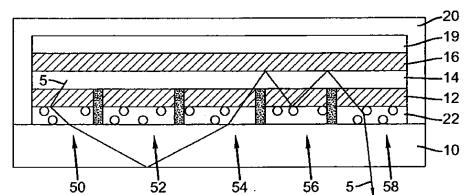
【図8】

FIG. 8
PRIOR ART

【図9】

FIG. 9
PRIOR ART

【図10】

FIG. 10
PRIOR ART

フロントページの続き

(74)代理人 100093665
弁理士 蛭谷 厚志

(74)代理人 100144417
弁理士 堂垣 泰雄

(74)代理人 100114018
弁理士 南山 知広

(72)発明者 コーク , ロナルド スティーブン
アメリカ合衆国 , ニューヨーク 14650 , ロチェスター , ステイト ストリート 343

審査官 濱野 隆

(56)参考文献 米国特許出願公開第2006/0186802(US, A1)
国際公開第2007/037358(WO, A1)
特開2006-100042(JP, A)
特開2004-296429(JP, A)
国際公開第06/040704(WO, A1)
特表2008-516405(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H05B 33/02

H01L 51/50

H05B 33/04

H05B 33/10