

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4276109号  
(P4276109)

(45) 発行日 平成21年6月10日 (2009. 6. 10)

(24) 登録日 平成21年3月13日 (2009. 3. 13)

(51) Int.Cl.

F I

H 0 5 B 33/12 (2006. 01)

H 0 5 B 33/12

C

H 0 1 L 51/50 (2006. 01)

H 0 5 B 33/14

A

請求項の数 6 (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2004-55792 (P2004-55792)  
 (22) 出願日 平成16年3月1日 (2004. 3. 1)  
 (65) 公開番号 特開2005-251398 (P2005-251398A)  
 (43) 公開日 平成17年9月15日 (2005. 9. 15)  
 審査請求日 平成18年3月10日 (2006. 3. 10)

(73) 特許権者 000116024  
 ローム株式会社  
 京都府京都市右京区西院溝崎町 2 1 番地  
 (74) 代理人 100083286  
 弁理士 三浦 邦夫  
 (74) 代理人 100135493  
 弁理士 安藤 大介  
 (72) 発明者 仲田 壮志  
 神奈川県藤沢市桐原町 3 番地 株式会社ア  
 イメス内  
 審査官 濱野 隆

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセント素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基板上に、少なくとも3つの電極層と、前記電極層より1つ少ない有機EL発光体構造とを有し、前記基板側から順に、前記電極層と前記有機EL発光体構造が交互に成膜され、前記基板側から数えて奇数番目に成膜された電極層群と、前記基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群と、がそれぞれ等電位に接続され、前記2つの電極層群の間に交流電圧が印加されることにより、  
 前記基板側から数えて奇数番目に成膜された有機EL発光体構造群と、  
 前記基板側から数えて偶数番目に成膜された有機EL発光体構造群と、  
 が交互に発光する有機エレクトロルミネッセント素子であって、  
前記基板側から数えて奇数番目に成膜された有機EL発光体構造群は、  
前記基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群に接する電子注入層を含み、  
前記電子注入層は熱還元反応生成層からなり、  
前記基板側から数えて偶数番目に成膜された有機EL発光体構造群は、  
前記基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群上に成膜された第1ホール注入層を含み、  
前記第1ホール注入層は、ホール輸送性物質を電子受容性物質で酸化してなることを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子。

【請求項 2】

前記有機EL発光体構造は、少なくとも一層の発光層を含む発光ユニットを複数個有する発光ユニットの積層体であり、前記複数の発光ユニットは電荷発生層によって仕切られており、かつ、前記電荷発生層は $1.0 \times 10^2 \cdot \text{cm}$ 以上の比抵抗を有する電氣的絶縁層である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

【請求項3】

前記電極層のすべてが透明電極層である請求項1又は請求項2記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

【請求項4】

前記電極層のいずれか1層が不透明電極層である請求項1又は請求項2記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

10

【請求項5】

前記不透明電極層は金属電極である請求項4記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

【請求項6】

前記不透明電極層は1層のみからなり、前記基板側から数えて第1番目、または、前記基板から最も遠い位置に成膜されている請求項4又は請求項5記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、複数の有機EL発光体構造を備え、交流を印加することによりこれらの有機EL発光体構造を発光させる有機エレクトロルミネッセント素子（有機EL素子）に関する。

20

【背景技術】

【0002】

近年、有機半導体や有機導電体の研究が盛んに行われており、中でも有機半導体を使用する発光体である有機EL素子の進展がめざましい。

【0003】

このような有機EL素子において、Tangらは、素子の高効率化のため、キャリア輸送性の異なる有機化合物（ホール輸送性有機物と電子輸送性有機物）を積層し、ホールと電子がそれぞれ陽極、陰極よりバランスよく注入される構造とし、しかも該陰極と陽極に挟まれた有機層の層厚を2000以下とすることで、10V以下の直流印加電圧で輝度 $1000 \text{ cd/m}^2$ と外部量子効率1%の実用化に十分な高輝度、高効率を得ることに成功した（Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987)、特開昭59-194393号公報、特開昭63-264692号公報、特開平2-15595号公報、米国特許第4539507号明細書、同第4769292号明細書、同第4885211号明細書参照）。

30

【0004】

また、最近では、従来の有機ELデバイスの電極に挟まれた部分を複数積層して、回路的には直列に接続することで、素子の高効率化を図るアイデアが論文、及び特許文献中に散見されるに至っている（特開平11-329748号公報、米国特許第6337492号明細書、特開2003-45676号公報、特開2003-264085号公報、Appl. Phys. Lett., vol. 84, p167 (2004)等参照）。

40

【0005】

特に本出願人らは特開2003-272860号公報において、 $10^2 \cdot \text{cm}$ 以上の比抵抗を有する電氣絶縁性の電荷発生層を用いて複数の有機EL発光ユニットを回路的に直列に接続する手法を開示し、MPE (Multi-Photon Emission、マルチフォトンエミッション) 有機EL素子と名付けて、学会、展示会等の機会を利用して発表、展示を行い高い評価を得てきた（第49回応用物理学会関係連合講演会、講演予稿集27p-YL-3, p. 1308、第63回応用物理学会学術講演会、講演予稿集27a-ZL-12, p. 1165、Proceedings of EL2002 (Int

50

ernational Conference on the Science and Technology of Emissive Display and Lighting) p. 539、Proceedings of IDMC '03 (International Display Manufacturing Conference) Fr-21-01 p. 413、SID03 DIGEST, vol. XXXIV, BOOK II, p. 964、SID03 DIGEST, vol. XXXIV, BOOK II, p. 979、第13回フラットパネルディスプレイ製造技術展での講演会D-4(2003)、LCD/PDP INTERNATIONAL 2002での(株)アイメスの白色発光体の展示及び配布資料、E Express(2002年11月15日号)、フラットパネルディスプレイ2004戦略編Part. 6-2 p. 158、等参照)。

10

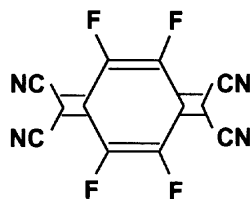
#### 【0006】

この電荷発生層の構造は、本出願人らがこれまで蓄積してきた有機EL素子の電極に接する電荷(電子やホール)注入層の組成を、順次、積層したものと類似している。具体的には、特開平10-270171号公報(米国特許第6013384号明細書)や特開2001-102175号公報(米国特許第6589673号明細書)や「J. Kido and T. Matsumoto, Appl. Phys. Lett., 73, p. 2866(1998)」等で開示した、電子受容性(電子輸送性)有機物をアルカリ金属等の還元性物質(「電子供与性物質」、または「ルイス塩基」とも称される)で還元して生成する該電子受容性有機物のラジカルアニオン分子を含有する層、もしくは特開平11-233262号公報(欧州特許0936844B1)や特開2000-182774号公報(米国特許第6396209号明細書、欧州1011155B1)、「J. Endo, T. Matsumoto, and J. Kido, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 41(2002) pp. L800-L803」で詳説されている手法を用い、熱還元反応によって電子受容性有機物のラジカルアニオン分子が生成して存在している熱還元反応生成層と、特開平11-251067号公報(米国特許第6423429号明細書)や特開2001-244079号公報(米国特許第6589673号明細書)や特開2003-272860号公報、特願2003-358402号、「J. Endo, T. Matsumoto, and J. Kido, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 41(2002) L358」等で開示した、電子供与性(ホール輸送性)有機物を $V_2O_5$ や、

20

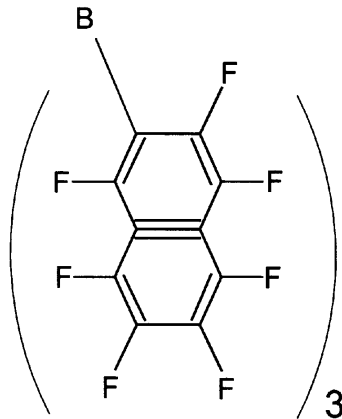
#### 【化1】

30



で示される $F_4$ -TCNQや、

## 【化 2】



10

で示される PNB 等の酸化性物質（「電子受容性物質」、または「ルイス酸」とも称される）で酸化して生成する該電子供与性有機物のラジカルカチオン分子を含有する層を順次積層した組成を有している（参照文献：K. L. T. Dao and J. Kido, J. Photopolym. Sci. Technol., 15, 261 (2002)）。

## 【0007】

このような構成を有する電荷発生層を介して従来型有機 EL 素子の陰極、陽極に挟まれた部分（発光ユニット）を積層すると、電圧印加時において、該電荷発生層から、陰極方向にホールが移動し、陽極方向に電子が移動するので、複数の発光ユニット中でホールと電子の再結合が生じ光子が発生する。結果として単位注入電流密度当たりの発光強度（例えば「量子効率」や「電流効率」で表される）が略  $(n+1)$  倍になることが証明された（ $n$  は電荷発生層の層数）。

20

## 【0008】

さらに、本出願人らは、前記の出願特許文献以前に、類似の構造として、特開 2003-045676 公報において、透明電極として広く知られる ITO (Indium Tin Oxide) を電荷発生層として用いる例を開示した。

## 【0009】

この場合の電荷発生層としての ITO は、（言うまでもないが）電圧印加時に電子 - ホール両キャリアをそれぞれ逆方向に注入する役割を果たしている。有機 EL 素子の陽極や陰極に適する材料の性質としては、前出の KODAK 社の米国特許第 4,885,211 号明細書が公開されて以来、4.0 eV 以下の低仕事関数金属が陰極に適する材料とされ、逆に陽極電極には（可能な限り）高仕事関数を有する材料（例えば ITO のように約 5.0 eV の仕事関数を有するもの）が適するとされてきた。

30

## 【0010】

しかしながら、本出願人らが、特開平 10-270171 号公報（米国特許第 6013384 号明細書）や特開 2001-102175 号公報（米国特許第 6589673 号明細書）で開示した電子供与性金属ドーピング層や、特開平 11-233262 号公報（欧州特許 0936844 B1）や特開 2000-182774 号公報（米国特許第 6396209 号明細書、欧州 1011155 B1）、で開示した熱還元反応生成層、等の電子注入層を用いれば、ITO を陰極電極として用いたとしても、注入障壁のない電子注入が可能であることが示されている。したがって陽極電極、陰極電極、ともに ITO を用いることで（ガラス基板や有機膜も本質的に透明であるから）、無発光時はガラスのように透明でありながらも、発光可能な透明発光デバイスが作成可能となった。その様な透明素子の実施例は、本出願人らの特開 2002-332567 号公報の実施例に開示されている。また逆にアルミニウム（仕事関数 4.2 eV）のように、ITO と比べて低仕事関数金属であって、従来ホール注入電極として不適であると見なされてきた金属であっても、本出願人らが、特開平 11-251067 号公報（米国特許第 6423429 号明細書）や特開 2001-244079 号公報（米国特許第 6589673 号明細書）や特開 2003

40

50

- 272860号公報、特願2003-358402号等で開示したように、電子受容性物質をドーピングしたホール注入層を用いれば、注入障壁のないホール注入が可能である。この手法を用いて、実際にアルミニウムを陽極として用いた素子は、特願2003-358402号公報の実施例3、実施例4に示されている。

【0011】

つまり、前記特許文献に開示された、電子注入層やホール注入層を用いれば、電極材料の仕事関数値は勿論、透明か不透明か、といった光学的性質の如何にも拘わらず、ホール、電子ともに障壁のない注入が可能となることがすでに示されている。

【特許文献1】特開昭59-194393号公報

【特許文献2】特開昭63-264692号公報

10

【特許文献3】特開平2-15595号公報

【特許文献4】特開平10-270171号公報

【特許文献5】特開平11-233262号公報

【特許文献6】特開平11-251067号公報

【特許文献7】特開平11-329748号公報

【特許文献8】特開2000-182774号公報

【特許文献9】特開2001-102175号公報

【特許文献10】特開2001-244079号公報

【特許文献11】特開2002-332567号公報

【特許文献12】特開2003-264085号公報

20

【特許文献13】特開2003-272860号公報

【特許文献14】特願2003-358402号公報

【特許文献15】特開2003-45676号公報

【特許文献16】米国特許第4539507号明細書

【特許文献17】米国特許第4769292号明細書

【特許文献18】米国特許第4885211号明細書

【特許文献19】米国特許第5552678号明細書

【特許文献20】米国特許第6013384号明細書

【特許文献21】米国特許第6337492号明細書

【特許文献22】米国特許第6396209号明細書

30

【特許文献23】米国特許第6423429号明細書

【特許文献24】米国特許第6589673号明細書

【非特許文献1】Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)

【非特許文献2】J. Kido and T. Matsumoto, Appl. Phys. Lett., 73, p. 2866 (1998)

【非特許文献3】K. L. T. Dao and J. Kido, J. Photopolym. Sci. Technol., 15, 261 (2002)

【非特許文献4】J. Endo, T. Matsumoto, and J. Kido, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 41 (2002) pp. L800-L803

【非特許文献5】第49回応用物理学会関係連合講演会、講演予稿集27p-YL-3, p. 1308

40

【非特許文献6】第63回応用物理学会学術講演会、講演予稿集27a-ZL-12, p. 1165

【非特許文献7】Proceedings of EL2002 (International Conference on the Science and Technology of Emissive Display and Lighting) p. 539

【非特許文献8】Proceedings of IDMC '03 (International Display Manufacturing Conference) Fr-21-01 p. 413

50

【非特許文献 9】SID03 DIGEST, vol. XXXIV, BOOK II, p. 964

【非特許文献 10】SID03 DIGEST, vol. XXXIV, BOOK II, p. 979

【非特許文献 11】L. S. Liaoら、Appl. Phys. Lett., vol. 84, p167 (2004)

【非特許文献 12】第 13 回フラットパネルディスプレイ製造技術展での講演会 D-4 (2003)

【非特許文献 13】LCD/PDP INTERNATIONAL 2002 での(株)アイメスの白色発光体の展示及び配布資料

【非特許文献 14】E Express (2002 年 11 月 15 日号)

【非特許文献 15】フラットパネルディスプレイ 2004 戦略編 Part. 6-2 p. 158

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

以上述べた有機 EL 素子は通常直流を印加して発光させるが、交流を印加して発光させる試みもされている。有機 EL 素子を交流駆動することの利点については KODAK 社の米国特許第 5、552、678 号明細書に詳説されている通り、直流駆動に比べて素子寿命が長くなる効果が知られている。しかしながら、整流作用のある有機 EL 素子の場合、(当然ではあるが、) 順バイアスされた時だけ点灯可能であり、逆バイアス時は不点灯である。そのため、商用電源のように 50 Hz 程度の周波数では、人間の目にはちらつきを感じてしまう。

【0013】

本発明は、このような技術的基盤の上に立ち、本来直流駆動の素子である有機 EL 素子を交流で駆動して、人間の目にはちらつきを感じない連続発光可能なデバイスの構造を提供することが目的である。

【課題を解決するための手段】

【0014】

上記課題を解決するために、本発明の有機エレクトロルミネッセント素子においては、基板上に、少なくとも 3 つの電極層と、電極層より 1 つ少ない有機 EL 発光体構造とを有し、基板側から順に、電極層と有機 EL 発光体構造が交互に成膜され、基板側から数えて奇数番目に成膜された電極層群と、基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群と、がそれぞれ等電位に接続されており、2 つの電極層群の間に交流電圧が印加されることにより、基板側から数えて奇数番目に成膜された有機 EL 発光体構造群と、基板側から数えて偶数番目に成膜された有機 EL 発光体構造群と、が交互に発光し、基板側から数えて奇数番目に成膜された有機 EL 発光体構造群は、基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群に接する電子注入層を含み、電子注入層は熱還元反応生成層からなり、基板側から数えて偶数番目に成膜された有機 EL 発光体構造群は、基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群上に成膜された第 1 ホール注入層を含み、第 1 ホール注入層は、ホール輸送性物質を電子受容性物質で酸化してなることを特徴としている。

【0016】

上記有機 EL 発光体構造は、少なくとも一層の発光層を含む発光ユニットを複数個有する発光ユニットの積層体であり、複数の発光ユニットは電荷発生層によって仕切られており、かつ、電荷発生層は  $1.0 \times 10^2 \cdot \text{cm}$  以上の比抵抗を有する電氣的絶縁層であることが好ましい。

【0017】

上記電極層は、すべてを透明電極層とすることができる。

【0018】

上記電極層は、いずれか 1 層を不透明電極層とすることができる。この不透明電極層は

金属電極とすることができる。

【 0 0 1 9 】

上記不透明電極層は 1 層のみからなり、基板側から数えて第 1 番目、または、基板から最も遠い位置に成膜されていることが好ましい。

【 発明の効果 】

【 0 0 2 0 】

本発明によると、3 層以上の電極層群を有し、この電極層群には含まれている複数の有機 E L 発光体構造群が交互に発光することが出来るので、従来の交流駆動有機エレクトロルミネッセント素子のようなちらつきの問題もなく、かつ、寿命も改善された素子を得ることが出来る。

10

【 発明を実施するための最良の形態 】

【 0 0 2 1 】

以下、本発明に係る実施形態を図面を参照しつつ詳しく説明する。  
本実施形態に係る有機エレクトロルミネッセント素子は、3 層以上の電極層群を有し、基板上に

( 1 ) 第 1 電極層

( 1 ' ) 第 1 有機 E L 発光体構造

( 2 ) 第 2 電極層

( 2 ' ) 第 2 有機 E L 発光体構造

( 3 ) 第 3 電極層

( 3 ' ) 第 3 有機 E L 発光体構造

( 4 ) 第 4 電極層

( 4 ' ) 第 4 有機 E L 発光体構造

.....

( n - 1 ) 第 n - 1 電極層

( n - 1 ' ) 第 n - 1 有機 E L 発光体構造

( n ) 第 n 電極層

という順序で、電極層と有機 E L 発光体構造が交互に成膜されている。ここで、n は 3 以上の整数である。

20

【 0 0 2 2 】

有機 E L 発光体構造は、いずれも、基板側からホールが注入され、基板から遠い側から電子が注入される構成となっている。すなわち、有機 E L 発光体構造は、いずれもバイアス方向が同一である。したがって、有機 E L 発光体構造は、これらを挟む 2 つの電極層のうち、基板側がプラス、基板から遠い側がマイナスとなるように電圧が印加される状態で発光し、基板側がマイナス、基板から遠い側がプラスとなるように電圧が印加される状態では発光しない。

30

【 0 0 2 3 】

また、基板側から電子が注入され、基板から遠い側からホールが注入される構成とすることもできる。この場合も有機 E L 発光体構造のバイアス方向が同一であって、電極層のうち基板側をマイナス、基板から遠い側をプラスとなるように電圧を印加すると発光し、基板側をプラス、基板から遠い側をマイナスとなるように電圧を印加すると発光しない。

40

【 0 0 2 4 】

基板側から数えて奇数番目に成膜された電極層群 ( ( 1 ) 第 1 電極層、( 3 ) 第 3 電極層、..... ) は互いに等電位となるように導通している。同様に、基板側から数えて偶数番目に成膜された電極層群 ( ( 2 ) 第 2 電極層、( 4 ) 第 4 電極層、..... ) は互いに等電位となるように導通している。

【 0 0 2 5 】

これら 2 つの電極層群の間に交流電圧が印加されると、奇数番目に成膜される有機 E L 発光体構造群 ( ( 1 ' ) 第 1 有機 E L 発光体構造、( 3 ' ) 第 3 有機 E L 発光体構造・..... ) と、偶数番目に成膜される有機 E L 発光体構造群 ( ( 2 ' ) 第 2 有機 E L 発光体構

50

造、(4')第4有機EL発光体構造、・・・)と、が交互に発光する。

【0026】

nが8の場合の有機エレクトロルミネッセント素子1の例を図1に示す。この有機エレクトロルミネッセント素子1においては、基板10上に、第1電極層11a、第1有機EL発光体構造11b、第2電極層12a、第2有機EL発光体構造12b、第3電極層13a、第3有機EL発光体構造13b、第4電極層14a、第4有機EL発光体構造14b、第5電極層15a、第5有機EL発光体構造15b、第6電極層16a、第6有機EL発光体構造16b、第7電極層17a、第7有機EL発光体構造17b、第8電極層18a、という順序で、電極層と有機EL発光体構造が交互に成膜されている。

【0027】

基板10から数えて奇数番目に成膜される電極層群(第1電極層11a、第3電極層13a、第5電極層15a、及び第7電極層17a)は、互いに等電位となるように導通し、交流電源19に接続されている(図1の実線)。同様に、基板10から数えて偶数番目に成膜される電極層群(第2電極層12a、第4電極層14a、第6電極層16a、及び第8電極層18a)は、互いに等電位となるように導通し、交流電源19に接続されている(図1の点線)。

【0028】

有機EL発光体構造11b~17bは、基板側からホールが注入され、基板から遠い側から電子が注入されるように配置されている(バイアス方向が同一である)。したがって、有機EL発光体構造11b~17bは、これらを挟む2つの電極層のうち、基板10側がプラス、基板10から遠い側がマイナスとなるように電圧が印加される状態で発光し、基板10側がマイナス、基板10から遠い側がプラスとなるように電圧が印加される状態では発光しない。

【0029】

このような構成の有機エレクトロルミネッセント素子1に、交流電源19により、上記奇数番目に成膜される電極層群と偶数番目に成膜される電極層群との間に交流電圧を印加すると、奇数番目に成膜された有機EL発光体構造群(有機EL発光体構造11b、13b、15b、17b)と、偶数番目に成膜された有機EL発光体構造群(有機EL発光体構造12b、14b、16b)と、が交互に発光する。

【0030】

ここで、電極層11a~18aのすべてが透明電極で構成され、基板10がガラス基板のように透明であれば、有機EL発光体構造11b~17bも透明であるため、基板10側及び第8電極層18a側のいずれからでも発光を得ることが出来る。一方、第1電極層11aもしくは第8電極層18aのどちらかを不透明電極(金属からなる光反射電極を含む)とし、第2電極層12a~第7電極層17aを透明電極で構成すると、有機EL発光体構造11b~17bから出射された光は、基板10側と第8電極層18a側の一方から出射することが出来る。不透明電極は、第1電極層11a~18aのいずれであってもよい。

【0031】

有機EL発光体構造11b~17bは、前記KODAK社の特許文献等に見られる典型的な構造、すなわち「陽極/ホール輸送層/発光層/電子輸送層/陰極」を代表とする有機EL発光ユニット(陰極と陽極に挟まれた「ホール輸送層/発光層/電子輸送層」の層構造部分)が1個のみからなる構造であっても良いし、本出願人らが提案してきた前述のいわゆるMPE(マルチフォトンエミッション)有機EL素子構造のように、複数の有機EL発光ユニット(従来型有機ELにおいて陰極と陽極に挟まれた「ホール輸送層/発光層/電子輸送層」の層構造部分)が、絶縁性の(すなわちフローティング状態の)CGL(Charge Generation Layer:電荷発生層)を介して順次積層されて、複数の有機EL発光ユニットが同時に発光する構造であっても良い。

【0032】

本発明の交流駆動型の有機EL素子は、照明光源や表示ディスプレイ等に好適に使用で

10

20

30

40

50



きる。特に照明光源分野においては、商用電源が交流電源であることを鑑みれば、インバータを使用せずに、駆動出来る本発明の構造の優位性は明らかである。ただし、使用する周波数は、その用途に合わせて適宜変更して使用することが望ましい。

#### 【実施例】

#### 【0033】

以下に実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではなく、従来有機EL素子の作製に使用されている公知の材料を適宜用いることができる。

有機物、金属酸化物、金属、及び、ITO透明電極の成膜には、日本ビーテック製真空蒸着機、または、FTSコーポレーション製スパッタリング装置を使用した。蒸着物質の成膜速度や膜厚の制御は、蒸着機に取り付けられている、水晶振動子を使用した成膜モニターCRTM-8000(ULVAC(日本真空社製))を使用した。また、成膜後の実質膜厚の測定には、テンコール(Tencor)社製P-10触針式段差計を用いた。素子の特性評価には、ケースレイ(KEITHLEY)社ソースメータ2400、トプコン(TOPCON)BM-8輝度計を使用した。交流電圧は50Hzのスライド式電圧調整器(スライダック)を用いて制御した。また、EL素子の発光スペクトルは、浜松フotonixPMA-11オプティカルマルチチャンネルアナライザーを使用して定電流駆動し測定した。

#### 【0034】

##### <実施例1>

実施例1は、本発明の交流駆動の有機EL素子の構造の中でも、最も単純な構造(電極層数:n=3)を有していて、かつ、本発明の構造の動作原理を最も単純に具現化したものである。

#### 【0035】

実施例1の交流駆動の有機エレクトロルミネッセント素子20は図2に示す積層構造を有する。この有機エレクトロルミネッセント素子20は、ガラス基板21と第3電極層26との間に、ガラス基板21側から第1電極層22、第1有機EL発光体構造23、第2電極層24及び第2有機EL発光体構造25を積層してなるものである。

#### 【0036】

図3に示されるように、3cm角のガラス基板21上に、第1電極層22として、シート抵抗10 $\Omega$ /sqのITO(インジウムスズ酸化物、日本板硝子製)が2mm幅にパターンニングされてコートされている。この基板21をIPA(イソプロピルアルコール)、純水によって入念に洗浄した後、UVオゾン装置(サムコインターナショナル製:UV-300)によってドライ洗浄する。その後、図4(a)に示す有機EL発光体構造用エリア規制マスク31を使用して、図2に示される第1有機EL発光体構造23の有機膜を形成する。有機EL発光体構造用エリア規制マスク31には、中央部に矩形の開口部31aが設けられ、開口部31aの周囲が遮蔽部31bとなっている。

#### 【0037】

第1有機EL発光体構造23の各層の形成は次のように行う。まず、ホール注入層23aとして、第1電極層22上に、アリアルアミン化合物である出光興産(株)製のHI-406(分子構造は明らかにされていない)を800 $\text{\AA}$ の厚さで成膜する。次に、ホール輸送層23bとして、アリアルアミン化合物である出光興産(株)製のHT-320(分子構造は明らかにされていない)を200 $\text{\AA}$ の厚さで成膜する。さらに、発光層23cとして、出光興産(株)製のオレンジ発光材料RD-001X(分子構造は明らかにされていない)と出光興産(株)製発光層ホスト材料BH-140(分子構造は明らかにされていない)を、RD-001Xが4wt.%となるように共蒸着によって500 $\text{\AA}$ の厚さで成膜する。

#### 【0038】

次に、電子輸送層23dとして、下記式

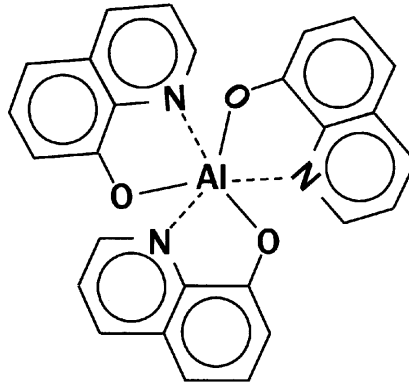
10

20

30

40

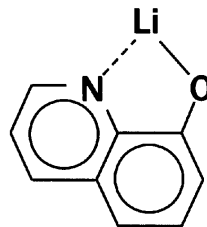
## 【化 3】



10

で示されるトリス(8-キノリノラト)アルミニウム錯体(以下「Alq」という)を100の厚さで成膜する。最後に、電子注入層23eとして、本出願人らが特開2000-182774号公報(米国特許第6396209号明細書、欧州特許第1011155B1号)等で開示した「(その場)熱還元反応生成層」を形成するために、前述のAlqと下記式

## 【化 4】



20

で示される(8-キノリノラト)リチウム錯体(以下、「Liq」という)を、モル比率で1:1となるように、共蒸着の手法で50の厚さで成膜した後、熱還元性金属としてAlを用い、厚さ15に相当する量を、Alq:Liqの共蒸着層の上に蒸着して「(その場)熱還元反応生成層」(不図示)を形成する。このようにして第1有機EL発光体構造23が形成される。この第1有機EL発光体構造23の構造の簡便な表記は、HI-406/HT-320/RD-001X: BH-140/Alq/Alq: Liq + Alとなる。

30

## 【0039】

次に、第2電極層24として、図4(b)に示す、第2電極層用エリア規制マスク(偶数番電極層用エリア規制マスク)32を使用して、IZO(Indium Zinc Oxide)を、本出願人らが特開2002-332567号公報で開示したスパッタリング法を用いて1000の厚さで成膜する。第2電極層用エリア規制マスク32には、対向する2辺から中央部へ向かってそれぞれ延びる長方形の開口部32aが、当該2辺から互いに平行に2本ずつ設けられ、開口部32a以外の部分は遮蔽部32bとなっている。この第2電極層用エリア規制マスク32は、電極層の数を4以上とした場合には、基板から数えて偶数番目に配置される電極の形成に使用される。

40

## 【0040】

この第2電極層24の上には、図4(a)に示す有機EL発光体構造用エリア規制マスク31を使用して、図2に示される第2有機EL発光体構造25の有機膜が形成される。

## 【0041】

第2有機EL発光体構造25の各層の形成は次のように行う。まず、第1ホール注入層25aは、本出願人らが、特願2003-358402号公報で開示した技術を用いて形成する。すなわち、HI-406と5酸化バナジウム( $V_2O_5$ )の混合膜を共蒸着の手法を

50

用い、モル比率 1 : 1 で 100 の厚さで成膜する。この第 1 ホール注入層 25 a は、第 2 電極層 24 を構成する IZO からエネルギー障壁なく（オーミックに）ホールが注入可能となるように導入されている。

#### 【0042】

次に、第 2 ホール注入層 25 b として、HI - 406 を 1400 の厚さで成膜する。さらに、ホール輸送層 25 c として、HT - 320 を 200 の厚さで成膜する。このホール輸送層 25 c の上には、発光層 25 d として、出光興産（株）製の青色発光材料 BD - 102（分子構造は明らかにされていない）と発光層ホスト材料 BH - 140 を、BD - 102 が 4 wt. % となるように共蒸着によって 400 の厚さで成膜する。次に、第 1 有機 EL 発光体構造 23 と同様に、電子輸送層 25 e として Alq を 100 の厚さで成膜し、最後に電子注入層 25 f として、Alq : Liq の共蒸着膜からなる層を 50 の厚さで成膜する。

#### 【0043】

このように形成した第 2 有機 EL 発光体構造 25 の上には、熱還元性金属と「第 3 電極層」を兼ねる材料としてとして Al を用い、図 4（c）に示す第 3 電極層用エリア規制金属マスク（奇数番電極層用エリア規制金属マスク）33 を使用して、Alq : Liq の共蒸着層の上に 1000 の厚さで蒸着し「（その場）熱還元反応生成層」（不図示）と第 3 電極層 26 を同時に形成する。第 3 電極層用エリア規制金属マスク 33 には、中央部において互いに平行に配置された長方形の開口部 33 a が 2 組設けられ、開口部 33 a 以外の部分は遮蔽部 33 b となっている。この第 3 電極層用エリア規制金属マスク 33 は、電極層の数を 4 以上とした場合には、基板から数えて奇数番目に配置される電極の形成に使用される。

#### 【0044】

以上の結果として、以下に簡便に表記される、図 2 の構造の素子が完成する。

ITO / HI - 406 / HT - 320 / RD - 001X : BH - 140 / Alq / Alq : Liq + Al / IZO / V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> : HI - 406 / HI - 406 / HT - 320 / BD - 102 : BH - 140 / Alq / Alq : Liq / Al

ここで、「V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> : HI - 406 / HI - 406 / HT - 320 / BD - 102 : BH - 140 / Alq / Alq : Liq」の部分が第 2 有機 EL 発光体構造 25 である。

#### 【0045】

この有機エレクトロルミネッセント素子 20 の第 3 電極層第 3 電極層 26 は、図 5 及び図 6 に示されるとおり、ガラス基板 21 を上方から見て第 1 電極層 22 と略同エリアに成膜され、端部が互いに接触している。よって、これらの奇数番電極層（第 1 電極層 22 と第 3 電極層 26）は等電位となっている。この有機エレクトロルミネッセント素子 20 では、第 1 電極層 22 と第 2 電極層 24、及び第 2 電極層 24 と第 3 電極層 26 にそれぞれ挟まれた部分 29 が発光する。

#### 【0046】

##### < 測定例 >

実施例 1 の有機エレクトロルミネッセント素子 20 に直流電圧又は交流電圧を印加したときの測定条件及び結果について説明する。

まず、上述のように互いに等電位である第 1 電極層 22 及び第 3 電極層 26 を陽極（+）に、第 2 電極層 24 を陰極（-）にバイアスして、直流電圧を印加して、第 1 有機 EL 発光体構造 23 のみの発光（諸）特性を計測した。この条件では、第 2 有機 EL 発光体構造 25 には逆バイアスが印加されることになるので発光しない。このときの第 1 有機 EL 発光体構造 23 の特性を図 7、図 8 のプロットで示す。また、第 1 有機 EL 発光体構造 23 からの発光のスペクトル（直流電流密度 10 mA / cm<sup>2</sup>、8.0 V）を図 10 の一点鎖線で示す。なお、この発光スペクトルの測定に要する積算時間は 0.2 秒程度に設定されている。さらに、このときの第 1 有機 EL 発光体構造 23 の発光状況を図 11（写真）及び図 12（発光部分 43）に示す。

#### 【0047】

次に、第 1 電極層 2 2 及び第 3 電極層 2 6 を陰極 ( - ) に、第 2 電極層 2 4 を陽極 ( + ) にバイアスして、直流電圧を印加して、第 2 有機 E L 発光体構造 2 5 のみの発光 ( 諸 ) 特性を計測した。なお、この条件では、第 1 有機 E L 発光体構造 2 3 には逆バイアスが印加されることになるので発光しない。このときの第 2 有機 E L 発光体構造 2 5 の特性を図 7、図 8 の プロットで示す。また、第 2 有機 E L 発光体構造 2 5 からの発光のスペクトル ( 直流電流密度  $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ 、 $8.3 \text{ V}$  ) を図 1 0 の点線で示す。このときの第 2 有機 E L 発光体構造 2 5 の発光状況を図 1 1 及び図 1 2 ( 発光部分 4 5 ) に示す。

【 0 0 4 8 】

さらに、実施例 1 の有機エレクトロルミネッセント素子 2 0 を交流駆動して、第 1 有機 E L 発光体構造 2 3 と第 2 有機 E L 発光体構造 2 5 を交互に光らせたときの測定について

10

説明する。  
この測定では、互いに等電位である第 1 電極層 2 2 及び第 3 電極層 2 6 と、第 2 電極層 2 4 の間に、交流電源 2 7 により  $50 \text{ Hz}$  の交流電圧を印加して各実効電圧毎に輝度を測定した ( 図 9 )。図 1 0 の実線は、本発明の交流駆動有機 E L 素子の、交流実効電圧  $10 \text{ V}$  印加時における発光スペクトルを示す。この発光スペクトルの測定に要する積算時間は  $0.2$  秒程度に設定されている。このときの発光状況を図 1 1 及び図 1 2 ( 発光部分 4 7 ) に示す。

【 0 0 4 9 】

図 1 0 に示す発光スペクトルや図 1 1 の発光状況から明らかなように、交流駆動時には、オレンジ色発光の第 1 有機 E L 発光体構造 2 3 と青色発光の第 2 有機 E L 発光体構造 2

20

【 0 0 5 0 】

本実施例は、意図的に互いに発光色の異なる有機 E L 発光体構造を使用したか、勿論、互いに同一の発光スペクトルを有する有機 E L 発光体構造を使用しても、本来の目的である、人間の目にはちらつきを感じない間断なく連続して発光可能な交流駆動有機 E L 素子を作製出来る。

【 0 0 5 1 】

本発明について上記実施形態を参照しつつ説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、改良の目的または本発明の思想の範囲内において改良または変更が可能である。

30

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 5 2 】

【 図 1 】 本発明の実施形態に係る有機エレクトロルミネッセント素子の構成を示す概念図である。

【 図 2 】 本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の構成を示す概念図である。

【 図 3 】 本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の基板上における第 1 電極層の配置を示す平面図である。

40

【 図 4 】 本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の製造に用いるマスクの構成を示す平面図であって、( a ) は有機 E L 発光体構造用エリア規制マスクを、( b ) は偶数番電極層用エリア規制マスクを、( c ) は奇数番電極層用エリア規制金属マスクを示す。

【 図 5 】 本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の構成を示す平面図である。

【 図 6 】 図 5 の V I - V I 線に沿った断面図である。

【 図 7 】 本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の第 1 有機 E L 発光体構造及び第 2 有機 E L 発光体構造の直流電圧 ( V ) - 電流密度 (  $\text{mA} / \text{cm}^2$  ) 特性を示す図である。

50

【図 8】本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の第 1 有機 E L 発光体構造及び第 2 有機 E L 発光体構造直流電圧 ( V ) - 輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) 特性を示す図である。

【図 9】本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の交流 ( 5 0 H z ) 実効電圧 - 輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) 特性を示す図である。

【図 1 0】本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の第 1 有機 E L 発光体構造、第 2 有機 E L 発光体構造及び有機エレクトロルミネッセント素子の発光スペクトルを示す図である。

【図 1 1】本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の発光状況を示した写真である。

10

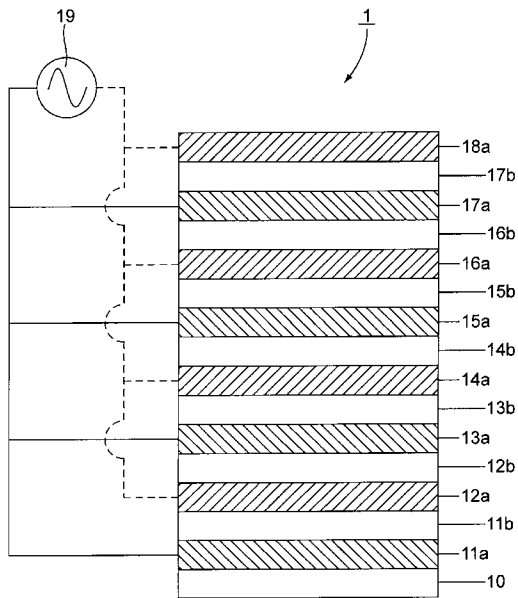
【図 1 2】本発明の実施例 1 に係る有機エレクトロルミネッセント素子の構成を図 1 1 に対応させて示した平面図である。

【符号の説明】

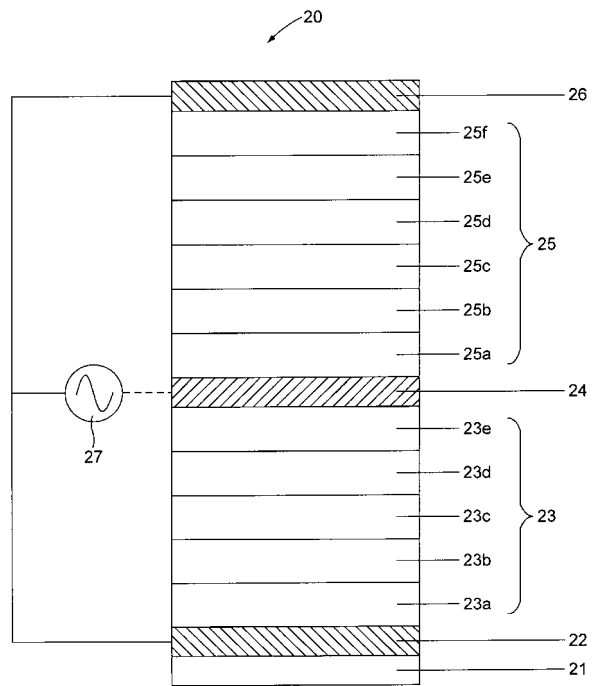
【 0 0 5 3 】

1	有機エレクトロルミネッセント素子	
1 0	基板	
1 1 a	第 1 電極層	
1 1 b	第 1 有機 E L 発光体構造	
1 2 a	第 2 電極層	
1 2 b	第 2 有機 E L 発光体構造	20
1 3 a	第 3 電極層	
1 3 b	第 3 有機 E L 発光体構造	
1 4 a	第 4 電極層	
1 4 b	第 4 有機 E L 発光体構造	
1 5 a	第 5 電極層	
1 5 b	第 5 有機 E L 発光体構造	
1 6 a	第 6 電極層	
1 6 b	第 6 有機 E L 発光体構造	
1 7 a	第 7 電極層	
1 7 b	第 7 有機 E L 発光体構造	30
1 8 a	第 8 電極層	
1 9	交流電源	
2 0	有機エレクトロルミネッセント素子	
2 1	ガラス基板 ( 基板 )	
2 2	第 1 電極層	
2 3	第 1 有機 E L 発光体構造	
2 4	第 2 電極層	
2 5	第 2 有機 E L 発光体構造	
2 6	第 3 電極層	
2 7	交流電源	40
3 1	有機 E L 発光体構造用エリア規制マスク	
3 2	第 2 電極層用エリア規制マスク ( 偶数番電極層用エリア規制マスク )	
3 3	第 3 電極層用エリア規制金属マスク ( 奇数番電極層用エリア規制金属マスク )	

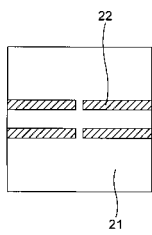
【図 1】



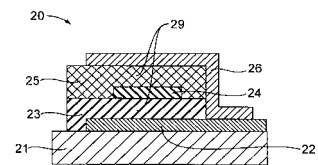
【図 2】



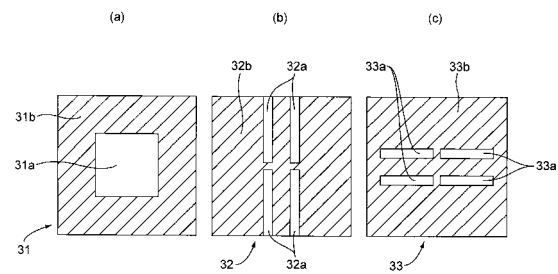
【図 3】



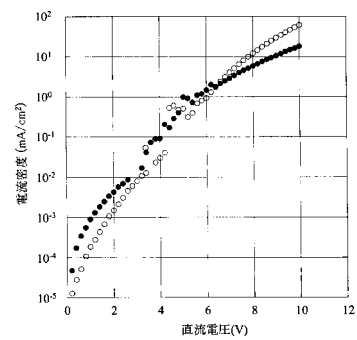
【図 6】



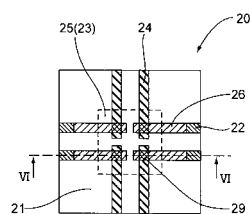
【図 4】



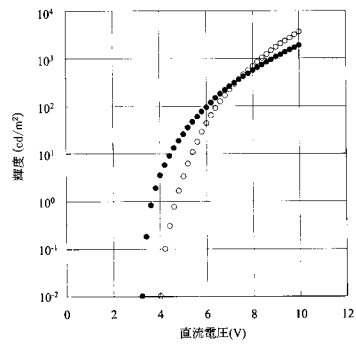
【図 7】



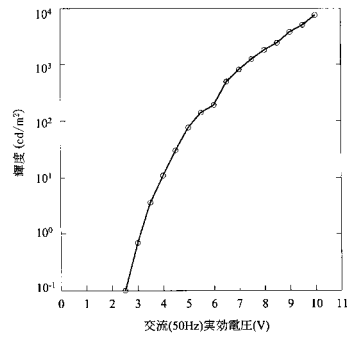
【図 5】



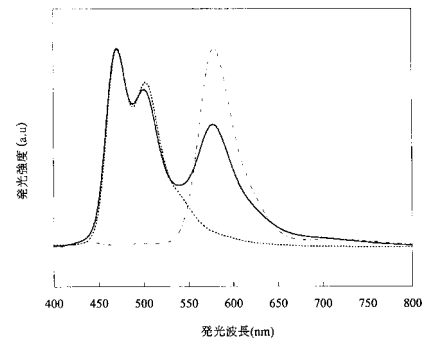
【図 8】



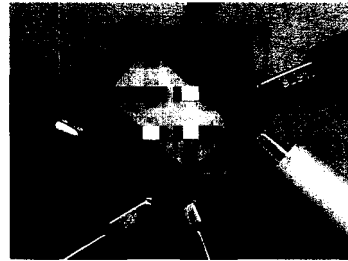
【図 9】



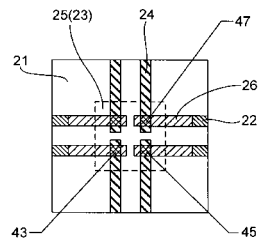
【図 10】



【図 11】



【図 12】



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2003-303683(JP,A)  
特開2001-203077(JP,A)  
特開2003-272860(JP,A)  
特開2005-174639(JP,A)  
特開2004-170487(JP,A)  
特開平11-312584(JP,A)  
特開平09-199276(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
H05B 33/12  
H01L 51/50