

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5824678号
(P5824678)

(45) 発行日 平成27年11月25日 (2015.11.25)

(24) 登録日 平成27年10月23日 (2015.10.23)

(51) Int.Cl.	F I
H05B 33/02 (2006.01)	H05B 33/02
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A
G02B 5/02 (2006.01)	G02B 5/02 B

請求項の数 5 (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2011-83316 (P2011-83316)	(73) 特許権者	314012076
(22) 出願日	平成23年4月5日 (2011.4.5)		パナソニックIPマネジメント株式会社
(65) 公開番号	特開2012-221604 (P2012-221604A)		大阪府大阪市中央区城見2丁目1番61号
(43) 公開日	平成24年11月12日 (2012.11.12)	(74) 代理人	100084375
審査請求日	平成26年1月9日 (2014.1.9)		弁理士 板谷 康夫
		(74) 代理人	100121692
			弁理士 田口 勝美
		(74) 代理人	100125221
			弁理士 水田 慎一
		(74) 代理人	100142077
			弁理士 板谷 真之
		(72) 発明者	北垣 智弘
			大阪府門真市大字門真1048番地 パナソニック電工株式会社内

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ス素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

基板と、

前記基板上に配置された、光の指向性を変更する光取出し層と、

前記光取出し層上に配置された第1の電極層と、

前記第1の電極層上に配置された有機層と、

前記有機層上に配置された第2の電極層と、を備え、

前記基板および前記第1の電極は透光性を有し、

前記光取出し層は、イミド系樹脂及びチオウレタン系樹脂の少なくとも一方を含む母材と、前記母材の屈折率よりも低い屈折率を有して該母材に対して1乃至5重量%の光散乱粒子とを含み、

前記母材と前記第1の電極層との屈折率差は ± 0.2 以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】

前記光散乱粒子の粒径は、 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】

前記光散乱粒子は、長軸方向及び短軸方向において形状が異なる粒子であることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】

10

20

前記光散乱粒子は、その表面に凹凸形状を有することを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記光取出し層を構成する母材の屈折率と、前記光散乱粒子の屈折率との差が、 $0.15 \sim 0.45$ であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 4 のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、光取出し層を有した有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

10

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネッセンス (EL) 素子は、陽極及び陰極で挟持させた発光層が透明基板上に形成されたものであり、電極間に電圧印加されたとき、発光層にキャリアとして注入された電子及びホールの再結合により生成された励起子によって発光する。EL 素子は、発光層の蛍光物質に有機物を用いた有機 EL 素子と、無機物を用いた無機 EL 素子に大別される。特に、有機 EL 素子は、低電圧で高輝度の発光が可能であり、蛍光物質の種類によって様々な発光色が得られ、また、平面状の発光パネルとしての製造が容易であることから、各種表示装置やバックライトとして用いられる。更に、近年では、高輝度に対応したものが実現され、これを照明器具に用いることが注目されている。

20

【0003】

図 3 に一般的な有機 EL 素子の断面構成を示す。有機 EL 素子 101 は、透光性を有する基板 106 上に、透光性を有する陽極層 102 が設けられ、この陽極層 102 の上に、ホール輸送層 142、発光層 141 及び電子輸送層 143 から成る有機層 104 が設けられる。また、有機層 104 上に、光反射性を有する陰極層 103 が設けられる。そして、陽極層 102 と陰極層 103 との間に電圧が印加されることによって、有機層 104 で発光した光は、陽極層 102 及び基板 106 を透過して取り出される。

【0004】

ところで、屈折率の高い媒質から屈折率の低い媒質へ光が伝搬する場合、その界面では媒質間の屈折率により、スネルの法則から臨界角が決定され、その臨界角以上の光は界面で全反射し、屈折率の高い媒質に閉じ込められ、導波光として失われる。ここで、一般的な有機 EL 素子 101 に使用される基板 106 は、透明性、強度、低コスト、ガスバリア層、耐薬品性、耐熱性等の観点から、ガラスが広く用いられており、一般的なソーダライムガラス等の屈折率は 1.52 程度である。一方、陽極層 102 には、酸化インジウムに酸化錫をドーブした酸化インジウム錫 (ITO) や酸化インジウム亜鉛 (IZO) がその優れた透明性と電気伝導性から広く用いられている。これら ITO や IZO の屈折率は、その組成、成膜方法、結晶構造等により変化するが、ITO の屈折率は $1.7 \sim 2.3$ 程度、IZO の屈折率は $1.9 \sim 2.4$ 程度であり、いずれも基板 106 に比べて高い屈折率を持つ。

30

【0005】

また、有機層 104 に用いられる発光層 141、ホール輸送層 142、電子輸送層 143 等を構成する発光材料等の各材料の屈折率は、 $1.6 \sim 2.0$ 程度のものが多い。つまり、一般的な有機 EL 素子 101 においては、各層の屈折率の大小関係は、大気 < 基板 < 有機層 < 陽極となる。そのため、有機 EL 素子 101 の発光層 141 の発光源から出射した光のうち、基板 6 と素子外 (大気) の界面及び陽極 1 と基板 6 の界面に、大きな入射角で入射した光は、それらの界面で全反射するので、有効光として素子外に取り出されないことがある。

40

【0006】

そこで、基板 106 と陽極層 102 との間に、それらの光を取り出すために、光散乱機能を有する層等から成る光取出し層を設けることによって、発光層 141 で発光した光の

50

光利用効率を向上させた有機ＥＬ素子が知られている（例えば、特許文献１参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００７】

【特許文献１】特開２００６－２８６６１６

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００８】

ところで、上記特許文献１に記載の有機ＥＬ素子においては、光取出し層の一部として、光散乱粒子を含有する光散乱粒子層を用いている。しかしながら、光散乱粒子層の表面は、光散乱粒子の存在によって凹凸状になっている。この表面が凹凸状であると、陽極、有機層、陰極を均一な厚さで積層できないので、光散乱粒子層の上面側には、その表面を平滑にする平滑化層が形成される。ところが、この平滑化層を光取出し層上に積層すると、光散乱粒子と平滑層との界面に空隙が発生することがあり、この空隙によって光取出し層が十分に機能せず、光取出し効率が低下する虞があった。

10

【０００９】

本発明は、上記課題を解決するものであり、光取出し層を単層とすることができ、また、母材と光散乱粒子との界面における空隙の発生を抑制して、光取出し効率を向上させることができる有機ＥＬ素子を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

20

【００１０】

上記課題を解決するため、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、基板と、前記基板上に配置された、光の指向性を変更する光取出し層と、前記光取出し層上に配置された第１の電極層と、前記第１の電極層上に配置された有機層と、前記有機層上に配置された第２の電極層と、を備え、前記基板および前記第１の電極は透光性を有し、前記光取出し層は、イミド系樹脂及びチオウレタン系樹脂の少なくとも一方を含む母材と、前記母材の屈折率よりも低い屈折率を有して該母材に対して１乃至５重量％の光散乱粒子とを含み、前記母材と前記第１の電極層との屈折率差は±０．２以下であることを特徴とする。

【００１１】

30

上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記光散乱粒子の粒径は、０．１～１０μmであることが好ましい。

【００１２】

上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記光散乱粒子は、長軸方向及び短軸方向において形状が異なる粒子であることが好ましい。

【００１３】

上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記光散乱粒子は、その表面に凹凸形状を有することが好ましい。

【００１４】

上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記光取出し層を構成する母材の屈折率と、前記光散乱粒子の屈折率との差が、０．１５～０．４５であることが好ましい。

40

【発明の効果】

【００１６】

本発明によれば、光取出し層は、母材に対して１乃至５重量％の光散乱粒子とを含むので、単層でも十分な光取出し効率を向上させることができる。また、光散乱粒子が１乃至５重量％であれば、光散乱粒子母材と光散乱粒子との界面における空隙を発生し難くすることができ、光取出し効率を更に向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【００１７】

【図１】本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の側断面図。

50

【図 2】(a) は同有機エレクトロルミネッセンス素子において、基板上に、母材に対して 5 重量 % の光散乱粒子を添加して作製された光取出し層の表面の顕微鏡写真を示す図、(b) は母材に対して 7.5 重量 % の光散乱粒子を添加して作製された光取出し層の表面の顕微鏡写真を示す図。

【図 3】従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の側断面図。

【発明を実施するための形態】

【0018】

本発明の一実施形態に係る有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機 EL 素子）について、図 1 を参照して説明する。本実施形態の有機 EL 素子 1 は、第 1 の電極層 2 及び第 2 の電極層 3 の間に設けられた有機層 4 と、第 1 の電極層 2 及び第 2 の電極層 3 の少なくとも一方の表面に設けられ、光の指向性を変更する光取出し層 5 と、光取出し層 5 上に設けられた基板 6 と、を備える。この構成において、第 1 の電極層 2 は、ホール輸送層 4 2 に正孔を供給する陽極として機能し、第 2 の電極層 3 は、発光層 4 1 に電子を注入する陰極として機能する。また、第 1 の電極層 2 及び基板 6 は透光性を有し、第 2 の電極層 3 は光反射性を有する。なお、本例では、第 1 の電極層 2 の一方の表面に光取出し層 5 が設けられた構成を示す。このように構成された有機 EL 素子 1 においては、第 1 の電極層 2 及び第 2 の電極層 3 の間に電圧が印加されることによって、有機層 4 の発光層 4 1 で発光した光が、第 1 の電極層 2 及び基板 6 を透過して素子外に取り出される。

【0019】

なお、有機層 4 は、発光材料を含む発光層 4 1 に加えて、第 2 の電極層 3 と発光層 4 1 との間に設けられた電子輸送層 4 3 と、第 1 の電極層 2 と発光層 4 1 との間に設けられたホール輸送層 4 2 とを備えた構成を示しているが、この構成に限られない。また、発光層 4 1 としては、複数の発光層が積層されたものであってもよい。

【0020】

基板 6 には、例えば、ソーダライムガラスや無アルカリガラス等の透明ガラス板や、ポリエステル、ポリオレフィン、ポリアミド、エポキシ等の樹脂、フッ素系樹脂等から任意の方法によって作製されたプラスチックフィルムやプラスチック板等が用いられる。また、基板 6 は、鉛等の重金属を混合したガラスであってもよく、任意のものをを用いることができる。

【0021】

光取出し層 5 は、この光取出し層 5 を構成する母材 5 0 に対して 1 乃至 5 重量 % の光散乱粒子 5 1 を混合した組成物から形成される。母材 5 0 としては、透光性に優れ、光取出し層 5 と接する第 1 の電極層 2 又は第 2 の電極層 3 と同等の屈折率を有する材料が好適に用いられ、例えば、イミド系樹脂、チオウレタン系樹脂等が用いられる。光散乱粒子 5 1 としては、シリカやアルミナ等の透光性微粒子が用いられる。光散乱粒子 5 1 の濃度が 1 重量 % 未満であると、十分な光取出し効果を得られなくなる。

【0022】

一方、光散乱粒子 5 1 の濃度が 5 重量 % を越えると、光取出し層 5 に接する基板 6 に亀裂が発生する虞がある。ここで、母材 5 0 となるイミド系樹脂に対して 5 重量 % 又は 7.5 重量 % の光散乱粒子 5 1 を分散させ、ガラス製の基板 6 に塗布、乾燥することで光取出し層 5 を作製し、その表面の顕微鏡写真を、夫々図 2 (a) (b) に示す。なお、母材 5 0 及び光散乱粒子 5 1 には、OPTIMATE 製のイミド系樹脂及び GE 東芝シリコン製のメチルシリコン粒子（粒子径 2 μm ）を用いた。

【0023】

図 2 (b) に示すように、母材 5 0 に対して 7.5 重量 % の光散乱粒子 5 1 を添加した光取出し層は、図 2 (b) に示すように、基板 6 の表面に亀裂が発生した。この亀裂は、短絡の要因となり、デバイスの信頼性を低下させる。これに対して、母材 5 0 に対して 5 重量 % の光散乱粒子 5 1 を添加した光取出し層 5 は、図 2 (a) に示すように、基板 6 の表面に亀裂が発生することはなかった。

【0024】

10

20

30

40

50

光散乱粒子 5 1 の粒径は、 $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$ であることが好ましい。光散乱粒子 5 1 の粒径が $0.05 \mu\text{m}$ 未満であると、光を散乱させる効果を十分に得ることができず、光取出し効率を十分に高めることができない。一方、光散乱粒子 5 1 の粒径が $10 \mu\text{m}$ を越えると、光取出し層 5 の基板 6 とは反対側の表面における平坦性が悪くなる虞がある。

【0025】

光散乱粒子 5 1 の形状は、球形等のような等形状であってもよいが、長軸方向及び短軸方向において形状が異なる粒子であることが好ましい。光散乱粒子 5 1 は、異形状であると、その長軸方向が光取出し層 5 の膜厚方向に対して種々な角度及び方向に配列し、光散乱粒子 5 1 による光の散乱効果を向上させることができる。

【0026】

基板 6 の表面に、異形状の光散乱粒子 5 1 を用いて光取出し層 5 を塗布により形成したとき、光散乱粒子 5 1 は、特別な処理等を行わない限り、その長軸方向が、基板 6 の表面と平行等一方向に規則的に配列することはなく、不規則な方向に配列される。そのため、異形状の光散乱粒子 5 1 は、真球状の光散乱粒子 5 1 よりも、あらゆる方向への光の散乱効果を高くすることができる。従って、光取出し層 5 に、長軸方向と短軸方向を有する異形状の光散乱粒子 5 1 を用いることによって、正面取出し光の低減を抑えつつ、斜め方向の光を散乱させることができ、光取出し効率をより向上させることができる。

【0027】

ここで、光散乱粒子 5 1 の長軸方向と短軸方向とは必ずしも直交している必要はなく、長軸方向と短軸方向とが任意の角度である異形状であってもよい。また、この異形状の光散乱粒子 5 1 の長軸方向の粒径や、短軸方向の粒径は、上述したように、 $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。また、長軸方向と短軸方向の粒径の差は、短軸方向の粒径を 1 として、長軸方向の粒径が $1.2 \sim 5$ の範囲であることが好ましい。長軸方向の粒径が 5 を超えると、光取出し層 5 の基板 6 とは反対側の表面における平坦性が悪くなる虞があるので好ましくない。

【0028】

また、光散乱粒子 5 1 の表面は、平坦であってもよいが、凹凸形状を有するものが好ましい。光散乱粒子 5 1 の表面が、凹凸形状を有していると、表面が平坦な場合に比べて、光の散乱効果を高くことができ、光取出し効率をより向上させることができる。

【0029】

光散乱粒子 5 1 は、その屈折率が光取出し層 5 を構成する母材 5 0 の屈折率よりも小さくなるものが用いられる。こうすれば、母材 5 0 に入射した光を、光散乱粒子 5 1 の表面で全反射させて、様々な方向に散乱させることができる。

【0030】

また、光取出し層 5 を構成する母材 5 0 の屈折率と、光散乱粒子 5 1 の屈折率との差は、 $0.15 \sim 0.45$ であることが好ましい。この差が 0.15 未満であると、光散乱粒子 5 1 の表面において全反射する光が少なくなり、十分な光散乱機能を得られない。また、母材 5 0 として用いられる透光性樹脂の屈折率が通常 $1.4 \sim 1.8$ 程度であることを鑑みれば、母材 5 0 との屈折率差を 0.45 以上とするような超低屈折率材料を光散乱粒子 5 1 に用いることは容易でない。

【0031】

また、光取出し層 5 の光透過率は、少なくとも 50% 以上であることが好ましく、 80% 以上がより好ましい。また、光取出し層 5 は、第 1 の電極層 2 との界面における全反射が生じ難いように、設計がなされていることが好ましい。つまり、光取出し層 5 の母材 5 0 の屈折率は、第 1 の電極層 2 と同等の屈折率であることが好ましい。ここでいう同等とは、屈折率差が ± 0.2 以下であるものとする。

【0032】

第 1 の電極層 2 は、有機層 4 に対して効率的に正孔を注入できるように、仕事関数の大きい金属、合金、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物から成る電極材料を用いることが好ましく、仕事関数が 4 eV 以上のものを用いることが特に好ましい。このような第 1

10

20

30

40

50

の電極層 2 の材料としては、例えば、金等の金属、CuI、ITO（インジウム - スズ酸化物）、SnO₂、ZnO、IZO（インジウム - 亜鉛酸化物）、GZO（ガリウム - 亜鉛酸化物）等、PEDOT、ポリアニリン等の導電性高分子及び任意のアクセプタ等でドーピングした導電性高分子、カーボンナノチューブ等の導電性透光性材料を挙げることができる。第 1 の電極層 2 は、上述した電極材料を、例えば、基板 6 の表面に真空蒸着法やスパッタリング法、塗布等の方法により薄膜に形成することによって作製することができる。第 2 の電極層 3 の透過率は、70% 以上であることが好ましい。また、第 2 の電極層 3 のシート抵抗は、数百 / 以下であることが好ましく、100 / 以下であることがより好ましい。第 1 の電極層 2 の膜厚は、材料の導電性等の特性により異なるが、第 1 の電極層 2 の光透過率、シート抵抗等の特性を上記のように制御するためには、500 nm 以下であることが好ましくは、10 ~ 200 nm の範囲に設定されることがより好ましい。また、第 1 の電極層 2 は、リーク電流やショートを防ぐために、光取出し層 5 とは反対側の表面が、高平坦性を有するように構成されていることが好ましい。

【0033】

有機層 4 は、上述したホール輸送層 42、発光層 41 及び電子輸送層 43 が積層されたものであり、発光層 41 上に、適宜に電子輸送層、ホールブロック層又は電子注入層等（不図示）の適宜の有機層が積層されてもよい。また、発光層 41 は、複数層形成されていてもよい。このように、発光層 41 を複数層設ける場合には、その積層数は、多くなるに従って光学的及び電氣的な素子設計の難易度が増すので、5 層以内が好ましく、3 層以内がより好ましい。また、この場合、複数の有機層 4 間に、電荷供給層（不図示）を介在させることが好ましい。この電荷供給層としては、例えば、Ag、Au、Al 等の金属薄膜、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化レニウム、酸化タングステン等の金属酸化物、ITO、IZO、AZO、GZO、ATO、SnO₂ 等の透明導電膜、いわゆる n 型半導体と p 型半導体の積層体、金属薄膜又は透明導電膜と n 型半導体及び / 又は p 型半導体との積層体、n 型半導体と p 型半導体の混合物、n 型半導体又は p 型半導体と金属との混合物等が挙げられる。n 型半導体や p 型半導体としては、無機材料であっても、有機材料であってもよい。更に、有機材料と金属との混合物、有機材料と金属酸化物、有機材料と有機系アクセプタ / ドナー材料、無機系アクセプタ / ドナー材料等の組み合わせによって得られるものであってもよく、これらが適宜に選定して使用される。

【0034】

ホール輸送層 42 は、ホール輸送性を有する化合物の群から適宜に選定される。この種の化合物としては、例えば、4, 4' - ビス [N - (ナフチル) - N - フェニル - アミノ] ビフェニル (NPD)、N, N' - ビス (3 - メチルフェニル) - (1, 1' - ビフェニル) - 4, 4' - ジアミン (TPD)、2 - TNATA、4, 4', 4'' - トリス (N - (3 - メチルフェニル) N - フェニルアミノ) トリフェニルアミン (MTDATA)、4, 4' - N, N' - ジカルバゾールビフェニル (CBP)、スピロ - NPD、スピロ - TPD、スピロ - TAD、TNB 等に代表されるトリアリールアミン系化合物、カルバゾール基を含むアミン化合物、フルオレン誘導体を含むアミン化合物等が挙げられる。なお、上述したものに限らず、一般に知られる任意のホール輸送材料を用いることができる。

【0035】

発光層 41 を構成する有機 EL 材料としては、例えば、アントラセン、ナフタレン、ピレン、テトラセン、コロネン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、トリス (8 - ヒドロキシキノリナート) アルミニウム錯体 (Alq₃)、トリス (4 - メチル - 8 - キノリナート) アルミニウム錯体、トリス (5 - フェニル - 8 - キノリナート) アルミニウム錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、トリ - (p - ターフェニル - 4 - イル) アミン、1 - アリール - 2, 5 - ジ (2 - チエニル) ピロール誘導体、ピラン、キナクリドン、ルブレン、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、ジス

10

20

30

40

50

チリルアミン誘導体及び各種蛍光色素等、前述の材料系及びその誘導体を始めとするものが挙げられるが、これらに限定するものではない。また、これらの化合物のうちから選択される発光材料を適宜混合して用いることが好ましい。また、上記化合物に代表される蛍光色素由来の化合物のみならず、いわゆる燐光発光材料、例えば、Ir錯体、Os錯体、Pt錯体、ユーロピウム錯体等々の発光材料、又はそれらを分子内に有する化合物若しくは高分子も好適に用いることができる。これらの材料は、必要に応じて、適宜選択して用いられる。上述した材料から成る発光層41は、蒸着、転写等乾式プロセスによって成膜されてもよいし、スピコート、スプレーコート、ダイコート、グラビア印刷等、湿式プロセスによって成膜されるものであってもよい。

【0036】

電子輸送層43は、電子輸送性有する化合物の群から適宜に選定された材料から形成される。この種の化合物としては、例えば、Alq₃等の電子輸送性材料として知られる金属錯体や、フェナントロリン誘導体、ピリジン誘導体、テトラジン誘導体、オキサジアゾール誘導体等のヘテロ環を有する化合物等が挙げられる。なお、上述したものに限られず、一般に知られる任意の電子輸送材料を用いることができる。

【0037】

第2の電極層3は、発光層41に対して効率的に電子を注入できるように、仕事関数の小さい金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物から成る電極材料を用いることが好ましく、仕事関数が5 eV以下のものであることが特に好ましい。第2の電極層5を構成する材料としては、アルカリ金属、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ金属の酸化物、アルカリ土類金属等、及びこれらと他の金属との合金等が用いられる。具体的には、アルミニウム(Al)や銀(Ag)、又はこれら金属を含む化合物を用いることができる。また、Alと他の電極材料を組み合わせる積層構造等として構成するものであってもよい。このような電極材料の組み合わせとしては、アルカリ金属とAlとの積層体、アルカリ金属と銀との積層体、アルカリ金属のハロゲン化物とAlとの積層体、アルカリ金属の酸化物とAlとの積層体、アルカリ土類金属や希土類金属とAlとの積層体、これらの金属種と他の金属との合金等が挙げられる。具体的には、例えば、ナトリウム(Na)、Na-カリウム(K)合金、リチウム(Li)、マグネシウム(Mg)等とAlとの積層体、Mg-Ag混合物、Mg-インジウム混合物、Al-Li合金、LiF/Al混合物/積層体、Al/Al₂O₃混合物等が挙げられる。更に、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、又は金属酸化物を第2の電極層3の下地として用い、更に金属等の導電材料を1層以上積層して用いてもよい。これらの例として、例えば、アルカリ金属/Alの積層、アルカリ金属のハロゲン化物/アルカリ土類金属/Alの積層、アルカリ金属の酸化物/Alの積層等が挙げられる。また、上記に列挙したもの以外についても、第2の電極層3(陰極)から発光層41への電子注入を促進させる層、すなわち、電子注入層(不図示)を陰極と発光層の間に挿入させることが好ましい。電子注入層を構成する材料としては、上記第2の電極層3を構成する材料と共通のもの、酸化チタン、酸化亜鉛等の金属酸化物、上記材料を含めて、電子注入を促進させるドーパントを混合した有機半導体材料等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0038】

また、第2の電極層3は、透明電極と光反射性の層との組み合わせによって構成されてもよい。第2の電極層3を透光性の電極として形成する場合には、ITO、IZO等に代表される透明電極にて形成してもよい。また、第2の電極層3の界面の有機物層にリチウム、ナトリウム、セシウム、カルシウム等のアルカリ金属、アルカリ土類金属をドーピングしても良い。

【0039】

第2の電極層3の作製方法としては、例えば、上述した電極材料を真空蒸着法やスパッタリング法、塗布等の方法により、薄膜に形成すること等が挙げられる。第2の電極層5が、光反射性電極である場合には、その反射率は80%以上であることが好ましく、90%以上であることがより好ましい。

10

20

30

40

50

【0040】

また、第2の電極層3が透光性電極である場合には、第2の電極層3の光透過率が70%以上であることが好ましい。この場合の第3の電極層5の膜厚は、第3の電極層5の光透過率等の特性を制御するために、材料により異なるが、500nm以下であることが好ましく、100~200nmの範囲であることが特に好ましい。

【実施例】

【0041】

次に、上述した実施形態の実施例について、比較例と対比しながら具体的に説明する。

【0042】

(実施例1)

まず、光取出し層5の母材50としてイミド系樹脂(OPTIMATE製、HRI1783、 $n_D = 1.78$ 、濃度18%)に対して5重量%となるように光散乱粒子51としてメチルシリコン粒子(粒子径2 μm 、GE東芝シリコン製、トスパール120、 $n_D = 1.45$)を添加してホモジナイザーで分散させてコーティング材組成物を得た。

【0043】

次に、基板6として、厚み0.7mmの無アルカリガラス板(No.1737;コーニング製)を用い、ガラス表面に得られたコーティング材組成物をスピンコートによって1000rpmの条件で塗布、乾燥し、200で30分間焼成することによって熱処理し、厚み約6.5 μm の光取出し層5を設けた。

【0044】

次に、ITO(スズドープ酸化インジウム)ターゲット(東ソー製)を用いてスパッタを行い、150nmのITO膜を形成した。得られたITO層付ガラス基板を、Ar雰囲気下200で1時間アニール処理を行い、シート抵抗18 Ω/\square の第1の電極層2を形成した。第1の電極層2の屈折率を、FilmTek社製SCI3000で測定したところ、 $n_D = 1.78$ であった。

【0045】

このITO付きガラス基板を純水、アセトン、イソプロピルアルコールで各10分間超音波洗浄した後、イソプロピルアルコール蒸気で2分間蒸気洗浄して、乾燥し、更に10分間UVオゾン洗浄した。続いて、このITO層付ガラス基板を真空蒸着装置にセットし、 5×10^{-5} Paの減圧下、4,4'-ビス[N-(ナフチル)-N-フェニル-アミノ]ビフェニル(-NPD)を厚み40nmとなるように蒸着し、第1の電極層2(ITO)上にホール輸送層42を形成した。次いで、ホール輸送層42の上に、Alq3にルブレンを6%ドープした発光層41を厚み30nmにして設けた。更に、電子輸送層43としてTpPyPhBを厚み65nmに成膜した。また、電子注入層(不図示)としてLiFを厚み1nm、第2の電極層3(陰極)としてAlを厚み80nmに成膜して、実施例1の有機EL素子1を作製した。

【0046】

(実施例2)

光散乱粒子51として凸レンズ形状のアクリル樹脂粒子(積水化成品(株)製L-XX-03N、平均粒径5 μm 、 $n_D = 1.5$)を用いた以外は、実施例1と同様にして実施例2の有機EL素子1を作製した。

【0047】

(実施例3)

光散乱粒子51として表面凹凸微粒子(松本油脂製薬(株)製;マツモトマイクロスフェアM、粒径5 μm 、 $n_D = 1.5$)を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子1を作製した。

【0048】

(比較例1)

テトラエトキシシラン86.8gにイソプロピルアルコール803.5gを加え、更にメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン34.7g及び0.1N硝酸75gを加え

10

20

30

40

50

、ディスパーを用いてよく混合することによって組成液を調整した。調整した組成液を 40 恒温槽中で 2 時間攪拌し、重量平均分子量が 1050 のバインダー形成材料としてのシリコンレジン 5 質量%のシリコンレジン溶液 ($n_D = 1.43$) を得た。このシリコンレジン溶液に、メチルシリコン粒子 (粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 、GE 東芝シリコン製、トスパール 120、 $n_D = 1.45$) をメチルシリコン粒子 / シリコンレジン (縮合化合物換算) の固形分質量基準で 80 / 20 となるように添加して、ホモジナイザーで分散させ、メチルシリコン粒子分散シリコンレジン溶液を得た。なお、「縮合化合物換算」とは、テトラアルコキシシランの場合は、存在する Si が SiO_2 であるとした質量、トリアルコキシシランの場合は、 $\text{SiO}_{1.5}$ であるとした質量である。

【0049】

10

次に、基板 6 として厚み 0.7 mm の無アルカリガラス板 (No. 1737、コーニング製) を用い、ガラス表面に得られたコーティング材組成物をスピコートによって 1000 rpm の条件で塗布、乾燥した。塗布、乾燥を 6 回繰り返した後に 200 で 30 分間焼成することによって熱処理を行った。

【0050】

次に、光取出し層に平坦性を付与するために、散乱粒子層付きガラス基板にイミド系樹脂 (OPTIMATE 製、HRI 1783、 $n_D = 1.78$ 、濃度 18%) をスピコートによって 2000 rpm の条件で塗布、乾燥して被膜を形成し、200 で 30 分間焼成することによって熱処理し、厚み約 $4\ \mu\text{m}$ の平坦化層を積層した。上記手順により、光取出し層を作製した以外は、実施例 1 と同様にして比較例 1 の有機 EL 素子を得た。

20

【0051】

(評価試験)

各実施例及び比較例として作製された有機 EL 素子において、電極間に、電流密度が $10\ \text{mA}/\text{cm}^2$ となるように電流を流し、大気放射光を積分球によって計測した。この計測結果に基づいて外部量子効率を算出し、比較例 1 との比を下記の表 1 に示す。

【0052】

【表 1】

	外部量子効率比
実施例 1	1.04
実施例 2	1.14
実施例 3	1.08
比較例 1	1.00

30

【0053】

上記表 1 に見られるように、上述した実施形態に基づいた実施例 1 乃至 3 は、比較例 1 に対して、外部量子効率が向上していることが示された。実施例 1 乃至 3 は、いずれも光取出し層 5 は単層である。つまり、母材 50 と、母材 50 に対して 5 重量%の光散乱粒子 51 とで構成することにより、母材 50 と光散乱粒子 51 との界面に空隙が発生し難くなり、この空隙による光のロスを抑制し、光取出し効率を向上させることができる。なお、上記表 1 には記載していないが、光散乱粒子 51 は、母材 50 に対して 1 重量%以上とすることにより、光取出し効率の向上が確認された。

40

【0054】

実施例 1 乃至 3 は、いずれも光取出し層 5 において平坦化層は形成されていないが、平坦化層が形成されている比較例 1 を上回る外部量子効率が示されている。この結果は、光散乱粒子の粒径を小さく (実質的には $0.1 \sim 10\ \mu\text{m}$) にすれば、光取出し層 5 における第 1 の電極層 5 (又は第 2 の電極層 3) と対向する面の凹凸を少なくすることができ、平坦化層が有る場合と同等以上の発光が可能であることを示す。また、光取出し層 5 の表面の凹凸が少ないと、この光取出し層 5 上に形成された第 1 の電極層 5 も、凹凸が少なく均一な厚さとすることができる。その結果、素子短絡の虞を少なくすることができ、この有機 EL 素子 1 を用いたデバイスの信頼性の向上させることができる。

50

【 0 0 5 5 】

また、実施例 2 において、実施例 1 を上回る外部量子効率が示されている。この結果は、実施例 2 のように、異形状の光散乱粒子 5 1 (凸レンズ形状のアクリル樹脂粒子)を用いることにより、光の散乱効果を向上させることができ、光取出し効率をより向上させられることを示す。また、実施例 3 において、実施例 1 を上回る外部量子効率が示されている。この結果は、実施例 3 のように、表面に凹凸形状を有する光散乱粒子 5 1 を用いることにより、光の散乱効果を向上させることができ、光取出し効率をより向上させられることを示す。

【 0 0 5 6 】

また、実施例 1 乃至 3 は、いずれも光取出し層 5 を構成する母材 5 0 の屈折率と、光散乱粒子 5 1 の屈折率の差が、0.15 以上であり、これに対して、比較例 1 は、屈折率差が 0.15 未満である。そして、実施例 1 乃至 3 は、比較例 1 を上回る外部量子効率が示されている。この結果は、この屈折率差の違いにより、光散乱粒子 5 1 による好適な光散乱特性を得られることを示す。

10

【 0 0 5 7 】

更に、光取出し層 5 を構成する母材 5 0 の屈折率と、第 1 の電極層 2 (陽極)の屈折率とを同等とすることで、第 1 の電極層 2 を透過した光は、光取出し層 5 との界面で全反射することなく、光取出し層 5 に入射し、光散乱粒子 5 1 で散乱させることができる。

【 0 0 5 8 】

なお、本発明は、第 1 の電極層 2 又は第 2 の電極層 3 の少なくとも一方の表面に、母材 5 0 に対して 1 乃至 5 重量%の光散乱粒子 5 1 とを含む光取出し層 5 が設けられたものであれば、上記実施形態に限らず、種々の変形が可能である。例えば、光取出し層 5 を構成する母材 5 0 に、光散乱粒子 5 1 以外の材料が添加されてもよい。また、上述した光取出し層 5 と同様に構成された層が、基板 6 の外側に設けられてもよい。

20

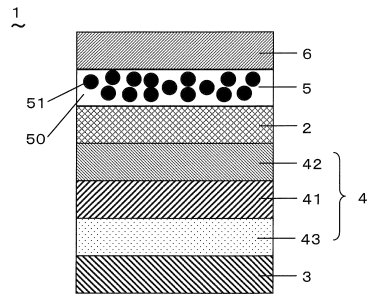
【 符号の説明 】

【 0 0 5 9 】

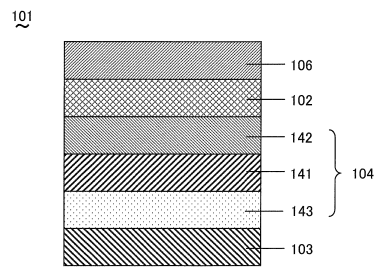
- 1 有機 E L 素子
- 2 第 1 の電極層
- 3 第 2 の電極層
- 4 有機層
- 5 光取出し層
- 5 0 母材
- 5 1 光散乱粒子
- 6 基板

30

【図 1】

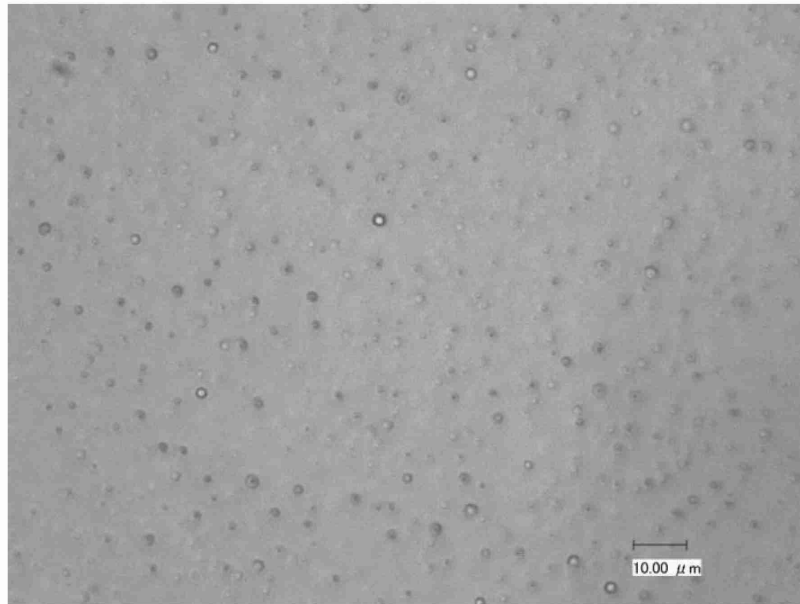


【図 3】

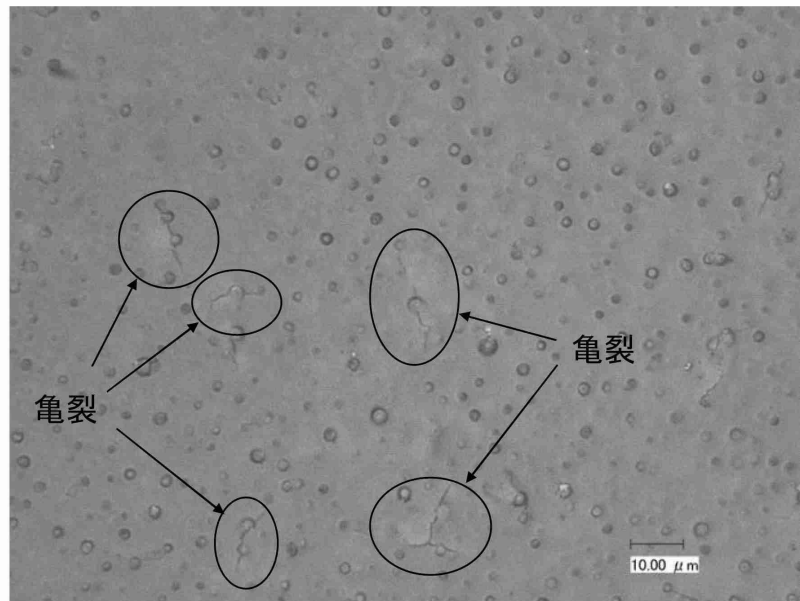


【図 2】

(a)



(b)



フロントページの続き

- (72)発明者 山木 健之
大阪府門真市大字門真１０４８番地 パナソニック電工株式会社内
- (72)発明者 中村 将啓
大阪府門真市大字門真１０４８番地 パナソニック電工株式会社内
- (72)発明者 山名 正人
大阪府門真市大字門真１０４８番地 パナソニック電工株式会社内

審査官 横川 美穂

- (56)参考文献 特開２００９－１１０９３０（ＪＰ，Ａ）
特開２００８－０１６３４７（ＪＰ，Ａ）
特開２０１０－２１８７３８（ＪＰ，Ａ）
特開２００６－２９４４９１（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－１８７８０４（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－００４２７５（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－０７０８１６（ＪＰ，Ａ）

- (58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
- | | |
|---------|-----------|
| H 0 5 B | 3 3 / 0 2 |
| G 0 2 B | 5 / 0 2 |
| H 0 1 L | 5 1 / 5 0 |