

BREVET D'INVENTION**ROYAUME DE BELGIQUE****SPF ECONOMIE, P.M.E.,
CLASSES MOYENNES & ENERGIE****Office de la Propriété intellectuelle****NUMERO DE PUBLICATION : 1020676A3****NUMERO DE DEPOT : 2012/0305****Classif. Internat. : H01L****Date de délivrance le : 04 Mars 2014****Le Ministre de l'Economie,**

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l'arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 08 Mai 2012 à 15H55 à l'Office de la Propriété Intellectuelle

ARRETE:

Article unique.-Il est délivré à : AGC GLASS EUROPE
Chaussée de La Hulpe 166, B-1170 BRUXELLES / WATERMAEL-BOITSFORT(BELGIQUE)

représenté(e)(s) par : LARANGE Françoise, AGC GLASS EUROPE - R&D CENTRE, Rue de l'Aurore 2 - B 6040 Jumet.

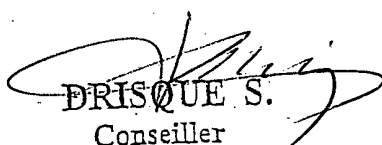
un brevet d'invention d'une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : DISPOSITIF PHOTONIQUE ORGANIQUE.

INVENTEUR(S) : Roquiny Philippe - AGC Glass Europe-R&D Centre, Rue de l'Aurore 2, B-6040 Jumet (BE); Domercq Benoit - AGC Glass Europe-R&D Centre, Rue de l'Aurore 2, B-6040 Jumet (BE)

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Pour expédition certifiée conforme

Bruxelles, le 04 Mars 2014
PAR DELEGATION SPECIALE :


DRISQUE S.
Conseiller
S. DRISQUE
Conseiller**.be**

Dispositif photonique organique

La présente invention a trait à des dispositifs photoniques, en particulier des dispositifs photoniques organiques. Par dispositif photonique, on entend tout type de dispositif pouvant émettre ou collecter de la lumière. De tels dispositifs sont par exemple les dispositifs optoélectroniques tels que les
5 dispositifs organiques électroluminescents connus sous l'acronyme OLED (Organic Light Emitting Device) ou bien les dispositifs collecteurs de lumière tels que les cellules photovoltaïques organiques encore dénommées cellules solaires.

Les dispositifs organiques électroluminescents comprennent généralement un substrat, une électrode disposée sur le substrat pour fournir
10 des charges d'une première polarité, une électrode disposée de l'autre côté du dispositif pour fournir des charges d'une seconde polarité opposée à la première, des couches organiques semi-conductrices transporteuses de charges et des couches électroluminescentes disposées entre les électrodes, et un système d'encapsulation. Les OLED peuvent servir pour l'éclairage, qu'il soit architectural
15 ou décoratif, de type rétro-éclairage, ou pour la signalétique. Des OLED émettant dans le blanc sont généralement préférées pour ces applications.

La présente invention se rapporte plus particulièrement à une électrode transparente pour dispositif électroluminescent organique.

Dans le but de fabriquer un dispositif OLED émettant dans le blanc
20 pour des applications d'éclairage, il est nécessaire de fabriquer une source de lumière avec un rendu de couleur ou CRI (de l'anglais "Color Rendering Index") le plus élevé possible.

L'indice de rendu des couleurs (CRI) est une mesure quantitative de la capacité d'une source de lumière à reproduire fidèlement les couleurs des

différents objets en comparaison avec une source de lumière idéale ou naturelle. Les sources lumineuses avec un CRI élevé sont souhaitables dans la plupart des applications d'éclairage car elles améliorent la perception des nuances de couleur des objets illuminés. L'indice de rendu de couleur est défini par la

5 Commission Internationale de l'Éclairage comme l'effet d'un illuminant sur l'aspect chromatique des objets qu'il éclaire, cet aspect étant comparé consciemment ou non à celui des mêmes objets éclairés par un illuminant de référence, comme défini dans les ouvrages suivants: "CIE 17.4-1987 International Lighting Vocabulary" ou *Nickerson, Dorothy; Jerome, Charles W.*

10 (April 1965), "Color Rendering of light sources: CIE method of specification and its application", Illuminating Engineering (IESNA) 60 (4): 262–271.

Il est connu, pour les OLED, d'utiliser en tant qu'électrode transparente, des couches en oxyde d'indium dopé étain (ITO: Indium Tin Oxide) ou d'autres couches ou multicouches conducteurs (par exemple, une couche

15 d'oxyde d'étain dopé fluor ou un assemblage de couches comprenant une couche métallique à base d'argent). Les multicouches semblables à ceux utilisés dans les empilages sur verre destiné à la gestion thermique des bâtiments, des trains ou de l'automobile peuvent être préférés car ils offrent l'opportunité d'améliorer sensiblement les propriétés de conduction par rapport à des couches

20 d'ITO pour des épaisseurs d'électrodes raisonnables.

Néanmoins, lorsque les multicouches conducteurs comprennent une seule couche métallique à base d'argent, des problèmes de stabilité angulaire de la couleur émise peuvent apparaître. Une solution est alors d'utiliser des multicouches proches des produits antisolaires architecturaux contenant

25 deux couches métalliques à base d'argent comme décrit dans le document WO2009083693. Ce document expose l'utilisation de structures conductrices comprenant deux couches d'argent pour dispositifs OLED. L'utilisation de ce type

de structure dans un dispositif OLED y est décrite comme permettant de limiter la dépendance angulaire du spectre d'émission polychromatique dudit dispositif.

Mais ce concept de stabilisation angulaire est classique pour des couches architecturales et la solution présentée dans ce document n'est pas optimisée pour une utilisation dans un dispositif OLED. Il nous est en effet apparu que l'utilisation de telles couches ne permet pas d'obtenir, pour des dispositifs OLED, des sources de lumière convenables et optimisées, en particulier en termes de rendu de couleur (CRI), notamment avec des "empilements organiques performants classiques". Par "empilement organique performant classique", on entend que la partie organique du dispositif est choisie "épaisse", c'est-à-dire qu'au moins deux des différentes sources émettrices (rouge, vert, bleu, jaune) sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation.

L'objectif de la présente invention est la sélection de structures conductrices comprenant au moins deux couches à base d'argent pour des dispositifs OLED, ladite sélection permettant d'obtenir pour ces dispositifs OLED, la meilleure combinaison possible d'un CRI élevé, d'une luminance élevée (c'est-à-dire une quantité de lumière émise élevée, soit une efficacité élevée), et d'une faible variabilité de couleur selon l'angle d'observation (Delta de couleur).

Le Delta de couleur combine la variation de couleur le long du locus de Planck et orthogonalement à celui-ci. Le locus de Planck regroupe les points d'émission des différentes sources Planckiennes et est donc proche de la majorité des sources blanches standards (par exemple, les illuminants D65, C, A). Pour des dispositifs émettant de la lumière blanche ou quasi-blanche, il est donc judicieux de pénaliser plus fort les écarts de teinte orthogonaux par rapport à cette courbe du locus de Planck car ils s'éloignent du blanc.

Le delta de couleur est ainsi représenté par la formule suivante:

$$\Delta_{col} = \sqrt{\sum_i^n \frac{(x_i - \bar{x})^2}{s_x} + \sum_i^n \frac{(y_i - p_i)^2}{s_y}}$$

$$\begin{aligned} p_i &= p(x_i) = 0.404783758262229 \\ &\quad + 0.290077294746671 * (x_i - 0.443946335246864) \\ &\quad - 2.58208279488139 * (x_i - 0.443946335246864)^2 \\ &\quad - 0.406419069828599 * (x_i - 0.443946335246864)^3 \\ s_x &= 0.0011 * n \\ s_y &= 0.00044 * n \end{aligned}$$

dans laquelle

- n est le nombre de données expérimentales (avec $n \geq 5$, réparties dans une gamme de 0 à 60°).
- p(x) est une approximation cubique du locus de Planck et le choix des deux constantes d'échelle impliquent que des variations parallèles au locus de Planck sont pénalisées 2.5 fois moins que les variations orthogonales au locus de Planck. Ce choix favorise les chemins angulaires proches du locus de Planck par rapport aux autres chemins angulaires.
- x_i et y_i sont les coordonnées chromatiques dans le système CIE 1931, à chaque angle i.

Selon un de ses aspects, la présente invention a pour objet un substrat transparent pour dispositif électroluminescent organique selon la revendication 1, les revendications dépendantes présentant des modes de réalisation préférés.

L'invention porte sur un substrat transparent pour dispositif électroluminescent organique comprenant un support porteur d'une électrode, ladite électrode consistant en un empilage de couches comprenant au moins, dans l'ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique (D1), une première couche métallique de conduction (M1), une deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2) et une

troisième couche diélectrique (D3). Il se caractérise par le fait que l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est d'au moins 65 nm et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction (M1) est d'au moins 8.5 nm.

5 De tels substrats avec de telles électrodes ont l'avantage, une fois intégrés dans des dispositifs OLED, d'offrir le meilleur compromis possible entre un CRI élevé, une luminance élevée (c'est-à-dire une efficacité élevée), et une faible variabilité de couleur selon l'angle d'observation. Bien que des substrats transparents pour dispositifs électroluminescents organiques existent offrant
10 pour une de ces propriétés de meilleurs résultats, nous avons trouvé que seule une sélection bien particulière de l'épaisseur du second diélectrique et de la première couche métallique de conduction de l'électrode offrait à la fois un CRI élevé, une luminance élevée et un faible Delta de couleur, soit une meilleure stabilité de la couleur selon l'angle.

15 En outre, nous avons trouvé que cette sélection convenait particulièrement pour intégration dans un dispositif OLED dont la partie organique est un empilement organique performant classique, dans lequel au moins deux des différentes sources émettrices (rouge, vert, bleu, jaune) sont séparées l'une de l'autre par une couche organique de séparation.

20 Le substrat de la présente invention est dit transparent, c'est-à-dire qu'il présente une absorption lumineuse d'au plus 50%, voire d'au plus 30%, préférentiellement d'au plus 20% ou au plus 15%, plus préférentiellement d'au plus 12% ou au plus 10% dans le domaine des longueurs d'onde de la lumière visible. Le substrat de la présente invention comprend un support et une
25 électrode.

Le support présente de préférence un indice de réfraction d'au moins 1.2, 1.4 ou 1.5 à une longueur d'onde de 550 nm. Ceci permet, à structure de substrat égale, d'augmenter la quantité de lumière transmise ou émise.

Sous le terme "support", on entend désigner non seulement le support en tant que tel mais également toute structure comprenant le support ainsi qu'au moins une couche d'un matériau ayant indice de réfraction, $n_{\text{matériau}}$, proche de l'indice de réfraction du support, n_{support} , en d'autres termes $|n_{\text{support}} - n_{\text{matériau}}| \leq 0,1$, $|n_{\text{support}} - n_{\text{matériau}}|$ représentant la valeur absolue de la différence entre les indices de réfraction. On peut citer comme exemple une couche d'oxyde de silicium déposée sur un support en verre silico-sodo-calcique.

Le support peut inclure des dispositifs additionnels favorisant l'extraction de lumière sur l'une et ou l'autre de ses faces. Un de ces dispositifs, à savoir une couche de diffusion, est décrit dans les documents publiés WO2009/017035, WO2009/116531, WO2010/084922, WO2010/084925, WO2011/046156, WO2011/046190 et la demande PCT/JP2011/074358, tous incorporés ici par référence. Généralement, cette couche de diffusion présente une épaisseur de plus de 5 μm et n'est pas considérée comme un système optique cohérent. Dans le cas où une telle couche de diffusion est en contact avec l'électrode selon l'invention, n_{support} est alors considéré comme étant l'indice, éventuellement de la matrice, de cette couche de diffusion.

De manière alternative, il peut être souhaitable d'éviter ou de minimiser la diffusion du support. Le substrat selon l'invention peut ainsi afficher une valeur de flou ("haze") inférieure à 20%, plus préférentiellement inférieure à 10%, ou encore plus préférentiellement inférieure à 2% ou à 1%. L'avantage est alors que le dispositif organique incluant un tel substrat présente un aspect attrayant et non laiteux lorsqu'il est hors tension. Une esthétique de miroir peut, par exemple, être obtenue si la seconde électrode de charge opposée est

réfléchissante; ou il est possible de réaliser un assemblage de vitrage transparent si la seconde électrode est également semi-transparente.

Dans le cas d'une seconde électrode réfléchissante, le dispositif organique complet peut alors présenter une réflexion lumineuse (selon CIE, illuminant D65 2°) mesurée côté support de plus de 20%, ou plus
5 préférentiellement de plus de 40% ou encore plus avantageusement de plus de 60%. Dans le cas d'une seconde électrode semi-transparente, le dispositif organique complet peut alors présenter une transmission lumineuse d'au moins 5% (selon CIE, illuminant D65 2°), ou plus avantageusement d'au moins 10% ou
10 encore plus préférentiellement d'au moins 20%.

La fonction du support est de supporter et/ou de protéger l'électrode. Le support peut être en verre, en matière plastique rigide (par exemple : verre organique, polycarbonate) ou en films polymériques souples (par exemple : PVC, PET, PP, PTFE). Le support est de préférence rigide.
15 Alternativement, il peut être roulé sur lui-même (par exemple un verre souple extra-fin utilisable dans un processus de dépôt "roll to roll").

Lorsque le support est en verre, par exemple une feuille de verre, celui-ci a de préférence une épaisseur géométrique d'au moins 0,05 mm. Le verre est de préférence silico-sodo-calcique clair ou coloré dans la masse ou en
20 surface. Avantageusement, il peut être extra-clair, c'est-à-dire un verre avec un contenu total en fer, exprimé en tant que Fe_2O_3 , de moins de 0.020 % poids, de préférence de moins de 0.015% poids. Le verre, du fait de sa faible porosité, a l'avantage d'assurer une bonne protection contre toute forme de contamination d'un dispositif comprenant le substrat transparent selon l'invention.

25 L'électrode selon l'invention consiste en un empilage de couches comprenant au moins, dans l'ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique (D1), une première couche métallique de conduction (M1), une

deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2) et une troisième couche diélectrique (D3). L'électrode peut se comporter comme une anode ou, au contraire, comme une cathode.

Le nombre de couches métalliques de conduction dans l'électrode
5 selon l'invention est avantageusement deux ou trois. Ceci permet de réduire les problèmes de stabilité angulaire de la couleur émise par le dispositif OLED. Dans le cas où il y a trois couches métalliques de conduction dans l'électrode, celle-ci comprend au moins, en ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique (D1), une première couche métallique de conduction (M1), une
10 deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2), une troisième couche diélectrique (D3), une troisième couche métallique de conduction (M3) et une quatrième couche diélectrique (D4).

Les couches métalliques de conduction de l'électrode assurent principalement la conduction électrique de ladite électrode. Elles comprennent
15 au moins une couche comprenant un métal ou un mélange de métaux. Le métal et/ou le mélange de métaux comprend de préférence au moins un élément sélectionné parmi Ag, Au, Pd, Pt, Al, Cu, Zn, Cd, In, Si, Zr, Mo, Ni, Cr, Mg, Mn, Co, Sn. Préférentiellement, le métal et/ou le mélange de métaux comprend au moins un élément sélectionné parmi Ag, Au, Cu, Al. Plus préférentiellement, la couche
20 métallique de conduction comprend au moins de l'argent sous forme pure ou alliée à un autre métal, de préférence sélectionné parmi Pd et Au.

L'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction (M1) est d'au moins 8.5 nm, de préférence au moins 8.7 nm ou au moins 9.0 nm, plus préférentiellement au moins 9.5 nm. De préférence,
25 l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction (M1) est inférieure à 13.0 nm, de préférence inférieure à 12.5 nm ou à 12.0 nm, plus préférentiellement inférieure à 11.5 nm.

L'épaisseur géométrique des autres couches métalliques de conduction est d'au moins 6.0 nm, de préférence au moins 7.0 nm ou au moins 7.5 nm, plus préférentiellement au moins 8.0 nm. De préférence, l'épaisseur géométrique des autres couches métalliques de conduction est inférieure à 25.0
5 ou à 20.0 nm, de préférence inférieure à 18.0 nm ou à 15.0 nm, plus préférentiellement inférieure à 13.0 nm.

Les couches diélectriques peuvent comprendre une ou plusieurs sous-couches de natures différentes. Avantageusement, elles comprennent un composé présentant un indice de réfraction à une longueur d'onde de 550 nm
10 d'au moins 1.6, au moins 1.8 ou au moins 1.9, et/ou au plus 2.7 ou au plus 2.5. De préférence, elles présentent un indice de réfraction qui est supérieur à celui du support d'au moins 0.1, de préférence d'au moins 0.2.

De façon préférée, les couches diélectriques comprennent au moins un composé sélectionné parmi :

- 15 - les oxydes d'au moins un élément sélectionné parmi Y, Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Cr, Mo, W, Zn, Al, Ga, In, Si, Ge, Sn, Sb et Bi, ainsi que les mélanges d'au moins deux d'entre eux;
- le nitrure de silicium, l'oxynitrure de silicium, l'oxycarbure de silicium, l'oxycarbonitrure de silicium, le nitrure d'aluminium, l'oxynitrure d'aluminium
20 ainsi que les mélanges d'au moins deux d'entre eux.

Plus préférentiellement encore, elles comprennent au moins un composé sélectionné parmi les oxydes de zinc, les oxydes d'étain, les oxydes de titane, les nitrures d'aluminium, les nitrures de silicium, les mélanges d'au moins deux d'entre eux, les oxydes mixtes de zinc-étain et les oxydes mixtes de titane-
25 zirconium-yttrium.

L'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est d'au moins 65 nm, de préférence au moins 67 nm ou au moins 70 nm, plus

préférentiellement au moins 73 nm. Avantageusement l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est inférieure à 90 nm, de préférence inférieure à 88 nm ou à 86 nm.

En outre, nous avons trouvé que des sélections additionnelles au
 5 niveau des épaisseurs de la deuxième couche diélectrique (D2) et de la première couche métallique de conduction (M1) ou de l'épaisseur de première couche diélectrique (D1) pouvaient viser les mêmes objectifs généraux de l'invention.

Ainsi, l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique, Ép.D2, et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de
 10 conduction, Ép.M1, peuvent répondre à l'équation suivante:

$$\begin{aligned} \text{Ép.M1} \geq & -6.266386 + 0.1869915 * \text{Ép.D2} + 0.0123539 * (\text{Ép.D2} - 83.45)^2 - \\ & 0.0001814 * (\text{Ép.D2} - 83.45)^3 \end{aligned}$$

Préférentiellement, le rapport entre l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique et l'épaisseur géométrique de la première couche
 15 diélectrique, Ép.D2/Ép.D1, est d'au moins 1.90 ou plus préférentiellement d'au moins 1.95 ou au moins 2.00.

Avantageusement aussi, l'épaisseur géométrique de la première couche diélectrique, Ép.D1, peut être d'au moins 54 ou au moins 55 nm. Elle peut être inférieure à 80, à 70 ou à 65 nm. Une première couche diélectrique
 20 plus épaisse, peut contribuer à diminuer la sensibilité de l'électrode vis-à-vis de la migration d'alcalins en provenance du substrat.

Dans le cas où il y a trois couches métalliques de conduction dans l'électrode, la troisième couche diélectrique (D3) présente une épaisseur géométrique de préférence d'au moins 40 nm ou au moins 50 nm, plus
 25 préférentiellement d'au moins 55 nm. Préférentiellement, elle est inférieure à 100 nm ou à 90 nm, de préférence inférieure à 80 nm.

Dans des modes de réalisations préférés de l'invention, la dernière couche diélectrique de l'électrode, celle la plus éloignée du support (D3 dans le cas où il y a deux couches métalliques de conduction ou D4 dans le cas où il y a trois couches métalliques de conduction), ne comprend pas de couche à base d'oxyde d'indium (par exemple ITO). Plus préférentiellement encore, toutes les couches diélectriques de l'électrode ne comprennent pas de couche à base d'oxyde d'indium. En effet l'utilisation d'indium pose un certain nombre de problèmes. Tout d'abord, les ressources en indium sont limitées ce qui entraînera à court terme une augmentation inéluctable du coût de production de ces dispositifs. Par ailleurs, l'indium présent dans les dispositifs organiques électroluminescents a tendance à diffuser dans la partie organique de ces dispositifs entraînant une diminution de leur durée de vie.

L'épaisseur géométrique de la dernière couche diélectrique de l'électrode est de préférence d'au moins 5 nm ou au moins 8 nm, plus préférentiellement d'au moins 10 nm. Préférentiellement, elle est inférieure à 50 nm ou à 40 nm, de préférence inférieure à 30 nm ou à 25 nm, plus préférentiellement inférieure à 22 nm, à 20 nm ou à 18 nm.

On peut alternativement définir l'épaisseur de la dernière couche diélectrique de l'électrode par son épaisseur ohmique. L'épaisseur ohmique d'une couche est égale au rapport entre d'une part la résistivité (ρ) du matériau constituant cette couche et d'autre part l'épaisseur géométrique de cette même couche. De préférence l'épaisseur ohmique de la dernière couche diélectrique de l'électrode est d'au plus 10^{12} Ohm, préférentiellement d'au plus 10^7 Ohm. De telles valeurs permettent d'optimiser les paramètres optiques de la dernière couche diélectrique de l'électrode et donc d'optimiser la quantité de lumière transmise tout en gardant une épaisseur compatible avec des propriétés électriques permettant d'éviter des tensions d'allumage élevées.

De manière générale, lorsque des valeurs d'épaisseur géométrique sont données ici pour les couches D1, D2, D3 ou D4 de l'électrode, elles le sont pour un matériau constitutif présentant un indice de réfraction entre 1.8 et 2.2, plus préférentiellement entre 1.9 et 2.1 ou encore plus préférentiellement entre 1.95 et 2.05 à une longueur d'onde de 550 nm. Elles correspondent donc à une épaisseur optique égale à l'épaisseur géométrique multipliée par cet indice de réfraction qui est proche de 2. Si un autre choix de matériau est fait, avec un indice de réfraction différent, il suffit de recalculer une épaisseur géométrique correspondante.

De manière avantageuse, les couches diélectriques de l'électrode sous une, plusieurs ou chacune des couches métalliques de conduction peuvent comprendre également une couche de nucléation contiguë à la face de la couche métallique de conduction la plus proche du support. Cette couche permet une croissance préférentielle de la couche métallique, par exemple d'argent, constituant la couche métallique de conduction et d'obtenir de ce fait de bonnes propriétés électriques et optiques de la couche métallique de conduction. Elle comprend de préférence au moins du ZnO_x (avec $x \leq 1$) et/ou du $\text{Zn}_x\text{Sn}_y\text{O}_z$ (avec $x + y \geq 3$ et $z \leq 6$). Préférentiellement, le $\text{Zn}_x\text{Sn}_y\text{O}_z$ comprend au plus 95% en poids de zinc, le pourcentage en poids de zinc étant exprimé par rapport au poids total des métaux présents dans la couche. Préférentiellement, la couche de cristallisation est en ZnO. L'épaisseur géométrique de la couche de nucléation est avantageusement d'au moins 5 ou au moins 8 nm; elle est avantageusement d'au plus 15 ou au plus 12 nm. Cette épaisseur est comptabilisée dans l'épaisseur du diélectrique qui la contient.

Il peut être également avantageux de munir une, plusieurs ou chacune des couches métalliques de conduction d'une couche barrière de protection au-dessus de celle(s)-ci, c'est-à-dire sur la face de la couche métallique de conduction la plus éloignée du support. Cette couche permet

d'éviter une détérioration de la couche métallique de conduction, notamment par oxydation ou nitruration. Elle peut comprendre un métal, un nitrure, un oxyde ou un oxyde sous-stœchiométrique comprenant au moins un élément sélectionné parmi Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Cr, Mo, W, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn et Al. Le plus préférentiellement, la couche sacrificielle comprend au moins Ti, TiO_x (avec $x \leq 2$), TiN, NiCr, NiCrO_x , TiZrO_x (TiZrO_x indique une couche d'oxyde de titane à 50% en poids d'oxyde de zirconium), ou ZnAlO_x (ZnAlO_x indique une couche d'oxyde de zinc à 2 à 5% en poids d'oxyde d'aluminium). De préférence, la couche barrière est une couche dite "céramique", c'est-à-dire qu'elle est obtenue à partir d'une cible céramique. Le choix de barrière céramique peut se montrer avantageux pour éviter des absorptions parasites qui diminuent l'efficacité du dispositif optoélectronique. L'épaisseur géométrique de la couche barrière est avantageusement d'au moins 0.4 ou au moins 0.5 nm; elle est avantageusement d'au plus 7.0 ou au plus 6.0 nm.

Avantageusement, l'électrode comprend une couche mince d'uniformisation des propriétés électrique de surface située, par rapport au support, au sommet de l'empilement multicouche constituant ladite électrode. La couche mince d'uniformisation des propriétés électriques de surface a pour fonction principale de permettre l'obtention d'un transfert uniforme de charge sur toute la surface de l'électrode. Ce transfert uniforme se traduit par un flux de lumière émise ou convertie substantiellement équivalent en tout point de la surface. Cela permet également d'augmenter la durée de vie des dispositifs photoniques étant donné que ce transfert est substantiellement le même en chaque point, éliminant de la sorte de possibles points chauds. La couche d'uniformisation a une épaisseur géométrique d'au moins 0.5 nm, préférentiellement d'au moins 1.0 nm. La couche d'uniformisation a une épaisseur géométrique d'au plus 6.0 nm, préférentiellement d'au plus 2.5 nm, plus préférentiellement d'au plus 2.0 nm. La couche d'uniformisation comprend au moins un métal, un nitrure, un oxyde, un carbure, un oxynitrure, un

oxycarbure, un carbonitrure ou un oxycarbonitrure. Plus préférentiellement, la couche mince d'uniformisation des propriétés électrique de surface comprend au moins un oxynitrure de Ti, un oxynitrure de Zr, un oxynitrure de Ni, un oxynitrure de NiCr, un nitrure de Ti, un nitrure de Zr, un nitrure de Ni, ou un
5 nitrure de NiCr.

Dans certains modes particuliers de réalisation, le substrat transparent selon l'invention est tel que le support porte un revêtement fonctionnel situé sur la face opposée à la face sur laquelle l'électrode est déposée. Ce revêtement fonctionnel peut être une couche ou un empilement de
10 plusieurs couches à fonction, par exemple, antireflet, diffusante, antibuée, antisalissure, antigriffe ou absorbant sélectif.

Selon un autre de ses aspects, la présente invention a pour objet un dispositif électroluminescent organique comprenant un substrat transparent tel que décrit ci-avant et un système de couches organiques électroluminescentes (système OLED) émettant une lumière blanche, adjacent à
15 l'électrode du substrat transparent.

Pour qu'un système OLED émette une lumière blanche, il peut être formé d'un mélange au sein d'une seule couche organique de composés émettant de la lumière rouge, verte, jaune et bleue; par empilement de trois ou
20 quatre structures de couches organiques correspondant respectivement aux parties émettrices de lumière rouge, verte, jaune et bleue ou de deux structures de couches organiques (émission jaune et bleu); ou par juxtaposition de trois ou quatre (émission rouge, verte, bleu et jaune) ou deux structures de couches organiques (émission jaune et bleu) associées ou non avec un système de
25 diffusion de la lumière. Lorsqu'on parle d'empilement de couches organiques, celles-ci peuvent être contiguës (ces structures sont dites "minces") ou séparées par des couches de transport d'électrons et de trous (ces structures sont dites

"épaisses" et peuvent être appelées "empilements organiques performants classiques").

Par les termes lumière blanche, on entend désigner une lumière dont les coordonnées chromatiques à 0°, pour un rayonnement perpendiculaire à la surface du substrat, sont comprises dans un des huit quadrilatères de chromaticité, contours des quadrilatères compris. Ces quadrilatères sont définis aux pages 10 à 12 de la norme ANSI_NEMA_ANSLG C78.377-2008. Ces quadrilatères sont représentés sur la figure A1, PART 1 intitulée « Graphical representation of the chromaticity specification of SSL products in Table 1, on the CIE (x,y) chromaticity diagramme ».

De manière habituelle, G représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière verte, B représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière bleue et R représente la couche organique émettrice émettant majoritairement de la lumière rouge. Les séquences GBR, RGB, BRG, RBG, GRB, BGR sont les séquences dans lesquelles apparaissent les différentes couches émettrices, ces séquences sont exprimées par rapport à l'électrode, la première lettre de la séquence correspondant à la couche émettrice la plus éloignée de ladite électrode. Les couches organiques peuvent être constituées d'une couche en matériau unique ou d'une pluralité de couches chacune en un matériau différent. On peut aussi utiliser des systèmes à quatre couches émettrices où la couleur jaune (représentée par la lettre Y) permet d'étendre la couverture spectrale de la lumière visible du système OLED.

Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention peuvent inclure un système OLED sélectionné parmi les systèmes GBR, RGB, BRG, RBG, GRB et BGR; les systèmes GBR et RGB sont préférés. Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention peuvent aussi inclure un

système OLED sélectionné parmi les systèmes BYRG, BRYG et leurs variantes; les systèmes BYRG ou BYGR sont préférés. De préférence, les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention incluent un système OLED formé d'un empilement organique performant classique comprenant des couches organiques, séparant au moins deux des différentes couches émettrices, qui
5 présentent une épaisseur d'au moins 5 nm, plus préférentiellement d'au moins 15 nm, ou encore plus préférentiellement d'au moins 30 nm.

Un exemple de structure dite "mince" et les matériaux associés permettant de fabriquer une structure dite "épaisse" sont décrits par exemple
10 dans Reineke et al. (NATURE, Vol 459, 14 May 2009) ou dans Rosenow et al. (Journal of Applied Physics, Vol. 108, 113113 (2010)).

Selon un mode de réalisation particulier, le dispositif organique électroluminescent est intégré dans un vitrage, un double vitrage ou un vitrage feuilleté. Il est également possible d'intégrer plusieurs dispositifs organiques
15 électroluminescents.

Selon un autre mode de réalisation particulier, le dispositif organique électroluminescent est enfermé dans au moins un matériau d'encapsulation en verre et/ou en plastique. Les différents modes de réalisation des dispositifs organiques électroluminescents peuvent être combinés.

20 Enfin, les différents dispositifs organiques électroluminescents ont un vaste domaine d'utilisation. L'invention s'adresse notamment aux utilisations possibles de ces dispositifs organiques électroluminescents pour la réalisation d'une ou plusieurs surfaces lumineuses. Le terme surface lumineuse comprend par exemple les dalles éclairantes, panneaux lumineux, cloisons lumineuses,
25 plans de travail, serres, lampes de poche, fonds d'écran, fonds de tiroirs, toits lumineux, écrans tactiles, lampes, flashes photo, fonds lumineux d'affichage, signaux de sécurité, étagères, éclairages d'habacle de voiture ou d'avion.

Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention présentent avantageusement, en combinaison:

- un CRI supérieur à 70, de préférence supérieur à 72 ou à 74,
- un Delta de couleur inférieur à 2.4, de préférence inférieur à 2.0 ou à 1.8, et
- 5 - une luminance équivalente à au moins 75% , de préférence au moins 85% ou 88%, ou encore plus préférentiellement au moins 90% ou 95%, de la luminance du même dispositif OLED optimisé cette fois avec une électrode en ITO présentant une épaisseur géométrique de 120 nm et une résistance par carré de $12 \Omega/\square$ (+/-0.5 $\Omega/\square$).

- 10 Les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention peuvent également présenter avantageusement une efficacité supérieure à 15 lumen/watt à une luminance de 10000 cd/m².

- En outre, les dispositifs organiques électroluminescents selon l'invention incorporent avantageusement une électrode présentant une
- 15 résistance par carré bien inférieure à celle des électrodes traditionnelles en ITO ou des multicouches à une seule couche d'argent, favorisant ainsi la conduction de l'électrode et donc l'efficacité du dispositif OLED. La résistance par carré de l'électrode peut être inférieure à 5,0 $\Omega/\square$, de préférence inférieure à 4,0 $\Omega/\square$. Ceci autorise aussi d'envisager des dispositifs OLED de plus large surface sans
- 20 renfort additionnel d'électrode.

Des modes de réalisation particuliers de l'invention vont à présent être décrits, en tant qu'exemples, tout en faisant référence aux Figures 1 à 2 et aux exemples 1 à 7. Des exemples comparatifs 1 à 12, ne formant pas partie de l'invention, sont également présentés.

- 25 Fig. 1: coupe transversale d'un dispositif électroluminescent organique selon l'invention

Fig. 2: coupe transversale d'un autre dispositif électroluminescent organique selon l'invention

Le dispositif électroluminescent organique (100) de la figure 1 comprend un substrat transparent (1), un système OLED (2) et une contre-
5 électrode (3), le substrat transparent (1) comprenant un support (10) porteur d'une électrode (11). Ladite électrode (11) consiste en un empilage de couches comprenant une première couche diélectrique (D1), une première couche
10 métallique de conduction (M1), une deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2) et une troisième couche diélectrique (D3).

Le dispositif électroluminescent organique (200) de la figure 2 comprend un substrat transparent (1), un système OLED (2) et une contre-
électrode (3), le substrat transparent (1) comprenant un support (10) porteur
15 d'une électrode (11). Ladite électrode (11) consiste en un empilage de couches comprenant une première couche diélectrique (D1) qui inclut une couche de nucléation (N1), une première couche métallique de conduction (M1), une
couche barrière (B1), une deuxième couche diélectrique (D2) incluant une
couche de nucléation (N2), une deuxième couche métallique de conduction (M2)
une couche barrière (B2), une troisième couche diélectrique (D3) et une couche
20 mince d'uniformisation (U). Le système OLED (2) comprend, dans l'ordre à partir du support (10), une première couche organique (OD4) incluant une couche de transport de trous, une couche émettrice bleue (EMB), une deuxième couche
organique (OD3) incluant une couche de transport d'électrons et une couche de
transport de trous, une couche émettrice verte (EMG), une troisième couche
25 organique (OD2) incluant une couche de transport d'électrons et une couche de transport de trous, une couche émettrice rouge (EMR), et une quatrième couche organique (OD1) incluant une couche de transport d'électrons. Ce système OLED est dit "RGB". Une ou plusieurs couche(s) de blocage (non représentées à la

figure 2) peut également être prévue dans le système OLED dans une ou plusieurs couche(s) transporteuse(s) de charges.

Les différents éléments des figures ne sont pas représentés à l'échelle.

- 5 Des exemples de dispositifs électroluminescents organiques selon l'invention sont présentés au Tableau I et des exemples comparatifs, ne faisant pas partie de l'invention, sont présentés au Tableau II.

10 Pour chaque partie du dispositif électroluminescent organique, les couches formant l'électrode et le système organique y sont décrites: leur nature et leur épaisseur géométrique exprimée en nanomètres. La lumière émise par le système OLED est également définie.

$Zn_{90}Sn_{10}O$ représente un oxyde mixte de Zn (90% poids) et Sn (10% poids)

$Zn_{48}Sn_{52}O$ représente un oxyde mixte de Zn (48% poids) et Sn (52% poids)

15 TxO représente une couche de TiO_2 déposée par pulvérisation magnétron à partir d'une cible céramique

ITO représente une couche d'oxyde d'indium dopé étain

Tous les dispositifs électroluminescents organiques des exemples et exemples comparatifs ont un support en verre sodo-silico-calciue.

20 La résistance par carré de l'électrode, exprimée en $\Omega/\square$, ainsi que les performances des dispositifs électroluminescents organiques des exemples et exemples comparatifs sont données dans les tableaux I et II. Les performances ont été calculées à l'aide du programme de simulation SETFOS (Semiconducting Emissive Thin Film Optics Simulator) de la firme Fluxim (<http://www.fluxim.ch>), version 2. La luminance (Lum) est exprimée en unité arbitraire. Les valeurs de CRI
25 données sont des moyennes de CRI calculés à des angles de 0, 10, 20, ..., 80 degrés selon la formule ci-dessus. Les valeurs de Delta de couleur (Deltacol) ont

également été calculées selon la formule donnée ci-dessus. La luminance est également exprimée de manière relative ("ratio") par rapport à la luminance de référence du même dispositif OLED optimisé avec une électrode en ITO ("référence") pour lequel les indices de réfraction proviennent du fichier ITO.nk disponible dans SETFOS.

Les performances des exemples montrent une excellente combinaison des valeurs de luminance, CRI et Delta de couleur, avec une luminance supérieure à 80, une luminance équivalente à au moins 88% de la luminance du même dispositif OLED optimisé avec une électrode en ITO de référence, un CRI supérieur à 70 et un Delta de couleur inférieur à 2. De plus, les électrodes selon l'invention présentent une résistance par carré bien inférieure à celle des électrodes traditionnelles en ITO ou des multicouches à une seule couche d'argent, favorisant ainsi la conduction de l'électrode, donc l'efficacité du dispositif OLED, ce qui autorise aussi d'envisager des OLEDs de plus large surface sans renfort d'électrode. Alors que pour chacun des exemples comparatifs, au moins une de ces performances montre une valeur inacceptable (valeur soulignée dans le Tableau II).

En outre, des dispositifs électroluminescents organiques ont été effectivement fabriqués sur base de l'exemple 5 et des exemples comparatifs 4 et 12; l'efficacité quantique externe (EQE) et le rendement lumineux de ces dispositifs ont été mesurés à 10000 cd/m²; le CRI et le Delta de couleur de ces dispositifs ont été mesurés à 1000 cd/m².

Le dispositif selon l'exemple 5, selon l'invention, montre une efficacité quantique externe de 22.4%, un rendement lumineux de 14 lm/W, un CRI supérieur à 86 et un Delta de couleur de 2.15.

Le dispositif selon l'exemple comparatif 4, hors invention, dans lequel l'électrode est un multicouche à une seule couche d'argent, montre une

efficacité quantique externe de 16.6%, un rendement lumineux de 13.1 lm/W, un CRI de 61 et un Delta de couleur de 8.9.

Le dispositif selon l'exemple comparatif 12, hors invention, dans lequel l'électrode est un multicouche à deux couches d'argent, mais dont
5 l'épaisseur de D2, 59.8 nm, est inférieure à 65 nm, montre une efficacité quantique externe de 16.6%, un rendement lumineux de 10.8 lm/W, un CRI de 82 et un Delta de couleur de 3.68.

Tableau I: Exemples

ELECTRODE														OLED										Performances	
D1	M1	B1	D2	M2	B2	D3	M3	B3	D4	U	OD4	EM	OD3	EM	OD2	EM	OD1	lumière émise	R/□ [Ω/□]	Lum	CRI	Deltacol	Ratio	Lum ratio vs. ITO	
1	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 35,0	Ag 10,2	0,5	TxO 79,3	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 8,0	0,5	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O 10,0	Ag 8,0	0,5	10,0	B 112	G 25	G 25	R 74	R 25	R 92	R 25	Planck	3,5	85,1	78,7	0,82	95%	Ex. Comp. 1
2	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 38,7	Ag 10,4	0,5	TxO 71,9	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 8,0	0,5	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O 10,0	Ag 8,0	0,5	10,0	R 100	B 25	G 25	G 32	G 25	G 57	G 25	Planck	3,5	86,7	79,7	1,23	95%	Ex. Comp. 2
3	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 32,0	Ag 9,8	0,5	TxO 74,5	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 8,0	0,5	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O 10,0	Ag 8,0	0,5	10,0	B 83	G 25	G 25	R 30	R 25	R 120	R 25	illumi- nant A	3,6	88,1	74,6	1,66	99%	Ex. Comp. 1
4	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 38,7	Ag 9,7	0,5	TxO 70,3	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 8,0	0,5	10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O 10,0	Ag 8,0	0,5	10,0	R 116	B 25	G 25	B 40	G 25	G 46	G 25	illumi- nant A	3,6	86,3	76,0	1,50	95%	Ex. Comp. 2
5	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O/ZnO 38,5/10,0	Ag 10,3	0,5	TxO 66,3/10,0	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O/ZnO 8,0	0,5	6,6	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O 6,6	Ag 8,0	0,5	10,0	B 109	G 25	G 25	R 70	R 25	R 119	R 25	Planck	3,5	81,6	81,8	1,02	92%	Ex. Comp. 1
6	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 65,0	Ag 8,0	0,5	TxO 84,0	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 12,6	0,5	84,0	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 9,2	Ag 9,2	0,5	10,0	B 120	G 25	G 25	G 50	R 25	R 90	R 25	illumi- nant A	2,2	89,2	79,7	1,60	100%	Ex. Comp. 1
7	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 49,1	Ag 11,6	0,5	TxO 76,1	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 13,5	0,5	63,7	Zn ₉₉ Sn ₁₀ O 8,0	Ag 8,0	0,5	10,0	R 69	B 25	G 25	B 40	G 25	G 38	G 25	illumi- nant A	2,0	80,9	74,3	1,90	89%	Ex. Comp. 2

Tableau II: Exemples comparatifs

ELECTRODE													OLED					Performances									
D1	M1	B1	D2	M2	B2	D3	M3	B3	D4	U	OD4	EM	OD3	EM	OD2	EM	OD1	lumière émise	R/□ [Ω/□]	Lum	CRI	Deltacol Ratio	Lum ratio vs. ITO Ratio	Référence			
1	ITO		120,0											77	25	41	25	115	25	54	illuminant A	12.3	89,1	73,7	2.40	100%	-
2	ITO		120,0											123	25	31	25	48	25	56	illuminant A	12.3	91,0	65.8	1.08	100%	-
3	ITO		120,0											45	4	6	6	1	50		illuminant E	12.3	78,9	74,4	3.88	100%	-
4	TiO ₂ /ZnSnO		60,0/10,0	Ag	Ti	ZnSnO							87	25	120	25	59	25	35	Planck	4.9	38.2	71,6	7.43	43%	Ex. Comp. 1	
5	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		21,0/5,0/5,0	Ag	Ti	ITO							45	4	6	6	1	50		illuminant E	5.4	117,2	58.3	6.64	149%	Ex. Comp. 3	
6	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		30,0/5,0/5,0	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			45	4	6	6	1	50		illuminant E	4,0	81,0	64.9	0,73	103%	Ex. Comp. 3	
7	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		30,0/5,0/5,0	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			63	25	30	25	118	25	49	Planck	4,0	85,3	79,1	2.83	94%	Ex. Comp. 1	
8	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		23,0/7,0/2,5	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			45	4	6	6	1	50		illuminant E	3,8	68.4	56.0	2.63	87%	Ex. Comp. 3	
9	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		23,0/7,0/2,5	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			102	25	33	25	46	25	65	illuminant A	3,8	78,6	78,2	3.32	88%	Ex. Comp. 1	
10	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		26,0/4,0/5,0	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			45	4	6	6	1	50		illuminant E	3,4	66.9	52.5	3.92	85%	Ex. Comp. 3	
11	Si ₃ N ₄ /SnZnO/ZnO		15,0/5,0/5,0	Ag	Ti	ZnO/SnZnO/ZnO		Ag	Ti	ITO			45	4	6	6	1	50		illuminant E	3,4	56.1	60.4	4.97	71%	Ex. Comp. 3	
12	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O/ZnO		35,1/10,0	Ag	TiO	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O/ZnO		Ag	TiO	Zn ₄₈ Sn ₅₂ O			99	25	65	25	90	25	71	Planck	3,5	82,5	70,2	3.38	93%	Ex. Comp. 1	

R/□ [□/□]	Performances				Lum ratio vs. ITO
	Lum	CRI	Deltacol	Ratio	
12.3	89,1	73,7	2.40	100%	-
12.3	91,0	65.8	1.08	100%	-
12.3	78,9	74,4	3.88	100%	-
4.9	38.2	71,6	7.43	43%	Ex. Comp. 1
5.4	117,2	58.3	6.64	149%	Ex. Comp. 3
4,0	81,0	64.9	0,73	103%	Ex. Comp. 3
4,0	85,3	79,1	2.83	94%	Ex. Comp. 1
3,8	68.4	56.0	2.63	87%	Ex. Comp. 3
3,8	78,6	78,2	3.32	88%	Ex. Comp. 1
3,4	66.9	52.5	3.92	85%	Ex. Comp. 3
3,4	56.1	60.4	4.97	71%	Ex. Comp. 3
3,5	82,5	70,2	3.38	93%	Ex. Comp. 1

REVENDEICATIONS

1. Substrat transparent (1) pour dispositif électroluminescent organique (100) comprenant un support (10) porteur d'une électrode (11), ladite électrode (11) consistant en un empilage de couches comprenant au moins, dans l'ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique (D1), une première
5 couche métallique de conduction (M1), une deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2) et une troisième couche diélectrique (D3), caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est d'au moins 65 nm et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction (M1) est d'au moins 8.5 nm.
- 10 2. Substrat transparent selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est inférieure à 90 nm.
3. Substrat transparent selon la revendication 1 ou la revendication 2, caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la première
15 couche métallique de conduction (M1) est inférieure à 13 nm.
4. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique, Ép.D2 , et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction, Ép.M1 , répondent en outre à l'équation suivante:
20
$$\text{Ép.M1} \geq -6.266386 + 0.1869915 * \text{Ép.D2} + 0.0123539 * (\text{Ép.D2} - 83.45)^2 - 0.0001814 * (\text{Ép.D2} - 83.45)^3$$
5. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que le rapport entre l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique et l'épaisseur géométrique de la première
25 couche diélectrique, $\text{Ép.D2}/\text{Ép.D1}$, est d'au moins 1.90.

6. Substrat transparent selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la première couche diélectrique, Ép.D1, est d'au moins 54 nm.

5 7. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'épaisseur géométrique de la dernière couche diélectrique de l'électrode (11) la plus éloignée du support (10) est comprise entre 5 et 30 nm.

8. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que le nombre de couches métalliques de
10 conduction (M) dans l'électrode (11) est deux ou trois.

9. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que les couches métalliques de conduction de l'électrode (11) comprennent de l'argent.

10. Substrat transparent selon l'une des revendications
15 précédentes, caractérisé en ce que les couches diélectriques de l'électrode (11) comprennent un composé présentant un indice de réfraction à une longueur d'onde de 550 nm compris entre 1.6 et 2.5.

11. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que les couches diélectriques de l'électrode (11)
20 comprennent un composé sélectionné parmi les oxydes de zinc, les oxydes d'étain, les oxydes de titane, les nitrures d'aluminium, les nitrures de silicium, les mélanges d'au moins deux d'entre eux, les oxydes mixtes de zinc-étain et les oxydes mixtes de titane-zirconium-yttrium.

12. Substrat transparent selon l'une des revendications
25 précédentes, caractérisé en ce que la dernière couche diélectrique de l'électrode (11) la plus éloignée du support (10) ne comprend pas de couche à base d'oxyde

d'indium.

13. Substrat transparent selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que toutes les couches diélectriques de l'électrode (11) ne comprennent pas de couche à base d'oxyde d'indium.

5 **14.** Dispositif électroluminescent organique (100) comprenant un substrat transparent (1) selon l'une des revendications précédentes et un système OLED (2) émettant une lumière blanche, adjacent à l'électrode (11) du substrat transparent (1).

10 **15.** Dispositif électroluminescent organique (100) selon la revendication 14, caractérisé en ce qu'il présente une luminance équivalente à au moins 85% de la luminance du même dispositif OLED optimisé avec une électrode en ITO présentant une épaisseur géométrique de 120 nm et une résistance par carré de $12 \Omega/\square$ ($\pm 0.5 \Omega/\square$), un CRI supérieur à 70 et un Delta de couleur inférieur à 2.0.

27

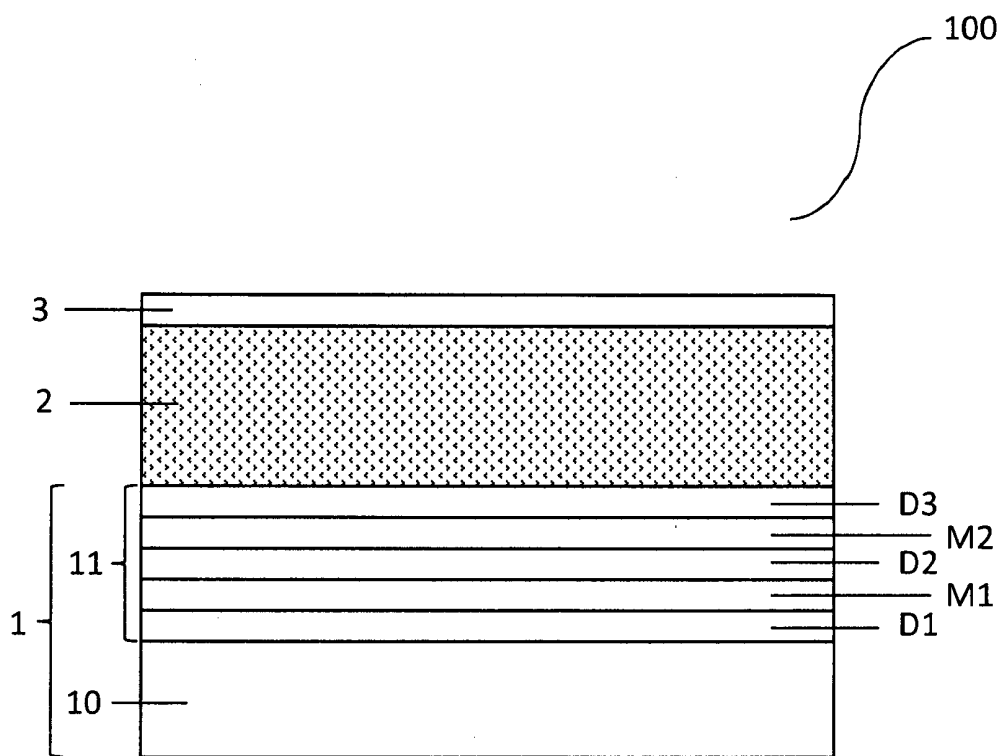


Fig.1

28

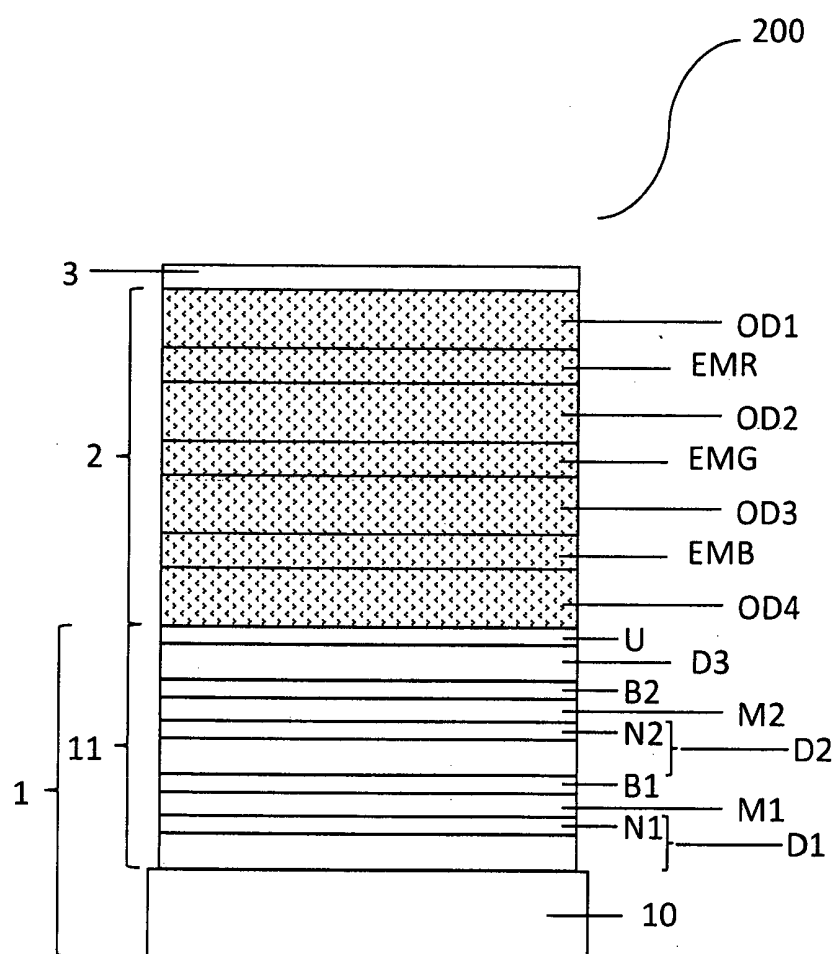


Fig.2

29

ABRÉGÉ DESCRIPTIF

Dispositif photonique organique

L'invention porte sur un substrat transparent pour dispositif électroluminescent organique comprenant un support porteur d'une électrode, ladite électrode consistant en un empilage de couches comprenant au moins, en ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique (D1), une première
5 couche métallique de conduction (M1), une deuxième couche diélectrique (D2), une deuxième couche métallique de conduction (M2) et une troisième couche diélectrique (D3). Il se caractérise par le fait que l'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique (D2) est d'au moins 65 nm et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction (M1) est d'au
10 moins 8.5 nm.

Figure 1.

15

20

TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL ETABLI EN VERTU DE L'ARTICLE 21 § 9 DE LA LOI BELGE SUR LES BREVETS D'INVENTION DU 28 MARS 1984

IDENTIFICATION DE LA DEMANDE INTERNATIONALE	REFERENCE DU DEPOSANT OU DU MANDATAIRE BE 4675 NP-BISILVOLED
Demande nationale belge n° 201200305	Date du dépôt 08-05-2012
	Date de priorité revendiquée
Déposant (Nom) AGC Glass Europe	
Date de la requête d'une recherche de type international 25-06-2012	Numéro attribué par l'administration chargée de la recherche internationale à la requête d'une recherche de type international SN58363
I. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE (en cas de plusieurs symboles de la classification, les indiquer tous)	
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB H01L51/52;H01L51/44	
II. DOMAINES RECHERCHES	
Documentation minimale consultée	
Système de classification	Symboles de la classification
IPC	H01L
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents font partie des domaines consultés	
III. ☐ IT A ETE ESTIME QUE CERTAINES REVENDEICATIONS NE POUVAIENT FAIRE L'OBJET D'UNE RECHERCHE (Observations sur la feuille supplémentaire)	
IV. ☐ ABSENCE D'UNITE DE L'INVENTION ET/OU CONSTATATION RELATIVE A L'ETENDUE DE LA RECHERCHE (Observations sur la feuille supplémentaire)	

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL

Demande de recherche No

BE 201200305

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE

INV. H01L51/52

ADD. H01L51/44

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

H01L

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

EPO-Internal, INSPEC, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie °	Documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	KR 2002 0088488 A (KOREA INST SCI & TECH [KR]) 29 novembre 2002 (2002-11-29)	1-4, 6-11,14, 15
Y	* figures 2-4 * * abrégé *	12,13
X	US 6 040 056 A (ANZAKI TOSHIAKI [JP] ET AL) 21 mars 2000 (2000-03-21)	1-11,14, 15
Y	* tableau 1 * * colonne 1, ligne 8-15 * * colonne 6, ligne 19-53 *	12,13
Y	WO 2009/078682 A2 (KOREA ELECTRONICS TELECOMM [KR]; RYU MIN KI [KR]; PARK SANG HEE [KR];) 25 juin 2009 (2009-06-25) * figure 2 * * alinéas [0003] - [0012] *	12,13
	----- -/-	

☒ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

° Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent

"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date

"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)

"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens

"P" document publié avant la date de dépôt, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"Z" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche de type international a été effectivement achevée

9 janvier 2013

Date d'expédition du rapport de recherche de type international

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

De Laere, Ann

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL

Demande de recherche No

BE 201200305

C.(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie °	Documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A,D	WO 2009/083693 A2 (SAINT GOBAIN [FR]; LECAMP GUILLAUME [FR]; VERMERSCH FRANCOIS-JULIEN [F]) 9 juillet 2009 (2009-07-09) cité dans la demande * le document en entier * -----	1-15

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande de recherche n

BE 201200305

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
KR 20020088488	A	29-11-2002	AUCUN	
US 6040056	A	21-03-2000	JP 10100303 A US 6040056 A	21-04-1998 21-03-2000
WO 2009078682	A2	25-06-2009	KR 20090066245 A WO 2009078682 A2	23-06-2009 25-06-2009
WO 2009083693	A2	09-07-2009	CN 101960638 A EA 201070799 A1 EP 2232610 A2 FR 2925981 A1 JP 2011508400 A KR 20100113093 A TW 200952548 A US 2011037379 A1 WO 2009083693 A2	26-01-2011 28-02-2011 29-09-2010 03-07-2009 10-03-2011 20-10-2010 16-12-2009 17-02-2011 09-07-2009



OPINION ÉCRITE

Dossier N° SN58363	Date du dépôt (jour/mois/année) 08.05.2012	Date de priorité (jour/mois/année)	Demande n° BE201200305
Classification internationale des brevets (CIB) INV. H01L51/52 ADD. H01L51/44			
Déposant AGC Glass Europe			

La présente opinion contient des indications et les pages correspondantes relatives aux points suivants :

- ☒ Cadre n° I Base de l'opinion
- ☐ Cadre n° II Priorité
- ☐ Cadre n° III Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle
- ☐ Cadre n° IV Absence d'unité de l'invention
- ☒ Cadre n° V Déclaration motivée quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration
- ☐ Cadre n° VI Certains documents cités
- ☐ Cadre n° VII Irrégularités dans la demande
- ☒ Cadre n° VIII Observations relatives à la demande

Formulaire BE237A (feuille de titre) (Janvier 2007)	Examineur De Laere, Ann
---	----------------------------

OPINION ÉCRITE

Demande n°

BE201200305

Cadre n° I Base de l'opinion

1. Cette opinion a été établie sur la base des revendications déposées avant le commencement de la recherche.
2. En ce qui concerne **la ou les séquences de nucléotides ou d'acides aminés** divulguées dans la demande, le cas échéant, cette opinion a été effectuée sur la base des éléments suivants :
 - a. Nature de l'élément:
 - ☐ un listage de la ou des séquences
 - ☐ un ou des tableaux relatifs au listage de la ou des séquences
 - b. Type de support:
 - ☐ sur papier
 - ☐ sous forme électronique
 - c. Moment du dépôt ou de la remise:
 - ☐ contenu(s) dans la demande telle que déposée
 - ☐ déposé(s) avec la demande, sous forme électronique
 - ☐ remis ultérieurement
3. ☐ De plus, lorsque plus d'une version ou d'une copie d'un listage des séquences ou d'un ou plusieurs tableaux y relatifs a été déposée, les déclarations requises selon lesquelles les informations fournies ultérieurement ou au titre de copies supplémentaires sont identiques à celles initialement fournies et ne vont pas au-delà de la divulgation faite dans la demande internationale telle que déposée initialement, selon le cas, ont été remises.
4. Commentaires complémentaires :

OPINION ÉCRITE

Cadre n° V Opinion motivée quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration

1. Déclaration

Nouveauté	Oui : Revendications	12, 13
	Non : Revendications	1-11, 14, 15
Activité inventive	Oui : Revendications	
	Non : Revendications	1-15
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications	1-15
	Non : Revendications	

2. Citations et explications

voir feuille séparée

Cadre n° VIII Observations relatives à la demande

voir feuille séparée

Ad point V

Déclaration motivée quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle ; citations et explications à l'appui de cette déclaration

Il est fait référence aux documents suivants :

- D1 KR 2002 0088488 A (KOREA INST SCI & TECH [KR]) 29 novembre 2002 (2002-11-29)
- D2 US 6 040 056 A (ANZAKI TOSHIAKI [JP] ET AL) 21 mars 2000 (2000-03-21)
- D3 WO 2009/078682 A2 (KOREA ELECTRONICS TELECOMM [KR]; RYU MIN KI [KR]; PARK SANG HEE [KR];) 25 juin 2009 (2009-06-25)

1 Nouveauté

La présente demande ne remplit pas les conditions de brevetabilité, l'objet des revendications 1-11, 14 et 15 n'étant pas nouveau.

- 1.1 Le document D1 divulgue un substrat transparent pour dispositif électroluminescent organique (abrégé, figures 2-4) comprenant un support porteur d'une électrode, ladite électrode consistant en un empilage de couches comprenant au moins, dans l'ordre à partir du substrat, une première couche diélectrique, une première couche métallique de conduction, une deuxième couche diélectrique, une deuxième couche métallique de conduction et une troisième couche diélectrique. L'épaisseur géométrique de la deuxième couche diélectrique est d'au moins 65 nm (e.g. figure 3, couche Si_3N_4 80 nm; figure 4: couche Si_3N_4 85 nm) et l'épaisseur géométrique de la première couche métallique de conduction est d'au moins 8.5 nm (e.g. figures 3 et 4, couche Ag: 10 nm).

Toutes les caractéristiques des revendications 1, 2, 3, 8, 9 et 11 sont décrites dans D1. Ainsi l'objet de ces revendications n'est pas nouveau.

- 1.2 Les caractéristiques additionnelles des revendications 4, 6, 7, 10, 14 et 15 sont également décrites dans D1:

revendication 4: $\text{Ep.D2}=80 \text{ nm}$ et $\text{Ep.M1}=10 \text{ nm}$ (D1, figure 3) répondent à l'équation de revendication 4.

revendication 6: $\text{Ep.D1}=65 \text{ nm}$ (D1, figure 4)

revendication 7: l'épaisseur ITO est 30 nm (D1, figure 3)

revendication 10: l'indice de réfraction de Si_3N_4 à une longueur d'onde de 550 nm est compris entre 1.6 et 2.5

revendication 14: abrégé, figures 2,3

revendication 14: voir point VIII

Ainsi l'objet de ces revendications n'est pas non plus nouveau.

- 1.3 Toutes les caractéristiques de revendication 1 sont également décrites dans le document D2 (colonne 1, ligne 8-15; tableau 1).

Les caractéristiques additionnelles de revendication 5 sont également décrites dans D2: e.g. exemple 1: Ep.D2=85 nm, Ep.D1=40 nm.

2 Activité inventive

La présente demande ne remplit pas les conditions de brevetabilité, l'objet des revendications 12 et 13 n'impliquant pas d'activité inventive.

- 2.1 Le sujet de la revendication 3 et 4 diffère de D1 et D2 en ce que les couches diélectriques de l'électrode ne comprennent pas de couche à base d'oxyde d'indium.

Cette caractéristique permet de réduire le coût de production.

Le problème que se propose de résoudre cette caractéristique peut donc être vu comme étant de réduire le coût de production.

Cependant, ce problème et sa solution sont bien connus dans l'état de l'art. Le document D3, par exemple, décrit l'utilisation d'une électrode multicouche dont les couches diélectriques de l'électrode ne comprennent pas de couche à base d'oxyde d'indium afin de réduire le coût (abrégé, alinéa 6, 63).

Ainsi il serait évident pour l'homme du métier désirant de réduire le coût de production de l'électrode multicouche, d'utiliser la solution décrite dans D3.

Ainsi le sujet de ces revendications n'est pas inventif.

Ad point VIII

La revendication 15 ne satisfait pas à l'exigence de clarté, car l'objet de la protection demandée n'est pas clairement défini. La revendication tente de définir l'objet par le résultat recherché (une luminance $\geq 85\%$..., un CRI > 70 ,

un Delta de couleur < 2.0), ce qui revient simplement à énoncer le problème sous-jacent, sans indiquer les caractéristiques nécessaires pour parvenir à ce résultat.