



## (12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 1961613 B

(45) 授权公告日 2011.06.29

(21) 申请号 200580017180.3

H05B 33/12(2006.01)

(22) 申请日 2005.03.23

H05B 33/14(2006.01)

H05B 33/26(2006.01)

(30) 优先权数据

092618/2004 2004.03.26 JP

(56) 对比文件

(85) PCT申请进入国家阶段日

2006.11.27

CN 1447629 A, 2003.10.08, 说明书第4页倒数1-2段, 第9页倒数1-2段, 第30页倒数1-4段, 第38-39页实施例3、附图15.

(86) PCT申请的申请数据

PCT/JP2005/005224 2005.03.23

US 2004/0012980 A1, 2004.01.22, 说明书[0002], [0014-0015], [0125-0129], [0130-0134]、图5-7.

(87) PCT申请的公布数据

W02005/094130 JA 2005.10.06

JP 平9-129375 A, 1997.05.16, 权利要求1-2, 说明书[0026], [0046]段.

(73) 专利权人 松下电工株式会社

地址 日本大阪府

JP 昭61-156691 A, 1986.07.16, 权利要求1-2, 第2页<实施例>、图1.

专利权人 罗姆股份有限公司

US 2002/0061418 A1, 2002.05.23, 说明书[0090], [0120-0124], [0176-0177]段、图1, 图15.

(72) 发明人 井出伸弘 远藤润 城户淳二

(74) 专利代理机构 北京市柳沈律师事务所  
11105

JP 2005-31251 A, 2005.02.03, 全文.

代理人 封新琴 巫肖南

审查员 许晓昕

(51) Int. Cl.

H01L 51/52(2006.01)

H01L 51/54(2006.01)

H05B 33/02(2006.01)

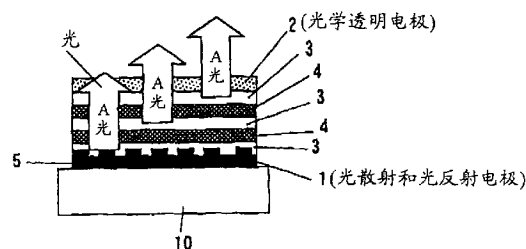
权利要求书 1 页 说明书 17 页 附图 5 页

(54) 发明名称

有机发光器件

(57) 摘要

本发明提供一种有机发光器件,其可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性;相对于膜厚的波动而言,其发光亮度和发光颜色的变化很小;且可增加光的使用效率。本发明的有机发光器件在阳极1和阴极2之间具有多层发光层3,该发光层3由等势面形成层4或电荷产生层4彼此隔开。本发明的特征在于,在该有机发光器件的内部和外部的至少一个部分具有光散射器件5,以用于散射自该发光层3发光的光。在光由该光散射器件5散射的情况下,该有机发光器件可通过输出自发光层3发光的光来降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。



A 光  
2 (光学透明电极)  
1 (光散射和光反射电极)

1. 一种有机发光器件,其在阳极和阴极之间具有多层发光层,所述发光层由等势面形成层或电荷产生层彼此隔开,

其中所述有机发光器件至少在其内部或外部之一具有光散射器件,以用于散射自所述发光层发出的光,且其中

所述等势面形成层或所述电荷产生层在所述发光层和所述发光层之间形成,且使所述多层发光层彼此隔开,且

通过形成所述等势面形成层或所述电荷产生层而制成所述光散射器件,从而使其具有光散射特性。

2. 一种有机发光器件,其在阳极和阴极之间具有多层发光层,

所述发光层由等势面形成层或电荷产生层彼此隔开,

其中所述阳极和所述阴极均由光学透明电极形成,

将光反射元件配置在一个光学透明电极的与所述发光层相反的侧上,

将所述光反射元件和所述发光层之间的距离设置为实质上不发生光干涉的距离,且所述发光层和所述光反射元件之间的所述距离为  $1\mu\text{m}$ – $1\text{mm}$ 。

3. 如权利要求 2 所述的有机发光器件,其中

所述多层发光层含有至少两种不同发光颜色的发光层。

4. 如权利要求 3 所述的有机发光器件,其中

该有机发光器件的发光颜色为白色。

## 有机发光器件

### 技术领域

[0001] 本发明涉及发光器件,其用于平板显示器、液晶显示器(LCD)的背景光、照明设备的光源、照明(illuminations)以及信号的光源。

### 背景技术

[0002] 通常,在已知并公开作为有机电致发光器件(有机EL器件)的有机发光器件中,为透明电极的阳极、空穴输送层、有机发光层、电子注入层以及阴极依次堆积在透明基底的一侧。当在阳极和阴极之间施加电压时,通过电子注入层注入的电子,和通过空穴输送层而注入的空穴在发光层中复合,产生激发态并且发出光。通过透明电极和透明基底获得自该发光层发出的光。

[0003] 近年来,在这样的有机发光器件中,人们已经提出了所谓的多光子器件,从而实现了高强度发光和很长的寿命,在该器件中,在阳极和阴极之间堆积多层有机发光层,并在每一相邻发光层之间提供等势面形成层(等势面形成层)或电荷产生层(参见日本未审查专利公开 No. 11-329748,日本未审查专利公开 No. 2003-45676,日本未审查专利公开 No. 2003-272860 等等)。

[0004] 图 12 显示了一种有机发光器件的结构实例,其形成为这样的多光子器件,其中多层发光层 3 以这样的方式堆积在阳极 1 和阴极 2 之间,其中在每一相邻的发光层 3 之间提供等势面形成层 4 或电荷产生层 4,且它们堆积在透明基底 10 的表面上。将阳极 1 形成光学透明电极,将阴极 2 形成光反射电极。尽管将空穴输送层和电子注入层形成在该发光层 3 的两侧,但在图 12 中未显示该空穴输送层和该电子注入层。通过由等势面形成层 4 或电荷产生层 4 隔开多层发光层 3,该多层发光层 3 好像串联连接一样可同时发光,并且结合来自每一发光层 3 的光,由此可实现对于常规有机发光器件(有机EL器件)而言不可能的高电流效率和量子效率,并可实现高强度发光(参见日本未审查专利公开 No. 2003-45676,以及日本未审查专利公开 No. 2003-272860)。

[0005] 有机发光器件的结构特征在于:其为具有约光波波长膜厚的膜器件;在该器件内,其具有折射率阶差(refractive index step)或由金属表面形成的反射面;且其自发光层发出光,该发光层为高折射率介质。在这种结构中,由于全反射,可在高折射率介质如有机膜的发光层、基底以及电极中发生光干涉作用或光限制的现象,结果观察到发光亮度和发光光谱的角度依赖性、膜厚依赖性以及光使用效率的恶化。这些问题发生在上述有机发光器件中,其为具有多层发光层的多光子器件。至于该光干涉作用,通过适当使用它,可改善色纯和控制方向性等等,特别地,其在用于平板显示器等中很有用。例如日本未审查专利公开 No. 7-240277 和日本未审查专利公开 No. 2000-323277 公开了这样的事实,通过将发光层和光反射电极之间的光学距离调节到  $1/4$  波长的偶数倍数或者通过将发光层和最大折射率阶差位置之间的光学距离调节到  $1/4$  波长的偶数倍数,可增强波长,特别地,已知发光层和光反射电极之间的光学距离对发光光谱具有非常大的影响。上述日本未审查专利公开 No. 2003-272860 还公开了可以获得最高效率光发射的事实,以及通过将每一发光层的发光

点和光反射电极之间所有的光学膜厚设置为  $1/4$  波长的奇数倍数, 发光光谱的形状将变得很稀的事实。

[0006] 但是, 在以下有机发光器件中, 其中通过优化发光层和光反射电极之间的光学距离或者发光层和最大折射率阶差位置之间的光学距离 (即, 器件的厚度) 来改善色纯等, 即, 当膜厚改变时, 发光亮度以及发光颜色的波动变得更大。这意味着在该有机发光器件的制造过程中, 可允许的膜厚的波动变得更小, 且其直接与生产率问题有关。特别地, 在上述有机发光器件中, 膜厚控制的精确性和必然性进一步增加, 这是因为任意层膜厚的异常性甚至可对其它层的光学位置产生影响, 该器件具有这样的结构, 其中发光层和等势面形成层或者电荷产生层堆积。

[0007] 此外, 在上述日本未审查专利公开 No. 2003-272860 中, 尽管将发光层和光反射电极之间的光学距离设置为  $1/4$  波长的奇数倍数 ( $2n+1$ , 其中  $n = 0, 1, 2, \dots$ ), 但是已知亮度和光谱的角度依赖性随着  $n$  值的增加而增加。也就是说, 在仅具有一层发光层的有机发光器件中, 相对于膜厚的变化而言, 发光亮度和发光颜色的波动不一定很大, 因为通常以相当于“ $n = 0$ ”的光学距离来设计这样的器件, 但是在上述具有多层发光层的有机发光器件中, 因为在  $1/4$  波长 ( $2n+1$ ) 倍的位置处设置每一发光层, 所以随着层数量的增加, 特定波长明显增强, 结果, 存有这样的问題, 即可获得与发光层原始所具有的光谱十分不同的发光光谱, 且角度依赖性变得很大。

[0008] 因此, 尽管上述具有多层发光层 (由等势面形成层或者电荷产生层隔开) 的有机发光器件确实可实现常规有机发光器件不可能实现的高电流效率和量子效率, 但是其不一定具有期望特性的发光光谱和角度依赖性。

[0009] 为了解决这样的问题, 在上述日本未审查专利公开 No. 2003-272860 中公开了在具有多层发光层的有机发光器件中, 通过光吸收器件吸收一部分所产生的光或者通过光漫反射器件将之漫反射来消除光干涉作用, 因此, 在实践中, 调节发光点和光反射电极之间光学膜的厚度变得不必要。但是, 在上述日本未审查专利公开 No. 2003-272860 中, 其未指出有机发光器件所具有的角度依赖性问题, 而且该问题仍未解决。

## 发明内容

[0010] 考虑到上述问题, 本发明的目的在于提供一种有机发光器件, 该器件可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性, 且相对于膜厚的波动而言, 该器件的发光亮度和发光颜色具有很小的变化, 并可增加该光的使用效率。

[0011] 本发明的有机发光器件在阳极和阴极之间具有多层发光层, 该多层发光层由等势面形成层 (形成等势面的层) 或者电荷产生层彼此隔开。本发明的特征在于该有机发光器件具有用于散射光的光散射器件, 该光自发光层发出, 且在该器件内部或外部至少之一上设置该光散射器件。

[0012] 本发明的有机发光器件通过在由光散射器件散射光的条件下来输出该发光层发出的光, 从而降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性, 结果相对于膜厚的波动而言, 发光亮度和发光颜色的变化变得很小, 由此, 可增加该光的使用效率。

[0013] 优选地, 通过由光散射和光反射电极形成阳极和阴极中的至少一个来制造该光散射器件。

[0014] 或者,优选通过由光学透明电极形成阳极和阴极中的至少一个且在该光学透明电极的发光层的相反侧上,配置光散射和光反射元件来制造该光散射器件。

[0015] 或者,还优选通过由光散射和光学透明电极形成阳极和阴极中的至少一个来制造该光散射器件。

[0016] 或者,还优选通过由光学透明电极形成阳极和阴极中的至少一个且在该光学透明电极的发光层的相反侧上,配置光散射和光学透明元件来制造该光散射器件。

[0017] 或者,还优选通过形成等势面形成层或电荷产生层来制造该光散射器件,从而使之具有光散射特性。

[0018] 或者,本发明的有机发光器件在阳极和阴极之间具有多层发光层,该发光层由等势面形成层或电荷产生层彼此隔开,本发明的特征在于阳极和阴极都由光学透明电极形成,且在发光层的相反侧上,将光反射元件配置在该光学透明电极中的一个上,并将该光反射元件和发光层之间的距离设置为实质上不产生光干涉的距离。

[0019] 在这种情况下,在下述条件下可以输出自该发光层发出的光,其中通过将光反射元件和发光层之间的距离设置为不发生光干涉的距离来阻止干涉不均匀性等的发生,由此,本发明的有机发光器件可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。结果,相对于膜厚的波动而言,发光亮度和发光颜色的变化变得很小,且可增加光的使用效率。

[0020] 多层发光层可包括至少两层不同发光颜色的发光层。在这种情况下,形成具有许多颜色的有机发光器件成为可能。

[0021] 优选地,该有机发光器件的发光颜色为白色。在这种情况下,可以将该有机发光器件用作液晶显示器的背光、照明设备的光源等等。

#### 附图说明

[0022] 图 1 为显示本发明权利要求 2 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0023] 图 2 为显示权利要求 2 另一种实施方案的一个实施例的剖面图。

[0024] 图 3 为显示权利要求 3 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0025] 图 4 为显示权利要求 3 另一种实施方案的一个实施例的剖面图。

[0026] 图 5 为显示权利要求 3 另一种实施方案的一个实施例的剖面图。

[0027] 图 6 为显示权利要求 4 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0028] 图 7 为显示权利要求 5 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0029] 图 8 为显示权利要求 6 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0030] 图 9 为显示权利要求 7 实施方案的一个实施例的剖面图。

[0031] 图 10 为显示权利要求 7 另一种实施方案的一个实施例的剖面图。

[0032] 图 11A 为用在实施例和对比实施例中的基底的平面图。

[0033] 图 11B 为用在实施例和对比实施例中的掩模的平面图。

[0034] 图 11C 为用在实施例和对比实施例中的掩模的平面图。

[0035] 图 11D 为用在实施例中的光学垫片 (spacer) 的剖面图。

[0036] 图 12 为显示常规实施例的剖面图。

[0037] 实施本发明的最佳方式

[0038] 以下参考附图,将更详细地公开本发明。

[0039] 图 1 显示了本发明权利要求 1 和 2 实施方案的一个实施例,其中多层发光层 3 堆积在阳极 1 和阴极 2 之间,其中等势面形成层 4(形成等势面的层)或者电荷产生层 4 夹在每一相邻的发光层 3 之间,这些发光层 3 堆积在基底 10 的表面上。尽管根据需要空穴输送层堆积在每一发光层 3 的阳极 1 侧上,且根据需要电子注入层堆积在其阴极 2 侧上,但在图 1(以及随后的图)中未显示该空穴输送层和该电子注入层。尽管图 1 以及随后的图显示了具有三层发光层 3、两层等势面形成层 4 或两层电荷产生层 4 的结构,但是这些图仅仅显示了一个实施例,层的数量并不局限于此。

[0040] 在图 1 的实施方案中,尽管将阳极 1 形成为光反射电极,将阴极 2 形成为光学透明电极,但是,相反地,可将阳极 1 形成为光学透明电极,将阴极 2 形成为光反射电极,且该阳极 1 和阴极 2 可以互换位置,并可将阴极 2 形成在基底 10 的表面上。

[0041] 不特别限制该光反射电极的材料和形成方法,可使用任意材料和任意形成方法,除非其抑制了本发明的效果。当将阴极 2 用作光反射电极时,可使用例如,在日本未审查专利公开 No. 10-240171 中所描述的,金属单质如 Al、Zr、Ti、Y、Sc、Ag、In、碱金属、碱土金属、稀土金属、其合金或氧化物、卤化物、这些与特开平 10-240171 号公报等中记载的金属掺杂有机层的合用等。当将阳极 1 用作光反射电极时,可使用金属如 Au、Pd、Pt 等等。或者可通过结合使用由氧化铟锡(ITO)、氧化铟锌(IZO)、氧化锡、Au 等等的金属超薄膜、或导电性高分子、或导电有机材料制成的光透过性电极,和任意反射表面来形成该光反射电极。

[0042] 至于该光学透明电极,可以使用任意材料,除非其抑制了本发明的效果。例如,可使用氧化铟锡(ITO)、氧化铟锌(IZO)、氧化锡、Au 等等的金属超薄膜、或导电聚合物、或导电有机材料、或含有掺杂剂(供体或接受体)的有机层或其层压体。

[0043] 至于可用于发光层 3 的有机发光材料或掺杂材料,可包括但不限于蒽、萘、嵌二萘、并四苯、晕苯、二萘嵌苯、酞二萘嵌苯(phthaloperylene)、苯并酞二萘嵌苯(naphthaloperylene)、二苯基丁二烯、四苯基丁二烯、邻吡喃酮、噁二唑、双苯并噁唑啉、二苯乙烯基、环戊二烯、喹啉金属络合物、三(8-羟基喹啉化)铝络合物(tris(8-hydroxyquinolate)aluminum complex)、三(4-甲基-8-喹啉化)铝络合物(tris(4-methyl-8-hydroxyquinolate)aluminum complex)、三(5-苯基-8-喹啉化)铝络合物、氨基喹啉金属络合物、苯并喹啉金属络合物、三(对三联苯基-4基)胺、1-芳基-2,5-二(2-噻吩基)吡咯衍生物、吡喃、喹吡啉酮、红荧烯、联苯乙烯苯衍生物、联苯乙烯亚芳香基衍生物、联苯乙烯胺衍生物以及多种类型的荧光染料。优选地,90-99.5pts. wt. 的发光材料选自这些化合物,且含有 0.5-10pts. wt. 的掺杂材料。不仅如上述化合物所示的、产生荧光发光的化合物,而且产生磷光发光的磷光材料以及分子内,主体部分由这些材料组成的化合物均可令人满意地使用。

[0044] 至于用于形成该空穴输送层的空穴输送材料,可使用这样的化合物,该化合物具有输送空穴的能力、具有来自阳极 1 的空穴注入效率以及到达发光层 3 的、极好的空穴注入效率、可阻止电子移动到空穴输送层以及具有极好的薄膜形成能力。具体来说,可包括但不限于蒽菁衍生物、萘菁衍生物、卟啉衍生物、芳族二胺化合物如 N, N'-二(3-甲基苯基)-(1,1'-联苯)-4,4'-二胺(TPD)以及 4,4'-二[N-(萘基)-N-苯基-氨基]联苯(a-NPD),噁唑、噁二唑、三唑、咪唑、咪唑啉酮、均二苯乙烯衍生物、二氢化吡啶衍生物、四氢咪唑、聚芳基烷烃、丁二烯、4,4',4''-三(N-(3-甲基苯基)-N-苯基氨基)三苯胺

(m-MTDATA) 以及导电性高分子的高分子材料如聚乙烯吡咯、聚硅烷、聚乙烯二氧化噻吩 (polyethylenedioxidethiophene PEDOT)。

[0045] 至于用于形成电子输送层的电子输送材料而言,可使用这样的化合物,该化合物具有输送电子的能力、具有来自阴极 2 的电子注入效率以及到达发光层 3 的、极好的电子注入效率、可阻止空穴移动到电子输送层以及具有极好的薄膜形成能力。具体来说,可使用芴 (florene)、红菲络啉、深亚铜试剂、蒽醌并二甲烷 (anthraquinodimethane)、二苯醌 (diphenquinone)、噻唑、噻二唑、三唑、咪唑、蒽醌并二甲烷等等、其化合物、金属络合物化合物以及含氮五元环衍生物。

[0046] 至于该金属络合物化合物而言,具体来说,包括但不限于为三 (8-羟基喹啉化) 铝,三 (2-甲基-8-羟基喹啉化) 铝,三 (8-羟基喹啉化) 镓,二 (10-羟基苯并 [H] 喹啉化) 铍),二 (10-羟基苯并 [H] 喹啉化) 锌、二 (2-甲基-8-喹啉化) (邻甲酚化) 镓、二 (2-甲基-8-喹啉化) (1-萘酚化) 铝。至于该含氮五元环衍生物而言,期望使用噻唑、噻唑、噻二唑、噻二唑、三唑衍生物。具体来说,其包括但不限于为 2,5-二 (1-苯基)-1,3,4-噻唑、2,5-二 (1-苯基)-1,3,4-噻唑、2,5-二 (1-苯基)-1,3,4-噻二唑、2-(4'-叔丁基苯基)-5-(4"-联苯)1,3,4-噻二唑、2,5-二 (1-萘基)-1,3,4-噻二唑、1,4-二 [2-(5-苯基噻二唑基)] 苯、2,5-二 (1-萘基)1,3,4-三唑、3-(4-联苯基)4-苯基-5-(4-叔丁基苯基)-1,2,4-三唑。还可使用用于聚合物有机电致发光器件的聚合物材料。例如,可使用聚对亚苯基及其衍生物和芴及其衍生物。

[0047] 如在日本未审查专利公开 No. 2003-45676 中公开的一样,等势面形成层 4 意味着在施加电压的过程中,在厚度方向和表面方向上实质上不具有电势差的层,具体来说,其包括电阻率低于  $1.0 \times 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$  的材料。如上所述,在该有机发光器件中,电子自阴极 2 侧注入到发光层 3 中,空穴自阳极 1 侧注入到发光层 3 中,在发光层 3 中复合,且产生激发态,由此发出光。通过等势面形成层 4 将多层发光层 3 彼此分离,在该多层发光层 3 的每一层中出现电子-空穴的复合,从而在阳极 1 和阴极 2 之间产生多束光的发射。

[0048] 至于等势面形成层 4 的材料而言,可使用在日本未审查专利公开 No. 2003-45676 中公开的一种材料。例如,其包括但不限于特别局限于含有导电材料的层、超薄到透明的金属膜、通过将介电材料和金属膜层压形成的物体以及导电有机材料。具体来说,可使用 ITO、IZO、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}_2$  以及 Al、Au/ $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 、富勒烯、金属酞菁的膜等等。

[0049] 如在日本未审查的专利公开 No. 2003-272860 中公开的一样,该电荷产生层 4 为电阻率大于或等于  $1.0 \times 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$  的电绝缘层,且其为在施加电压的过程中,用于将空穴注入到阴极 2 方向中以及将电子注入到阳极 1 方向中的层。尽管所有夹在阴极 2 和阳极 1 之间的层 (发光层 3 和电荷产生层 4 等等) 均由电绝缘层形成,但是该多层发光层 3 显得好像其通过电荷产生层 4 串联连接一样,该电荷产生层 4 将该多层发光层 3 彼此隔开,由此,可以在阳极 1 和阴极 2 之间产生多束光的发射。

[0050] 至于电荷产生层 4 的材料而言,可使用在日本未审查专利公开 No. 2003-272860 中公开的材料。优选地,但不特别局限于五氧化二钒以及具有层压结构的物体如作为电荷迁移络合物的自由基阳离子状态层以及自由基阴离子状态层。

[0051] 在图 1 的实施方案中,将阳极 1 和阴极 2 中的一个形成为光反射电极,并将另一个形成为光学透明电极,以及在光反射电极的发光层 3 侧的表面上形成凹凸,从而使其具有

光散射特性。通过这种光散射和光反射电极,形成光散射器件 5。在图 1 的实施方案中,将阳极 1 形成光散射和光反射电极,将阴极 2 形成光学透明电极。

[0052] 不特别限制用于形成不平坦光反射电极表面的方法。例如可应用在基底 10 的表面上或在用于形成布置在基底 10 表面上的电极的层的表面上形成凹凸的方法,通过喷砂工艺、磨砂工艺、冲压工艺、刻蚀工艺等等,然后在该不平坦表面上形成电极,或者可应用在基础材料如有机系列树脂和玻璃上形成膜的方法,在其上分散多种颗粒如树脂珠、玻璃、中空玻璃珠、氧化硅、氧化钡、钛氧化物等等,通过涂覆或者溶胶-凝胶方法从而形成具有不平表面的膜,然后在该不平坦表面上形成电极。或者可应用在基底 10 的表面上,通过光致抗蚀剂等等形成不平图案、然后在该不平图案上形成电极的方法,或者应用通过掩模等等形成厚度局部不同的电极的方法。或者还可使用多种将在另一基础材料上形成的凹凸转移或粘贴到该基底上,而不直接在该基底 10 表面上形成凹凸的方法。该光反射电极表面凹凸的大小只要满足散射光的特点即可,可根据形成方法适当选择。该光反射电极凹凸的图案可是随机的,或者必要时也可以是规定大小的波带片(zone plate)或衍射光栅。优选地,根据计划发光的波长适宜选择大小、图案以及平坦度的方向,该平坦度形成在基底 10 上预先确定的位置上。

[0053] 在如上形成的图 1 的有机发光器件中,部分自每一层发光层 3 发出的光传播到阴极 2 侧并自阴极 2 输出,该阴极 2 为光学透明电极,其它自每一发光层 3 传播到阳极 1 侧的光由该阳极 1 反射并自阴极 2 输出,该阳极 1 为光反射电极。此时,因为该阳极 1 也为光散射电极,所以该光由阳极 1 的表面散射和反射。因此,该散射反射光自光学透明电极的阴极 2 以任意方向输出,且不对自发光层 3 传播到阴极 2 侧的光产生光干涉,所以可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。结果,相对于该有机发光器件的每一层膜厚的波动而言,发光亮度和发光颜色的变化变得很小,由此可增加该光的使用效率。

[0054] 图 2 显示了本发明权利要求 1 和 2 其它实施方案的一个实施例。在图 1 的实施方案中,尽管将配置在基底 1 上的电极形成得具有光散射特性和光反射特性,但在这种实施方案中,将配置在该基底 1 上的电极形成光学透明的,且将配置在除基底 1 之外的部分上的电极形成具有光散射特性和光反射特性。在图 2 的实施方案中,将阴极 2 形成光散射和光反射电极,将阳极 1 形成光学透明电极。

[0055] 在图 2 的实施方案中,将在发光层 3 侧上的光反射电极的表面形成得不平坦,从而使其具有光散射特性。至于用于形成该凹凸的方法,可应用通过掩模等等使配置在发光层 3 上的电子注入层的膜厚变化,从而形成不平坦层,然后在其上形成电极的方法。其它构造与图 1 相同。

[0056] 在这种实施方案中,部分自每一发光层 3 发出的光传播到阳极 1 侧,并通过该阳极 1 和基底 10 输出,该阳极为光学透明电极,该基底由玻璃等等制成,从而透明的,其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光由阴极 2 反射,并通过阳极 1 和基底 10 输出,该阴极为光反射电极。此时,因为阴极 2 也为光散射电极,所以光由该阴极 2 的表面散射和反射。因为该被反射的光通过光学透明阳极 1 和基底 10 以任意方向输出,且不对自发光层 3 传播到阳极 1 侧的光产生光干涉,所以可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0057] 图 3 显示了本发明权利要求 1 和 3 实施方案的一个实施例。将阳极 1 和阴极 2 都形成光学透明电极,且在发光层 3 的相反侧上,在光学透明阳极 1 和光学透明阴极 2 中的

一个上配置光散射和光反射元件 6。在图 3 的实施方案中,将该光散射和光反射元件 6 配置在阴极 2 的与发光层 3 相反的侧上,该阴极为光学透明电极。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。通过这种光散射和光反射元件 6 形成光散射器件 5。不需要直接在电极表面上形成光散射和光反射元件 6,可在其光学近程 (optical proximity) 中形成该元件。

[0058] 至于该光散射和光反射元件 6 而言,可由光反射膜(如通过气相沉积、溅射以及其它任意方法、由铝、铬、银等的金属膜形成的反射膜、其上施加反射颗粒的反射膜、含有多层电介质膜的反射膜等等)形成该元件 6,该膜在电极侧的表面具有光散射特性。不特别限制用于形成该光散射特性的方法,例如通过上述多种方法(其在用于形成不平坦表面的方法中得以解释)形成不平坦表面的方法、通过施加基础材料和颗粒(其彼此具有不同的折射率)的混合物来形成光散射层的方法、在用于最终产生多个元件的结构中,由溶胶-凝胶方法形成光散射层的方法、通过内部具有空腔的层或多种材料的相分离来形成显示散射特性的层的方法以及通过在表面上排列或分散显微颗粒来形成具有光散射特性或衍射特性的层的方法。或者,还可以通过结合后述光反射层 6a 和光散射层 6b 来形成光散射和光反射元件 6。其它结构与图 1 相同。

[0059] 在如上形成的图 3 的有机发光器件中,自每一发光层 3 发出的部分光传播到阳极 1 侧,并通过阳极 1 和基底 10 输出,该阳极是光学透明电极,该基底由玻璃等等制成,从而是光学透明的,其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光在经过阴极 2 之后,由该光散射和光反射元件 6 反射,并通过该阳极 1 和基底 10 输出。此时,因为光由光散射和光反射元件 6 散射和反射,该散射反射光通过光学透明的阳极 1 和基底 10 以任意方向输出,且不对自发光层 3 传播到阳极 1 侧的光产生光干涉。因此,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0060] 图 4 显示了本发明权利要求 1 和 3 其它实施方案的一个实例。在这种实施方案中,将阳极 1 和阴极 2 都形成成为光学透明电极,且将光散射和光反射元件 6 配置在光学透明基底 10 的阳极 1 的相反侧的外表面上。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。可通过与图 3 实施方案相同的方法来形成光散射和光反射元件 6。可直接在基底 10 上形成该元件 6,或者可在另一个基础材料上独自形成该元件,然后根据需要将之转移和粘贴 (paste) 到该基底上。或者,该光学透明基底 10 自身可具有光散射特性。不特别限制该光散射基底 10 的材料和结构,例如可使用通过多种聚合物的混合和相偏析方法得到散射特性的材料、通过局部含有具有不同折射率的成分或反射成分而具有散射特性的材料。其它结构与图 1 相同。

[0061] 在这种实施方案中的有机发光器件中,自每一发光层 3 发出的部分光传播到阴极 2 侧,并通过该阴极 2 输出,该阴极为光学透明电极,其它自每一发光层 3 传播到阳极 1 侧的光在经过阳极 1 和基底 10 之后,由该光散射和光反射元件 6 反射,并自阴极 2 输出。此时,因为该光由光散射和光反射元件 6 散射和反射,该散射反射光通过光学透明阴极 2 以任意方向输出,且不会对自发光层 3 传播到阴极 2 侧的光产生光干涉。因此,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0062] 图 5 显示了本发明权利要求 1 和 3 其它实施方案的一个实施例。将阳极 1 和阴极 2 都形成成为光学透明电极,将光散射和光反射元件 6 配置在阳极 1 和基底 10 之间。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。在图 5 的实施方案中,使光散射和光反射元件 6 形成成为在阳极 1 的相反侧的光反射层 6a 和在阳极 1 侧上的光散射层 6b 的两层结构。

[0063] 不特别限制光反射层 6a 的种类和形成方法,但可应用通过气相沉积、溅射以及任

意其它方法形成的铝、铬、银等等的金属膜、其中施加有反射颗粒的层、以及由电介质等的多层膜形成的层等等。

[0064] 不特别限制光散射层 6b 的种类和形成方法,例如可应用通过上述多种方法(其在用于形成不平坦表面的方法中得以解释,该表面用作散射层)在其中形成凹凸的层、通过涂覆基础材料和颗粒(其彼此具有不同的折射率)的混合物形成的散射层、在用于最终产生多个元件的结构中,由溶胶-凝胶方法形成的散射层、内部具有空腔的层、通过多种材料的相分离显示散射特性的层以及通过在表面上排列或分散显微颗粒来获得光散射特性或衍射特性的层。可将这些层 6a 和 6b 直接形成在基底 10 上,或者将之独自形成在另一基础材料上,然后根据需要之转印和粘贴到该基底上。其它结构与图 1 相同。

[0065] 在这种实施方案中的有机发光器件中,自每一发光层 3 发出的部分光传播到阴极 2 侧,并通过该阴极 2 输出,该阴极为光学透明电极,其它自每一发光层 3 传播到阳极 1 侧的光在经过阳极 1 之后,由该光反射层 6a 反射,并通过阴极 2 输出。此时,因为当该光由光反射层 6a 反射时,其由光散射层 6b 散射,该散射反射光通过光学透明阴极 2 以任意方向输出,且不会对自发光层 3 传播到阴极 2 侧的光产生光干涉。因此,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0066] 图 6 显示了本发明权利要求 1 和 4 的实施方案的一个实施例,其中阳极 1 和阴极 2 中的一个由光反射电极形成,另一个由光散射和光学透明电极形成。光散射器件 5 由这种光散射和光学透明电极形成。在图 6 的实施方案中,在基底 10 侧上,阳极 1 由光散射和光学透明电极形成,在基底 10 的相反侧上,阴极 2 由光反射电极形成。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。

[0067] 不特别限制该光散射和光学透明电极的种类和形成方法,例如可应用通过使用掩模形成具有不平坦形状的光学透明电极来获得光散射特性的方法、通过局部蚀刻光学透明电极获得不平坦形状从而获得光散射特性的方法、通过预先如上所述在基底 10 的表面上形成不平坦形状并在其上形成光学透明电极,从而形成不平坦形状来获得光散射特性的方法、通过形成含有多种材料(彼此折射率不同)的光学透明电极来获得光散射特性的方法以及通过施加透明导电材料如 ITO 和折射率与透明导电材料不同的微粒如硅石,然后将之燃烧从而形成折射率局部不同的电极元件来获得光散射特性的方法。其它结构与图 1 相同。

[0068] 在如上形成的、图 6 的有机发光器件中,自每一发光层 3 发出的部分光传播到阳极 1 侧,并通过该阳极 1 和具有光透过性的基底 10 输出,该基底由光学透明的玻璃等等制成,其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光由光反射阴极 2 反射,并通过阳极 1 和基底 10 输出。此时,因为将该阳极 1 形成得具有光散射特性和光学透明性,所以当光经过该阳极 1 时,其被散射。因此,传播到该阳极 1 侧的光和该反射光均通过阳极 1 和基底 10 在散射状态,以任意方向输出,由此,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0069] 图 7 显示了本发明权利要求 1 和 5 的实施方案的一个实施例,其中阳极 1 和阴极 2 中的一个由光反射电极形成,另一个由光学透明电极形成。将光散射和光反射元件 7 配置在光学透明电极的发光层 3 的相反侧上。光散射器件 5 由这种光散射和光学透明元件 7 形成。在图 7 的实施方案中,在基底 10 侧上,阳极 1 由光学透明电极形成,在基底 10 的相反侧上,阴极 2 由光反射电极形成。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。

[0070] 可由上述光散射和光学透明电极或者与光散射层 6b 相似的层等等形成该光散射和光学透明元件 7。可直接在该光学透明电极上形成该光散射和光反射元件 7, 或者可在该光学透明电极和该元件 7 之间插入另一个元件。

[0071] 尽管构成该光散射和光反射元件 7 的层材料的折射率不必取决于两侧上两种材料的折射率, 但是当将该光散射和光反射元件 7 配置在折射率不同的两种材料之间如配置在光学透明电极和基底 10 之间时, 优选当形成该光散射和光反射元件 7 的层材料由一种材料组成时, 该层材料的折射率接近该两种材料中任一材料的折射率, 且当该层材料由两种或多种材料组成时, 优选一种折射率接近一侧的折射率, 且另一折射率接近另一侧的折射率。在这种情况下, 可以降低射入光散射和光反射元件 7 或者自该光散射和光反射元件 7 输出的光的全反射百分比, 结果, 可以增加光的使用效率。作为参考, 不管是否将光学透明电极配置在基底 10 上, 或者是否将该光反射电极配置在基底 10 上, 当为了形成该有机发光器件, 在基底 10 上形成该凹凸时, 该凹凸不仅影响直接在上方的电极, 而且影响有机层如发光层 3、等势面形成层 4 或电荷产生层 4 以及在相反侧上的阳极 1 和阴极 2 的部分形状或整体形状, 且可将每一层都制成不平坦的形状。但是, 只要其不严重影响所获得的有机发光器件, 这就不会成为问题。

[0072] 在如上形成的图 7 的有机发光器件中, 部分自每一发光层 3 发出的光传播到阳极 1 侧, 并通过该光学透明阳极 1 和基底 10 输出, 该基底由光学透明的玻璃等等制成, 其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光由光反射阴极 2 反射, 并通过阳极 1 和基底 10 输出。此时, 因为将该光散射和光反射元件 7 配置在阳极 1 的外表面上, 所以当光自阳极 1 经过该光散射和光反射元件 7 时, 其在此时被散射。因此, 传播到该阳极 1 侧的光和该反射光均以散射的状态, 并且反射光通过基底 10, 向任意方向输出, 由此, 可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0073] 图 8 显示了本发明权利要求 1 和 6 的实施方案的一个实施例, 其中将配置在相邻发光层 3 之间的等势面形成层 4 或电荷产生层 4 形成得具有光散射特性。散射器件 5 由该光散射性的等势面形成层 4 或这种电荷产生层 4 形成。在图 8 的实施方案中, 在基底 10 侧上, 阳极 1 由光学透明电极形成, 在基底 10 的相反侧上, 阴极 2 由光反射电极形成。当然, 可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。

[0074] 至于用于形成等势面形成层 4 或电荷产生层 4、从而使其具有光散射特性的方法而言, 例如可应用在如上形成等势面形成层 4 或电荷产生层 4 的过程中, 通过使用多个掩模使层 4 的厚度局部不同地形成等势面形成层 4 或电荷产生层 4 的方法、形成层 4 从而使其内部局部具有不同成分的方法、通过浮脱 (liftoff) 和激光处理等等去除部分电荷产生层 4 的方法以及沿电荷产生层 4 的厚度方向, 在任意位置局部形成导电膜如透明导电膜和金属膜的方法。当在该器件结构中形成多个等势面形成层 4 或电荷产生层 4 时, 仅仅是该等势面形成层 4 或该电荷产生层 4 中的任意一层必须具有光散射特性, 并不是所有等势面形成层 4 或电荷产生层 4 都必须具有光散射特性。其它结构与图 1 相同。

[0075] 在如上形成的图 8 的有机发光器件中, 部分自每一发光层 3 发出的光传播到阳极 1 侧, 并通过该光学透明阳极 1 和基底 10 输出, 该基底由光学透明的玻璃等等制成, 其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光由光反射阴极 2 反射, 并通过阳极 1 和基底 10 输出。此时, 因为位于该器件中的等势面形成层 4 或电荷产生层 4 具有光散射特性, 所以当光经过该

等势面形成层 4 或该电荷产生层 4 时,其被散射。因此,传播到该阳极 1 侧的光和该反射光均以散射的状态通过阳极 1 和基板 10 向任意方向输出,且不与由发光层 3 传播到阳极 1 侧的光发生干涉。所以,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。

[0076] 图 9 显示了本发明权利要求 7 的实施方案的一个实施例,其中,阳极 1 和阴极 2 都由光学透明电极形成,且在发光层 3 的相反侧上,将光反射元件 8 配置在阳极 1 和阴极 2 中的一个上。在图 8 的实施方案中,为了输出发射光,将光反射元件 8 配置在阴极 2 的外侧,该阴极 2 放置在形成了光学透明性的基底 10 的相反侧上发光。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。此外,将该光反射元件 8 配置在远离阴极 2 的位置上,从而使发光层 3(将其放置在光输出侧的相对端)和该光反射元件 8 的反射表面之间的距离长于或等于实质上不发生光干涉的距离。不特别限制发光层 3 和光反射元件 8 的反射表面之间的距离,但是优选地,其在约  $1\mu\text{m}$ – $1\text{mm}$  的范围内。如果该距离小于  $1\mu\text{m}$ ,可发生一定程度的光干涉,如果该距离超过  $1\text{mm}$ ,特别是当发光区域很小时,在以除垂直方向以外的方向观察时,可看见发光位置的非直线性 (misalignment)。

[0077] 在图 9 的实施方案中,将光学垫片 11 作为光学缓冲元件配置在发光层 3 和光反射元件 8 之间,从而将发光层 3 和光反射元件 8 之间的距离设置为长于或等于实质上不发生光干涉的距离。至于该光学垫片 11 的材料和形成方法而言,只要其具有很高的透光度且不影响该有机发光器件,可使用任意材料和方法。例如,可以由透明树脂涂布、透明膜的附着、透明玻璃、由溅射、气相沉积等形成的二氧化硅膜等无机膜;或者由同样的方法形成的有机膜等形成垫片 11。当该光学垫片 11 由一种材料制成时,优选其具有接近相邻材料折射率的折射率。如本发明第一种实施方案的情况,该光学垫片 11 还可具有光散射特性。当该垫片具有光散射特性,且由两种或多种、彼此折射率不同的材料成分制成时,优选任何材料成分的折射率接近相邻光学透明电极的折射率。可由上述用于形成光反射电极的材料,或者用于形成图 5 中光反射层 6a 的材料类似地形成该光反射元件 8。因为不总是需要该光反射元件 8 紧密附着到阴极 2(光学透明电极)上,所以可独自形成其上配置有光反射元件 8 的光学垫片 11,并将之放置在阴极 2 的附近,或者通过空气层或真空层,仅将该光反射元件 8 放置得接近阴极 2。其它结构与图 1 相同。

[0078] 在如上形成的图 9 的有机发光器件中,部分自每一发光层 3 发出的光传播到阳极 1 侧,并通过该光学透明阳极 1 和基底 10 输出,该基底由玻璃等等制成,从而是光学透明的,其它自每一发光层 3 传播到阴极 2 侧的光由光反射元件 8 反射通过该阴极 2,并传播到阳极 1 侧,且通过该阳极 1 和基底 10 输出。此时,因为将发光层 3 和光反射元件 8 之间的距离设置为长于或等于不发生光干涉的距离,所以经过阴极 2 并传播到光反射元件 8 的光由该光反射元件 8 的反射表面大致单向反射,且该光返回到阳极 1 侧并输出,而不会与自发光层 3 传播到阳极 1 侧的光产生干涉。因此,可降低发光亮度和发光颜色的角度依赖性。结果,相对于膜厚的波动而言,发光亮度和发光颜色变化变得很小,且可增加该光的使用效率。

[0079] 这种有机发光器件在器件的膜厚设计中具有高度的灵活性,这是因为如上所述,其不受与由光反射元件 8 反射的光的干涉作用的影响。具体来说,对于这样的有机发光器件而言,众所周知,将发光层和电极镜之间的光学距离设定得等于  $1/4$  波长的奇数倍数是不必要的。且将发光层和最大折射率阶差位置之间的光学距离设定为  $1/4$  波长偶数倍数的需要变得很小。也就是说,根据元件效率和其它特性形成任意膜厚的元件变得可能,这意味

着即使当膜厚变化时,发光颜色的色偏移也很小,且易于精确地控制膜厚。

[0080] 图 10 显示了本发明权利要求 7 的实施方案的一个实施例,其中,阳极 1 和阴极 2 都由光学透明电极形成,且将光反射元件 8 配置在基底 10 的外表面上,该基底由玻璃等等制成,从而是光学透明的。在图 10 的实施方案中,将阳极 1 配置在基底 10 的表面上,将阴极 2 放置在基底 10 的相反侧上,将光反射元件 8 配置在基底 10 的发光层 3 的相反侧之外侧上。当然,可将阳极 1 和阴极 2 互换位置。此外,在这种实施方案中,使用基底 10,将发光层 3 (其放置在自光输出侧的相对端) 和该光反射元件 8 的反射表面之间的距离设置为长于或等于实质上不发生光干涉的距离。也就是说,该基底 10 充当阳极 1 和光反射元件 8 之间的光学垫片 11。其它结构与图 9 相同。

[0081] 在如上形成的图 10 的有机发光器件中,部分自每一发光层 3 发出的光传播到阴极 2 侧,并通过该光学透明阴极 2 输出,其它自每一发光层 3 传播到阳极 1 侧的光通过该光学透明阳极 1 和基底 10,并由光反射元件 8 反射,且传播到阴极 2 侧并通过该阴极 2 输出。此时,因为将发光层 3 和光反射元件 8 之间的距离设置为长于或等于不发生光干涉的距离,所以经过阳极 1 并传播到光反射元件 8 的光由该光反射元件 8 的反射表面大致单向反射,且该光返回到阴极 2 侧并输出,而不会与自发光层 3 传播到阴极 2 侧的光产生干涉。

[0082] 在上述每一种实施方案中,多层发光层 3 可发出不同的颜色。此时,不需要每一发光层 3 发出不同的颜色,但是自该发光层 3 至少可发出两种不同的颜色。当自发光层 3 发出不同的颜色时,可自该有机发光器件输出不同颜色的混合色的光,由此,可以制造许多颜色的有机发光器件。可通过选择发光层 3 的层数量和发光颜色来调节发光颜色。当自每一发光层 3 发出的颜色为光的三原色或互补色时,自多层发光层 3 发出的混合色变成白色。因此,在这种情况下,可以将该有机发光器件用作液晶显示器的背光、照明设备的光源等等。

[0083] 上面的附图中显示的有机发光器件的结构仅仅是示例性的,本发明不局限于此,本发明可使用每一结构的任意组合。至于上面示例性器件的内部结构如基底、有机材料(如空穴注入材料、空穴输送材料、发光层基质、发光层掺质,电子输送材料以及电子注入材料)、多种材料(例如电极、用于电荷产生层的材料、用于等势面的材料、金属络合物以及多种无机材料)、堆积顺序以及有机层(例如发光层、空穴输送层、电子注入层等)叠层顺序和成分,可使用任意已知的一种,除非其违反了本发明实质。

[0084] 实施例

[0085] 接着,将使用实施例说明本发明。

[0086] (实施例 1)

[0087] 将平均粒径为 500nm 的硅石颗粒料浆施加在为无碱玻璃的基底 10 上并将其干燥,然后将其在 600° 下烘烤 50 分钟。基底 10 表面的平均平面粗糙度(planeroughness)为 130nm,且其最大的垂直间距为约 2 μm。然后,使用丙酮和异丙醇通过超声清洗和 UV/O<sub>3</sub> 清洗来清洗基底 10 的表面,然后在基底 10 的表面上通过溅射形成厚度为 2200Å 的 Cr 膜,在其上通过真空沉积形成厚度为 800Å 的 Al 膜,由此形成光散射和光反射电极(阴极 2)。

[0088] 接着,将基底 10 放置到真空蒸发系统中,在 5X10<sup>-5</sup>Pa 的减压下,使用图 11B 中显示的具有孔 12 的掩模 13,在阴极 2 上通过共沉积摩尔比率为 1 : 1 自勺浴铜灵(由 DOJINDO LABORATORIES Corporation 制造)和 Cs 来形成厚度为 200Å 电子注入层。然后在电子注入层上通过堆积厚度为 500Å 的层从而形成蓝色发光层 3,该层含有掺有 4 质量%二苯乙烯

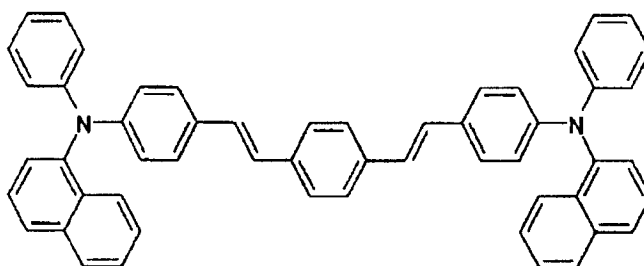
基亚芳基衍生物（化学式 1）的二萘基蒽衍生物（Kodak 制造的 BH-2）。通过以  $1\text{\AA}/\text{s}$  气相沉积速度在该发光层上沉积 4,4'-二[N-(萘基)-N-苯基-氨基]联苯（下文中称为  $\alpha$ -NPD）（由 Chemipro Fine Chemical Kaisha, Ltd. 制造），形成厚度为  $800\text{\AA}$  的空穴输送层。然后，通过以  $2\text{\AA}/\text{s}$  的成膜速度沉积五氧化二钒 ( $\text{V}_2\text{O}_5$ ) 至  $100\text{\AA}$  厚度，从而在空穴输送层上形成电荷产生层 4。

[0089] 此后，根据上述方法，在其上堆积形成厚度为  $200\text{\AA}$  的电子注入层、厚度为  $500\text{\AA}$  的发光层 3、厚度为  $700\text{\AA}$  的空穴输送层、厚度为  $100\text{\AA}$  的电荷产生层 4、厚度为  $200\text{\AA}$  的电子注入层、厚度为  $500\text{\AA}$  的发光层 3 以及厚度为  $800\text{\AA}$  的空穴输送层。

[0090] 最后在其上，以  $1\text{\AA}/\text{s}$  的气相沉积速度沉积厚度为  $100\text{\AA}$  的金，从而形成光学透明电极（阳极 1），由此制得具有 3 层发光层 3 的有机发光器件（参见图 1）。

[0091] （化学式 1）

[0092]



[0093] （实施例 2）

[0094] 在由厚度为  $0.7\text{mm}$  的无碱基底玻璃板形成的透明基底 10 的表面上进行溅射，从而形成 ITO 薄膜，由此形成厚度为  $1100\text{\AA}$  的、表面电阻 (sheet resistance) 为  $12\Omega/\square$  的光学透明电极（阴极 2）。将玻璃基底 10 和 ITO 阴极 2 蚀刻并切割成如图 11A 中所示的形状，然后用纯净水、丙酮和异丙醇分别进行超声清洗达 10 分钟，然后用异丙醇蒸汽进行蒸汽清洗 2 分钟，并将其干燥，然后用 UV 臭氧将其清洗 30 分钟。

[0095] 将与形成阴极 2 的表面相对的基底 10 的表面喷砂打毛，使其粗糙度达到 #220，然后在粗糙表面上形成厚度为  $1000\text{\AA}$  的铝膜，由此形成光散射和光反射元件 6。

[0096] 此后，正如实施例 1 中所说的那样，在基底 10 的阴极 2 上依次堆积形成厚度为  $200\text{\AA}$  的电子注入层、厚度为  $500\text{\AA}$  的发光层 3、厚度为  $700\text{\AA}$  的空穴输送层、厚度为  $100\text{\AA}$  的电荷产生层 4、厚度为  $200\text{\AA}$  的电子注入层、厚度为  $500\text{\AA}$  的发光层 3、厚度为  $700\text{\AA}$  的空穴输送层、厚度为  $100\text{\AA}$  的电荷产生层 4、厚度为  $200\text{\AA}$  的电子注入层、厚度为  $500\text{\AA}$  的发光层 3 以及厚度为  $800\text{\AA}$  的空穴输送层，最后在其上，以  $1\text{\AA}/\text{s}$  的气相沉积速度沉积厚度为  $100\text{\AA}$  的金，从而形成光学透明电极（阳极 1），由此制得具有 3 层发光层 3 的有机发光器件（参见图 4）。

[0097] （实施例 3）

[0098] 如在第二种实施例的情况下，根据实施例 1 使用基底 10 制造有机发光器件，在该基底 10 上、在阴极 2 的相对表面上形成光散射和光反射元件 6。但是，膜厚和层结构如下。依次堆积厚度为  $200\text{\AA}$ 、含有摩尔比为 1 : 1 的浴铜灵和 Cs 共沉积层的电子注入层，厚度为  $500\text{\AA}$ 、仅含有浴铜灵的电子输送层，厚度为  $300\text{\AA}$ 、通过 Alq 和红荧烯（具有 7% 重量百分比的红荧烯）共沉积形成的发光层 3，厚度为  $400\text{\AA}$  的空穴输送层，厚度为  $100\text{\AA}$  且含有氧化钒的电荷产生层 4，厚度为  $200\text{\AA}$  且含有摩尔比为 1 : 1 的浴铜灵和 Cs 共气相沉积层的电子注

入层、厚度为500Å且含有BH-2和苯乙烯基亚芳基衍生物的发光层3,厚度为700Å的空穴输送层,厚度为100Å的电荷产生层4,厚度为200Å的电子注入层,厚度为500Å且含有BH-2和苯乙烯基亚芳基衍生物的发光层3以及厚度为800Å的空穴输送层。最后在其上,以1Å/s的气相沉积速度沉积厚度为100Å的金,从而形成光学透明电极(阳极1),由此制得具有3层发光层3的有机发光器件(参见图4)。

[0099] (实施例4)

[0100] 将平均粒径为200nm的硅石颗粒添加到“ADEKA ITO擦剂(ITO-1)”(由ADEKA COPORATION制造)中,从而使ITO和硅石的重量比率为20:1,并使之混合和分散。然后,将该液体混合物旋转涂覆在无碱玻璃基底10上,并在160°下,在大气中干燥5分钟,然后在300°下将之烘烤120分钟,然后进行退火处理。将该过程重复3次,由此获得平均厚度为5300Å的ITO硅石混合膜。然后,通过抛光机将该膜抛光调整到平均厚度为4800Å、平面平均粗糙度为1.3nm。然后,通过使用离子交换水来清洗基底10,通过溅射,在该ITO硅石混合膜上形成厚度为200Å的ITO薄膜,由此形成光散射和光反射电极(阳极1)。该阳极1的表面电阻为72Ω/□,该基底10的透光性为69%,雾度为82%。

[0101] 接着,将基底10放置到真空蒸发系统中,在 $5 \times 10^{-5}$ Pa的减压下,使用图11B中所示的掩模13,通过以1Å/s的气相沉积速度沉积α-NPD至800Å的厚度从而在阳极1上形成空穴输送层。然后,在该空穴输送层上通过堆积厚度为500Å的层从而形成蓝色发光层3,该层含有掺有4质量%二苯乙烯基亚芳基衍生物(化学式1)的二萘基蒽衍生物(Kodak制造的BH-2)。然后,以1:1的摩尔比,通过共沉积浴铜灵(由DOJINDO LABORATORIES公司制造)和Cs至200Å的厚度来在该发光层3上形成电子注入层。然后,通过以2Å/s的气相沉积速度沉积五氧化二钒(V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)至100Å的厚度来形成电荷产生层4。此后,根据上述工序,在其上堆积厚度为700Å的空穴输送层、厚度为500Å的发光层、厚度为200Å的电子注入层、厚度为100Å的电荷产生层4、厚度为700Å的空穴输送层、厚度为500Å的发光层3、厚度为200Å的电子注入层。最后,以4Å/s的成膜速度、利用如图11C所示的带有孔14的掩模15将作为阴极的铝堆积在其上,厚度达到800Å,形成光反射电极(阴极2),从而形成具有3层发光层3的有机发光器件(参见图6)。

[0102] (实施例5)

[0103] 将平均颗粒直径为500nm的硅石颗粒料浆涂覆在无碱玻璃基底10上并将其干燥,然后将其在600°下烘烤50分钟,由此形成光散射和光学透明元件7。基底10(其上有光散射和光学透明元件7)表面的平均平面粗糙度为130nm,且其最大的垂直间距为约2μm。

[0104] 利用该基底1,通过在该光散射和光学透明元件7的表面上进行溅射形成ITO薄膜,从而制得厚度为1100Å、表面电阻为27Ω/□的光学透明电极(阳极1)。将玻璃基底10和ITO阳极1蚀刻并切割成如图11A中所示的形状,然后用纯净水、丙酮和异丙醇分别进行超声清洗达10分钟,然后用异丙醇蒸汽进行蒸汽清洗2分钟,并将其干燥,然后用UV臭氧将其清洗30分钟。

[0105] 然后,如实施例4中所说的那样形成每一层,由此制得具有3层发光层3的有机发光器件(参见图7)。

[0106] (实施例6)

[0107] 利用其上形成有与实施例2相似的ITO薄膜的光学透明电极(阳极1)的基底10,

如实施例 4 中所说的那样,在基底 10 的阳极 1 上形成每一层。然后,利用折射率为 1.63 的匹配油在基底 10 与阳极 1 相对的表面上粘附光散射板,“100-GM2”(由 KIMOTO CO. LTD. 制造),由此形成光散射和光学透明的元件 7,结果,制得具有 3 层发光层 3 的有机发光器件(参见图 7,但是其中该光散射和光学透明的元件 7 位于基底 10 的外表面上)。

[0108] (实施例 7)

[0109] 如实施例 5 中所述,制造具有 3 层发光层 3 的有机发光器件,其不同之处在于电子注入层的膜厚为 500Å (参见图 7)。

[0110] (实施例 8)

[0111] 使用玻璃基底 10,其上具有与实施例 2 相似的 ITO 薄膜的光学透明电极(阳极 1)。将基底 10 放置到真空蒸发系统中,在  $5 \times 10^{-5}$  Pa 的减压下,使用图 11B 中所示的掩模 13,通过以 1Å/s 的气相沉积速度沉积  $\alpha$ -NPD 至 800Å 的厚度从而在阳极 1 上形成空穴输送层。然后,在该空穴输送层上通过堆积厚度为 500Å 的层从而形成蓝色发光层 3,该层含有掺有 4 质量%二苯乙烯基亚芳基衍生物(化学式 1)的二萘基蒽衍生物(Kodak 制造的 BH-2)。然后,以 1 : 1 的摩尔比,通过共沉积浴铜灵(由 DOJINDO LABORATORIES 公司制造)和 Cs 来在该发光层 3 上形成电子注入层。

[0112] 在该电子注入层的形成过程中,首先利用图 11B 中所示的掩模 13 沉积浴铜灵和 Cs 至 100Å 的厚度,然后,通过叠放另一层线宽度为 20 μm、线间隔为 20 μm 的掩模,从而将其沉积至 300Å,由此在电子注入层表面上形成凹凸。然后,通过以 2Å/s 的成膜速度在该电子注入层的不平坦表面上沉积五氧化二钒 ( $V_2O_5$ ) 至 100Å 的厚度来形成光散射性电荷产生层 4。此后,根据上述工序,在其上堆积厚度为 700Å 的空穴输送层、厚度为 500Å 的发光层、厚度为 200Å 的电子注入层、厚度为 100Å 的光散射电荷产生层 4、厚度为 700Å 的空穴输送层、厚度为 500Å 的发光层 3、厚度为 200Å 的电子注入层。最后,以 4Å/s 的气相沉积速度、利用如图 11C 所示的带有孔 14 的掩模 15 将作为阴极的铝堆积在其上,厚度达到 800Å,从而形成光反射电极(阴极 2),由此形成具有 3 层发光层 3 的有机发光器件(参见图 8)。

[0113] (对比实施例 1)

[0114] 通过在透明基底 10 的表面上进行溅射形成 ITO 薄膜,所述基底 10 由厚度为 0.7mm 的无碱基底玻璃板形成,从而制得厚度为 1100Å、表面电阻为  $12 \Omega / \square$  的光学透明电极(阳极 1)。将玻璃基底 10 和 ITO 阳极 1 蚀刻并切割成如图 11A 中所示的形状,然后用纯净水、丙酮和异丙醇分别进行超声清洗达 10 分钟,然后用异丙醇蒸汽进行蒸汽清洗 2 分钟,并将其干燥,然后用 UV 臭氧将其清洗 30 分钟。

[0115] 接着,将基底 10 放置到真空蒸发系统中,在  $5 \times 10^{-5}$  Pa 的减压下,使用图 11B 中所示的掩模 13,通过以 1Å/s 的气相沉积速度沉积  $\alpha$ -NPD 至 800Å 的厚度从而在阳极 1 上形成空穴输送层。然后,在该空穴输送层上通过堆积厚度为 500Å 的层从而形成蓝色发光层 3,该层含有掺有 4 质量%二苯乙烯基亚芳基衍生物(化学式 1)的二萘基蒽衍生物(Kodak 制造的 BH-2)。然后,以 1 : 1 的摩尔比,通过共沉积浴铜灵(由 DOJINDO LABORATORIES 公司制造)和 Cs 至 200Å 的厚度来在该发光层 3 上形成电子注入层。然后,通过以 2Å/s 的成膜速度沉积五氧化二钒 ( $V_2O_5$ ) 至 100Å 的厚度来形成电荷产生层 4。此后,根据上述工序,在其上堆积厚度为 700Å 的空穴输送层、厚度为 500Å 的发光层、厚度为 200Å 的电子注入层、厚度为 100Å 的电荷产生层 4、厚度为 700Å 的空穴输送层、厚度为 500Å 的发光层 3、厚度为

200Å的电子注入层。最后,以4 Å/s的成膜速度、利用如图11C所示的带有孔14的掩模15将作为阴极的铝堆积在其上,厚度达到800Å,从而形成光反射电极(阴极2),由此形成具有3层发光层3的有机发光器件(参见图12)。

[0116] (对比实施例2)

[0117] 如对比实施例1中所述,制造具有3层发光层3的有机发光器件,其不同之处在于电子注入层的膜厚为50Å。

[0118] (对比实施例3)

[0119] 使用玻璃基底10,其上具有与对比实施例1相似的ITO薄膜,通过沉积铝膜至厚度为1000Å,从而在与ITO薄膜相对的基底表面上形成反射表面。

[0120] 将基底10的ITO薄膜用作光学透明的阴极2,并且如实施例1中所述的那样,在阴极2上依次堆积厚度为200Å的电子注入层,厚度为500Å的发光层3,厚度为700Å的空穴输送层,厚度为100Å的电荷产生层4,厚度为200Å的电子注入层,厚度为500Å的发光层3,厚度为700Å的空穴输送层,厚度为100Å的电荷产生层4,厚度为200Å的电子注入层,厚度为500Å的发光层3以及厚度为800Å的空穴输送层,最后在其上,以1 Å/s的气相沉积速度沉积厚度为100Å的金,从而形成光学透明电极(阳极1),由此制得具有3层发光层3的有机发光器件。

[0121] (对比实施例4)

[0122] 使用与对比实施例1相似的其上具有ITO薄膜的基底,通过沉积铝膜至厚度为1000Å,从而在与ITO薄膜相对的基底表面上形成反射表面。

[0123] 将基底10的ITO薄膜用作光学透明的阴极2,并且如实施例3中所述的那样,在阴极2上依次堆积厚度为200Å、含有摩尔比为1:1的浴铜灵和Cs共气相沉积层的电子注入层,厚度为500Å、仅含有浴铜灵的电子输送层,厚度为300Å、通过Alq和红荧烯(具有7%重量百分比的红荧烯)共沉积形成的发光层,厚度为400Å的空穴输送层,厚度为100Å且含有氧化钒的电荷产生层4,厚度为200Å的电子注入层,厚度为500Å且含有BH-2和苯乙烯基亚芳基衍生物的发光层、厚度为700Å的空穴输送层、厚度为100Å的电荷产生层4、厚度为200Å的电子注入层、厚度为500Å且含有BH-2和苯乙烯基亚芳基衍生物的发光层3以及厚度为800Å的空穴输送层。最后在其上,以1 Å/s的气相沉积速度沉积厚度为100Å的金,从而形成光学透明电极(阳极1),由此制得具有3层发光层3的有机发光器件。

[0124] 将上述每一种实施例1-8和对比实施例1-4制造的有机发光器件连接到电源(KEITHLEY型号2400)上,并以5mA/cm<sup>2</sup>的恒电流驱动,通过使用亮度光度计(“BM-9”,由TOPCON THCHNOHOUSE CORPORATION制造,视角:0.2度,A距离:45cm)测量此时的亮度。此外,通过使用多通道分析仪(“PMA-11”,由Hamamatsu Photonics K.K.制造,测试距离:5cm)测定CIE色度。这些测定均是在有机发光器件的垂直正面方向上(0°)以及相对于该垂直正面方向沿45°方向进行。

[0125] 计算在0°方向上测得的亮度和在45°方向上测得的亮度的比值,并且计算在0°方向上观测到的CIE色度坐标值CIE-x值(x1)和CIE-y值(y1)之间的差值、计算在45°方向上观测到的CIE色度坐标值CIE-x值(x2)和CIE-y值(y2)之间的差值以及((x1-x2)<sup>2</sup>+(y1-y2)<sup>2</sup>)值。这些结果示于表1中。

[0126] (表1)

[0127]

|                        | 0°                   | 45°                  | 比率/差值                                      | $(x1-x2)^2 + (y1-y2)^2$ | 0°                   | 45°                  | 比率/差值                                      | $(x1-x2)^2 + (y1-y2)^2$ |
|------------------------|----------------------|----------------------|--------------------------------------------|-------------------------|----------------------|----------------------|--------------------------------------------|-------------------------|
| 实施例1                   |                      |                      |                                            |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 753                  | 740                  | 1:0.98                                     |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.160<br>y: 0.318 | x: 0.157<br>y: 0.314 | $\Delta x$ : -0.003<br>$\Delta y$ : -0.004 | $0.25 \times 10^{-4}$   |                      |                      |                                            |                         |
| 实施例2                   |                      |                      |                                            |                         | 对比实施例3               |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 1080                 | 957                  | 1:0.89                                     |                         | 917                  | 551                  | 1:0.60                                     |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.172<br>y: 0.282 | x: 0.180<br>y: 0.301 | $\Delta x$ : +0.008<br>$\Delta y$ : +0.019 | $4.3 \times 10^{-4}$    | x: 0.138<br>y: 0.245 | x: 0.158<br>y: 0.168 | $\Delta x$ : +0.020<br>$\Delta y$ : -0.077 | $6.3 \times 10^{-3}$    |
| 实施例3                   |                      |                      |                                            |                         | 对比实施例4               |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 1739                 | 1582                 | 1:0.91                                     |                         | 1420                 | 1039                 | 1:0.73                                     |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.319<br>y: 0.371 | x: 0.327<br>y: 0.362 | $\Delta x$ : +0.008<br>$\Delta y$ : -0.009 | $1.5 \times 10^{-4}$    | x: 0.331<br>y: 0.383 | x: 0.352<br>y: 0.329 | $\Delta x$ : -0.021<br>$\Delta y$ : +0.054 | $3.4 \times 10^{-3}$    |
| 实施例4                   |                      |                      |                                            |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 473                  | 527                  | 1:1.11                                     |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.140<br>y: 0.208 | x: 0.159<br>y: 0.212 | $\Delta x$ : +0.019<br>$\Delta y$ : +0.004 | $3.8 \times 10^{-4}$    |                      |                      |                                            |                         |
| 实施例5                   |                      |                      |                                            |                         | 对比实施例1               |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 1176                 | 994                  | 1:0.85                                     |                         | 825                  | 456                  | 1:0.55                                     |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.153<br>y: 0.221 | x: 0.159<br>y: 0.233 | $\Delta x$ : +0.006<br>$\Delta y$ : +0.012 | $1.8 \times 10^{-4}$    | x: 0.132<br>y: 0.236 | x: 0.147<br>y: 0.161 | $\Delta x$ : +0.015<br>$\Delta y$ : -0.075 | $5.9 \times 10^{-3}$    |
| 实施例6                   |                      |                      |                                            |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 961                  | 769                  | 1:0.8                                      |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.140<br>y: 0.208 | x: 0.159<br>y: 0.212 | $\Delta x$ : +0.019<br>$\Delta y$ : +0.004 | $2.7 \times 10^{-4}$    |                      |                      |                                            |                         |
| 实施例7                   |                      |                      |                                            |                         | 对比实施例2               |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 790                  | 892                  | 1:1.13                                     |                         | 635                  | 600                  | 1:0.95                                     |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.159<br>y: 0.217 | x: 0.170<br>y: 0.250 | $\Delta x$ : +0.011<br>$\Delta y$ : +0.033 | $1.2 \times 10^{-3}$    | x: 0.144<br>y: 0.186 | x: 0.176<br>y: 0.232 | $\Delta x$ : +0.032<br>$\Delta y$ : +0.046 | $3.1 \times 10^{-3}$    |
| 实施例8                   |                      |                      |                                            |                         |                      |                      |                                            |                         |
| 亮度(cd/m <sup>2</sup> ) | 893                  | 825                  | 1:1.04                                     | 1:0.92                  |                      |                      |                                            |                         |
| 色度CIExy                | x: 0.165<br>y: 0.275 | x: 0.157<br>y: 0.262 | $\Delta x$ : -0.008<br>$\Delta y$ : -0.013 | $2.3 \times 10^{-4}$    |                      |                      |                                            |                         |

[0128] 如表1中所示,在实施例1-8中,在0°方向上的亮度与45°方向上的亮度比以及色度差是较小的,它证实了发光亮度和发光颜色的角度依赖性较小。

[0129] (实施例9)

[0130] 根据对比实施例1,制造有机发光器件。但是,通过面对靶子的溅射器件、利用图11C中的掩模15堆积ITO至1000Å的厚度,从而形成光学透明电极作为阴极2。如图11D中所示,在由厚度为0.4mm的玻璃形成的光学垫片11的一面上形成包括厚度为10000Å的铝膜的光反射元件8,并且利用折射率为1.5的匹配油将与光反射元件8相对的光学垫片11的表面粘附在阴极2的表面上,从而制得具有3层发光层3的有机发光器件(参见图9)。

[0131] (实施例10)

[0132] 根据实施例9,制造有机发光器件。但是电子注入层的膜厚定为50Å,并且利用折射率为1.5的匹配油将带有发光器件8的光学垫片11粘附在与阳极1相对的基底10的表面上,由此制得具有3层发光层3的有机发光器件(参见图10)。

[0133] (对比实施例5)

[0134] 根据对比实施例1制得有机发光器件。但是,其膜厚度和层结构如下。厚度为800Å的空穴输送层、厚度为500Å且含有BH-2和苯乙烯基亚芳基衍生物的发光层3、厚度为200Å的电子注入层、厚度为100Å的电荷产生层4、厚度为700Å的空穴输送层、厚度为300Å且通过Alq和红荧烯(具有7%重量百分比的红荧烯)共沉积形成的发光层3、厚度

为500Å且含有浴铜灵的电子输送层、厚度为200Å的电子注入层以及厚度为800Å由铝制成的阴极2。并且获得白色有机发光器件（参见图12）。

[0135] （实施例11）

[0136] 根据对比实施例5制得有机发光器件。但是通过面对靶子的溅射器件、以4Å/s,利用图11C中的掩模15堆积ITO至1000Å的厚度,从而形成光学透明电极作为阴极2。此外,利用折射率为1.5的匹配油将图11D中的光学垫片11粘附在阴极2的表面上,由此制得白色有机发光器件（参见图9）。

[0137] 在如实施例9-11以及对比实施例5中所述制造的有机发光器件中,以类似的方式测定亮度和CIE色度。计算在0°方向上测得的亮度和在45°方向上测得的亮度的比值,并且计算在0°方向上观测到的CIE色度坐标值CIE-x值(x1)和CIE-y值(y1)之间的差值、计算在45°方向上观测到的CIE色度坐标值CIE-x值(X2)和CIE-y值(y2)之间的差值以及 $((x1-x2)^2+(y1-y2)^2)$ 值。这些结果示于表2中。

[0138] （表2）

[0139]

|           | 0°                   | 45°                  | 比率/差值                                      | $(x1-x2)^2+(y1-y2)^2$ | 0°                   | 45°                  | 比率/差值                                      | $(x1-x2)^2+(y1-y2)^2$ |
|-----------|----------------------|----------------------|--------------------------------------------|-----------------------|----------------------|----------------------|--------------------------------------------|-----------------------|
|           | 实施例9                 |                      |                                            |                       |                      |                      |                                            |                       |
| 亮度(cd/m²) | 893                  | 890                  | 1:1.00                                     |                       |                      |                      |                                            |                       |
| 色度CIExy   | x: 0.168<br>y: 0.299 | x: 0.163<br>y: 0.288 | $\Delta x$ : -0.005<br>$\Delta y$ : -0.011 | 1.5x10-5              |                      |                      |                                            |                       |
|           | 实施例10                |                      |                                            |                       |                      |                      |                                            |                       |
| 亮度(cd/m²) | 880                  | 895                  | 1:1.02                                     |                       |                      |                      |                                            |                       |
| 色度CIExy   | x: 0.162<br>y: 0.284 | x: 0.165<br>y: 0.291 | $\Delta x$ : 0.003<br>$\Delta y$ : 0.007   | 5.8x10-5              |                      |                      |                                            |                       |
|           | 实施例11                |                      |                                            |                       | 对比实施例5               |                      |                                            |                       |
| 亮度(cd/m²) | 1265                 | 1290                 | 1:1.02                                     |                       | 1680                 | 1370                 | 1:0.82                                     |                       |
| 色度CIExy   | x: 0.323<br>y: 0.381 | x: 0.329<br>y: 0.375 | $\Delta x$ :+0.006<br>$\Delta y$ :-0.006   | 7.2x10-4              | x: 0.319<br>y: 0.379 | x: 0.362<br>y: 0.421 | $\Delta x$ : +0.043<br>$\Delta y$ : +0.042 | 3.6x10-3              |

[0140] 如表2中所示,在实施例9-11中,在0°方向上的亮度与45°方向上的亮度比以及色度差是较小的,它证实了发光亮度和发光颜色的角度依赖性较小。

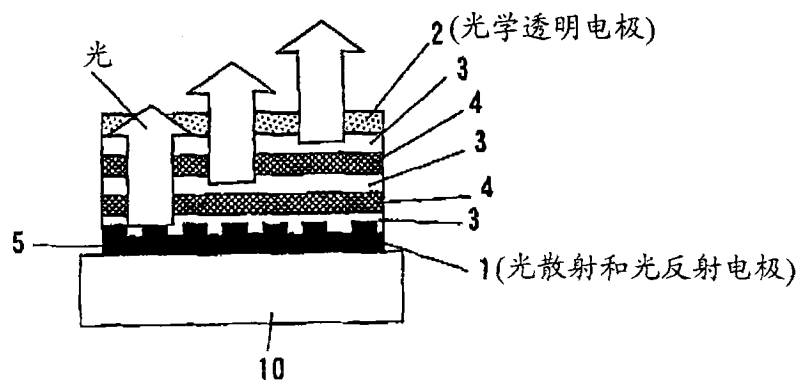


图 1

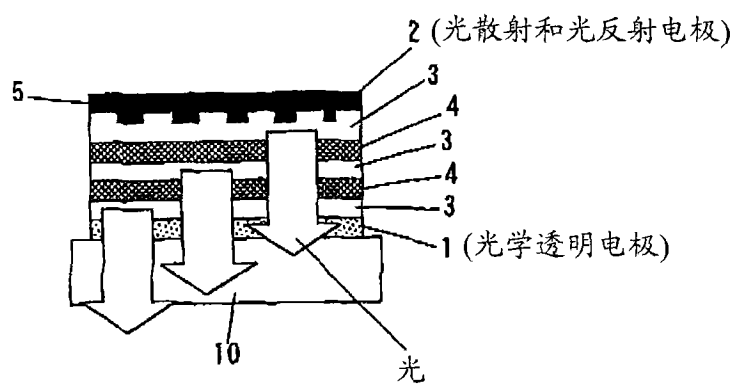


图 2

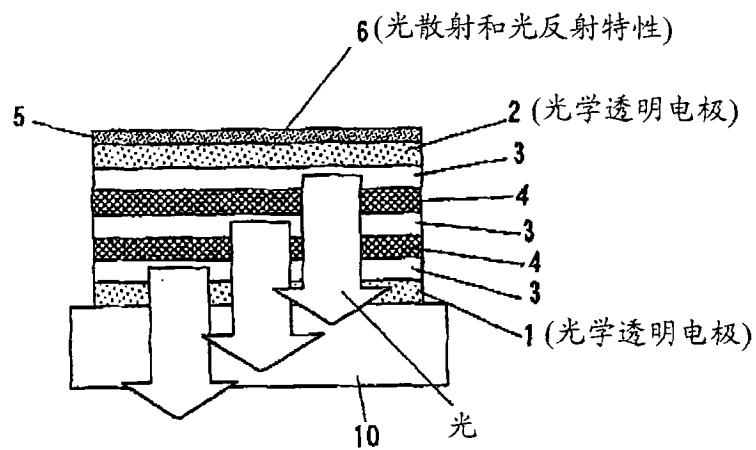


图 3

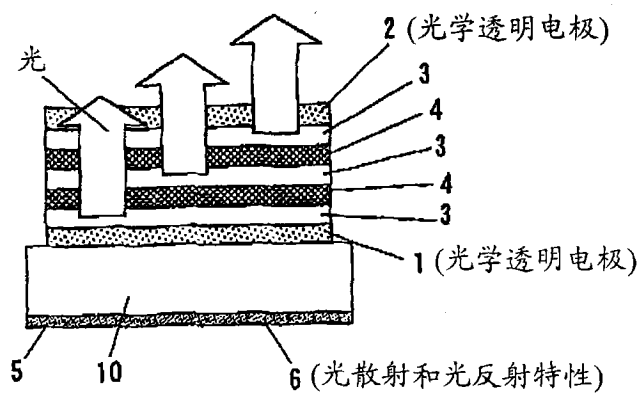


图 4

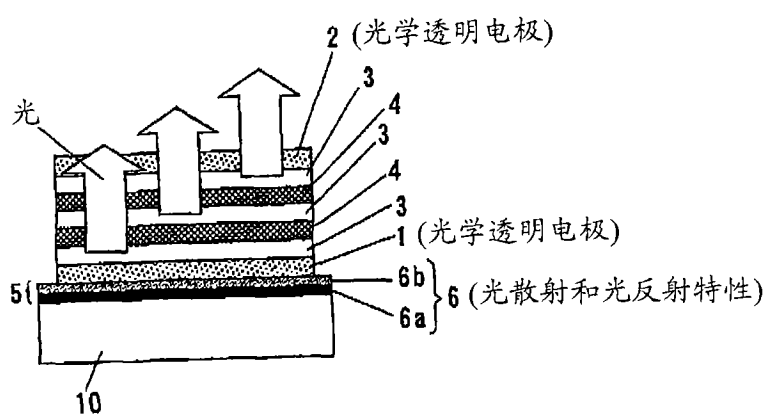


图 5

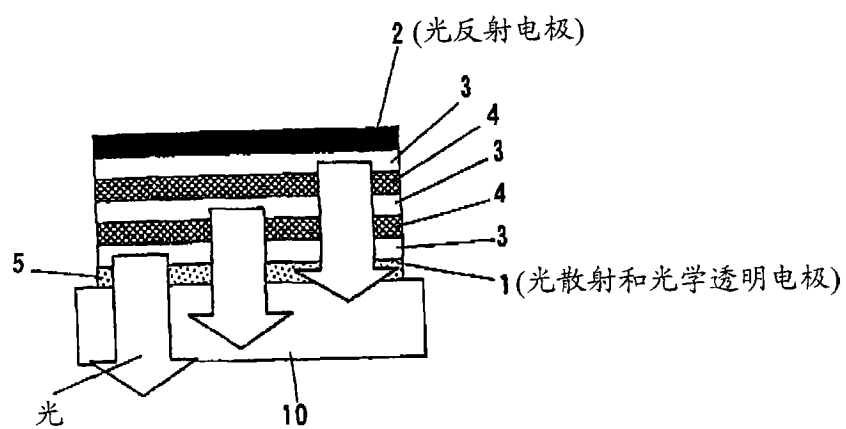


图 6

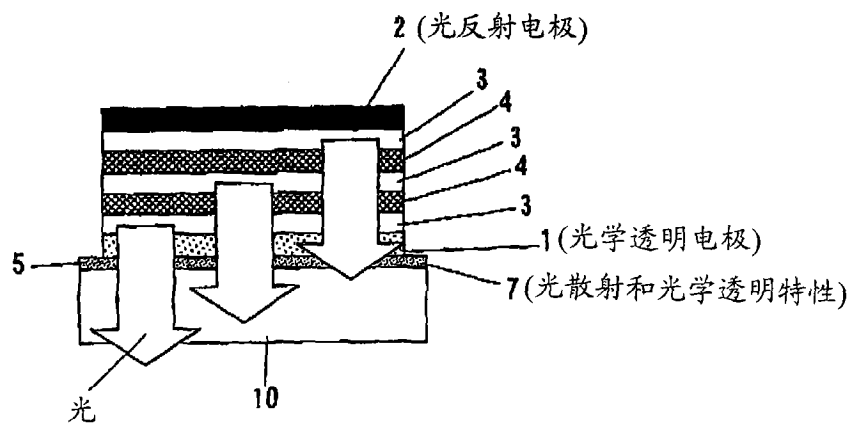


图 7

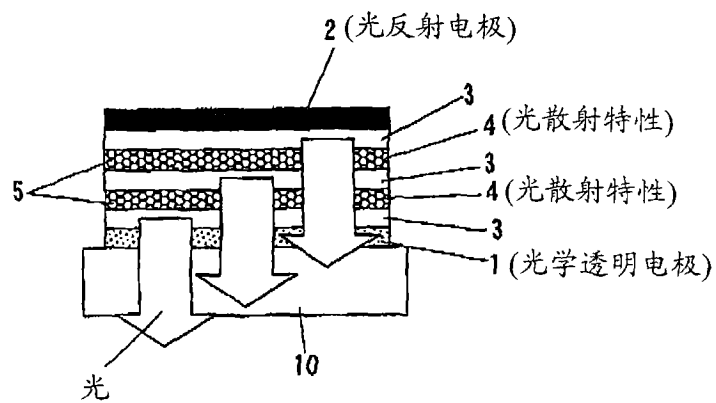


图 8

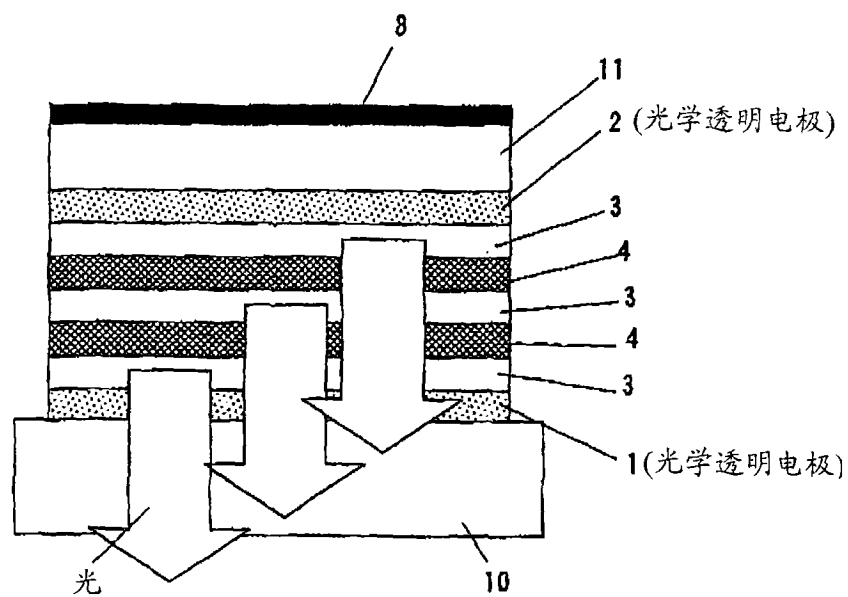


图 9

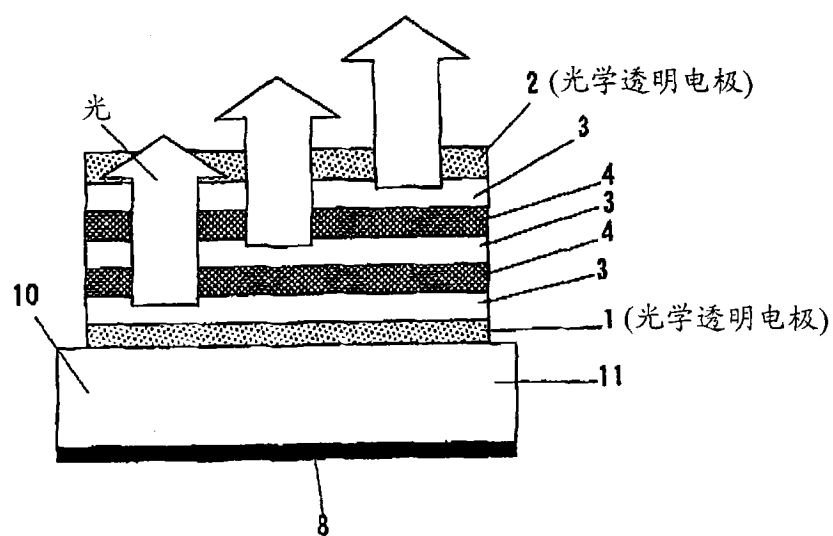


图 10

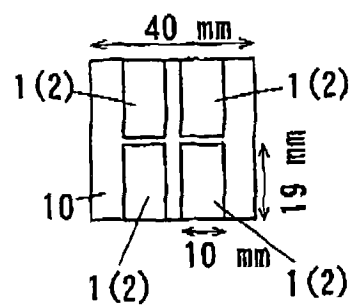


图 11A

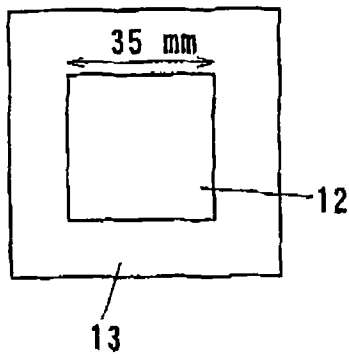


图 11B

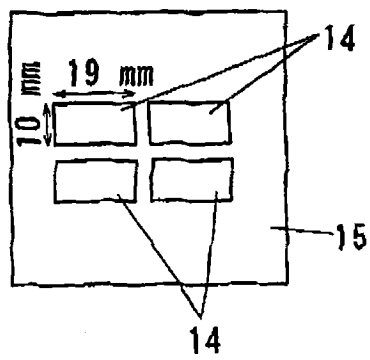


图 11C

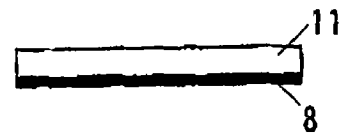


图 11D

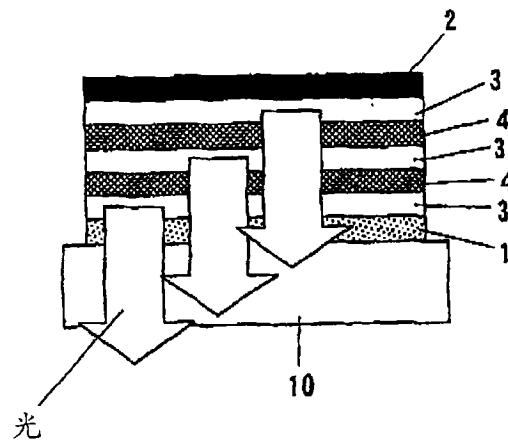


图 12