

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3656608号  
(P3656608)

(45) 発行日 平成17年6月8日(2005.6.8)

(24) 登録日 平成17年3月18日(2005.3.18)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

G09F 9/30  
H05B 33/14

F I

G09F 9/30 365Z  
G09F 9/30 338  
H05B 33/14 A

請求項の数 3 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2002-61459 (P2002-61459)	(73) 特許権者	000005821
(22) 出願日	平成14年3月7日(2002.3.7)		松下電器産業株式会社
(62) 分割の表示	特願平10-332413の分割		大阪府門真市大字門真1006番地
原出願日	平成10年11月24日(1998.11.24)	(74) 代理人	100097445
(65) 公開番号	特開2002-297061 (P2002-297061A)		弁理士 岩橋 文雄
(43) 公開日	平成14年10月9日(2002.10.9)	(74) 代理人	100103355
審査請求日	平成14年3月7日(2002.3.7)		弁理士 坂口 智康
		(74) 代理人	100109667
			弁理士 内藤 浩樹
		(72) 発明者	佐藤 徹哉
			大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
		(72) 発明者	松尾 三紀子
			大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機薄膜EL素子およびその駆動方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

正孔注入電極と電子注入電極との間に電圧を加えることで電流を流し発光を得る有機薄膜EL素子の駆動方法であって、電源の片方の極と有機薄膜EL素子の片方の極を接続するとともに、それぞれの他方の極を薄膜トランジスタを介して接続し、且つ当該トランジスタのゲート電圧保持用のメモリー容量を有し、一定の時間間隔毎に発光強度の情報または発光非発光の情報を当該メモリー容量に充放電させることにより書き込んで、発光状態を制御する駆動方法において、当該メモリー容量と並列に前記薄膜トランジスタのチャンネル層と同時に同じ成膜条件で作成した層を抵抗として配置したことを特徴とする有機薄膜EL素子の駆動方法。

【請求項2】

前記メモリー容量と前記抵抗の平均値の積より求められる時定数が、少なくとも前記の一定の時間間隔より小さく、且つ当該時間間隔の1/100の時間より大きいことを特徴とする請求項2に記載の有機薄膜EL素子の駆動方法。

【請求項3】

請求項1又は2の駆動方法により駆動される有機薄膜EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、例えば平面型自発光表示装置をはじめ通信、照明その他の用途に供する各種光

源として使用可能な自発光の素子に係る有機エレクトロルミネセンス ( E L ) 素子およびその駆動方法に関するものである。

【 0 0 0 2 】

【 従来 の 技術 】

近年平面型の表示装置としては L C D パネルが幅広く用いられているが、依然として応答速度が遅い、視野角が狭い等の欠点があり、またこれらを改善した多くの新方式においても特性が十分でなかったりパネルとしてのコストが高くなるなどの課題がある。そのような中で自発光で視認性に優れ、応答速度も速く広範囲な応用が期待できる新たな発光素子としての有機 E L 素子に期待が集まっている。

【 0 0 0 3 】

有機 E L 素子は有機物層に電極から電子、正孔を注入しその再結合によって発光を得るものであり、古くから多くの研究がなされてきたが、一般にその発光効率は低く実用的な発光素子への応用とは程遠いものであった。

【 0 0 0 4 】

そのような中で、1987年に T a n g らによって提案された素子 ( 「アプライ フィジックス レター」第 5 1 巻 1 9 8 7 年 ( C . W . T a n g a n d S . A . V a n s l y k e : A p p l . P h y s . L e t t . 5 1 ( 1 9 8 7 ) 9 1 3 . ) ) は、透明基板上に透明正孔注入電極、発光機能層、電子注入電極を有する構成の素子であって、発光機能層が正孔輸送層と発光層 ( 電子輸送層 ) を積層した構成であり、また電子注入電極として仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金として M g A g を用いたものであった。

【 0 0 0 5 】

このような電子注入電極を用いる事により高効率で比較的安定して電子を注入する事が可能となり、正孔輸送層と発光層 ( 電子輸送層 ) の界面近傍で高効率で発光を得る事が可能となった。 T a n g らはこのような構成で、10 V 以下の低い電圧で  $1000 \text{ cd/m}^2$  以上の高い輝度と、 $1.5 \text{ lm/W}$  以上の高い効率を実現している。この T a n g らの報告がきっかけとなって現在でも活発な検討が続けられている。

【 0 0 0 6 】

以下に現在一般に検討されている有機 E L 素子について概説する。

【 0 0 0 7 】

有機 E L 素子は一般に、透明基板上に正孔注入電極、発光機能層、電子注入電極の順に積層して形成し、発光機能層は正孔輸送層と発光層 ( 電子輸送層 ) などのように複数の積層膜とすることが多い。このように各層に役割を機能分離させて担わせる事により各層に適切な材料選択が可能となり素子の特性も向上する。

【 0 0 0 8 】

透明基板としては一般にコーニング 1 7 3 7 等のガラス基板が広く用いられている。板厚は  $0.7 \sim 1.1 \text{ mm}$  程度が強度と重量の観点から扱いやすい。

【 0 0 0 9 】

正孔注入電極としては I T O のスパッタ膜、エレクトロンビーム蒸着膜、イオンプレーティング膜等の透明電極が用いられる。膜厚は必要とされるシートレジスタンス値と可視光透過率から決定されるが、有機 E L 素子では比較的駆動電流密度が高いため、シートレジスタンスを小さくするため  $100 \text{ nm}$  以上の厚さで用いられることが多い。

【 0 0 1 0 】

発光機能層は種々の構成が検討されているが、トリフェニルジアミン誘導体などの正孔輸送材料を真空蒸着により数十  $\text{nm}$  膜厚に形成した正孔輸送層と、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム等の発光材料 ( 電子輸送材料 ) を真空蒸着により数十  $\text{nm}$  の膜厚に形成した層を積層した構成とすることが多い。

【 0 0 1 1 】

一般に、電子と正孔が再結合し発光する部分を発光層と呼んでいるが、この部分が正孔注入電極または電子注入電極の近傍にあると再結合によって生成したエキシトンが非発光失

10

20

30

40

50

活し発光効率が低下する。この現象を防止するためと、下地となる基板の表面状態の影響の緩和のため、正孔注入電極側には正孔輸送層を設け、電子注入電極側には電子輸送層を設ける構成が必要である。トリス(8-キノリノラト)アルミニウムは緑色の発光性の電子輸送材料であり、発光層と電子輸送層を兼ねた層として用いられているが、その正孔輸送層側の部分が実際には発光層として機能し、電子注入電極側の部分が電子輸送層として機能しているものと考えられる。

#### 【0012】

電子注入電極はTangらの提案したMgAg合金またはAlLi合金等、仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金が用いられることが多い。

10

#### 【0013】

またこのような素子をマトリクス状に配置して、線順次に走査して発光させれば単なる発光素子にとどまらず像情報の表示装置として有用である。しかしこの場合、例えば縦480画素×横640画素のマトリクスで、縦方向に順に走査して発光させる駆動を考えると、各画素の発光時間は1/480となり、例えばパネルの明るさとして平均輝度100カンデラを得ようとすれば、各画素の実際の発光輝度は480倍で48000カンデラが必要となる。このように高い瞬時輝度を得ようとすれば高い駆動電圧と高い瞬時電流が必要であり、配線抵抗による損失電力増加など消費電力の増大を招くことになる。

#### 【0014】

そこで像情報の表示装置としては、上記のような単純マトリクス(パッシブマトリクス)駆動以外に、個々の発光素子(画素)に駆動用薄膜トランジスタと、電圧で与えられた情報を次の情報付与までの期間保持するメモリー容量を有する構成のアクティブマトリクス駆動によるものが検討されている(例えば、「プロシーディングス オブザ 18番 インタナショナル ディスプレイ リサーチコンファレンス」第217頁から第220頁(Proceedings of the 18th International Display Research Conference, p217~p220)など)。

20

#### 【0015】

このようなアクティブマトリクス駆動では、必須の構成要素として各画素毎に有機薄膜EL素子と駆動用薄膜トランジスタとメモリー容量が必要である他、電圧で与える発光情報を順次に書き込んでいくためのスイッチング用トランジスタなどの書き込み手段が最低限必要となる。すなわち一般に最低限2つのトランジスタと1つの容量素子が有機薄膜EL素子以外に必要なものとなる。

30

#### 【0016】

このようにアクティブマトリクス駆動においてはその像情報表示に必要な構成部材は増加するが、パッシブマトリクス駆動と異なり、各画素は順次に選択されていない期間も引き続きメモリー容量に保持された電圧に従って発光を続けることとなり、パネルの平均輝度と比較して素子自体の発光輝度が著しく高くなる現象が無く、パネルとしての消費電力が著しく低下できる特徴がある。

#### 【0017】

##### 【発明が解決しようとする課題】

このようにTangらの提案による機能分離した積層型の素子構成を用い、また電子注入電極としてMgAg等の仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金を用いる事により、数V程度の低電圧でも数百カンデラ程度の十分な輝度を得られる素子の実現できる。また、前述したトリス(8-キノリノラト)アルミニウムは緑色の発光性の電子輸送材料であり、緑色の有機薄膜EL素子を作製する場合には、発光層と電子輸送層を兼ねた層として用いることが出来て便利である。

40

#### 【0018】

しかしながら、上述のトリス(8-キノリノラト)アルミニウムまたはその誘導体で発光性の電子輸送層としての特性に優れ高効率の得られる材料を用いた場合、発光層を他の材料で構成して他の発光色を得ようとしても、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムま

50

たはその誘導体からの発光が混在する課題がある。

【0019】

すなわち、発光層と電子輸送層を積層して発光層のみから発光を得ようとしても、電子輸送層が上記のような発光性の材料の場合、発光層を通過した正孔が電子輸送層にまで達し、当該領域で再結合して発光する現象を完全には避け難い課題がある。

【0020】

例えば電子輸送層の膜厚を20nm程度の比較的薄い膜厚にすることにより、電子輸送層内で再結合して生成したエキシトンの電極による失活割合を高め、電子輸送層からの発光を抑制することも考えられるが、このような膜厚の最適化では効率と色純度のトレードオフによりおのずと限界があり、高い効率と色純度と長寿命を同時に実現できる優れた有機薄膜EL素子を得ることは困難であった。

10

【0021】

また固定パターン発光を印刷物並みの高解像度で得ようとする場合には、陰極または陽極のパターン化で行うには限界があり、絶縁層のパターン化による方法が期待されていたが、通常のリソグラフィ工程を利用した場合には、初期から陰極の断線や、陰極陽極間短絡、発光効率の低下などの課題があり、また連続駆動時の信頼性も極めて低い課題があった。また非発光時にも発光パターンが視認可能となり、発光非発光の電氣的制御で情報の表示非表示を制御できない課題があった。

【0022】

また前述のようなマトリクス状の表示装置では、特に画素数が多い表示装置では、消費電力の大きなパッシブマトリクス駆動に代わって、消費電力を大幅に低減できるアクティブマトリクス駆動が期待されているが、一般にこのような用途に用いられる薄膜トランジスタのゲート電圧 $V_g$ に対するソース-ドレイン電流特性( $I-V_g$ 特性)には素子間で大きなバラツキがあり、これが発光の不均一またはそれに起因する有効階調数の減少という形となって画像品質の低下につながる課題が指摘されている。

20

【0023】

電流が流れ始めるゲート電圧 $V_{th}$ のバラツキに関しては、自動的にこれをキャンセルする電圧を各画素(各駆動用薄膜トランジスタ)毎に発光情報のメモリ容量とは別の容量にメモリーして補正する技術が検討されている。(SID98 Digest, p11~p14)。

30

【0024】

しかしながらこのような手法の実現には各画素毎に4つのトランジスタと2つの容量が必要であり、また実際の駆動時のゲート電圧領域での電流バラツキ( $I-V_g$ 特性の傾きのバラツキに相当)が依然として大きく発光の不均一またはそれに起因する有効階調数の減少という形となって画像品質の低下につながる課題がある。

【0025】

【課題を解決するための手段】

このような状況に鑑み、筆者等は種々の物性を有する材料を用い、種々の構成で種々の特性の機能性薄膜を積層し発光効率、色純度、寿命の観点で評価を行った中から、特定の機能層を用いることにより、または特定の材料を組み合わせて用いることにより、正孔と電子の再結合域を効果的に制御できることを見出して本発明を完成させるに至った。

40

【0026】

また筆者等は印刷物並みの高い解像度の固定パターン表示を高い発光効率で信頼性良く実現するために、種々の絶縁層によるパターン化発光素子を試作した中から、特定の絶縁層を用いることにより、高い発光効率を得ることが可能であること、また陰極の断線や、陰極陽極間短絡、効率低下等の抑制による信頼性向上が可能であること、また非発光時にはパターンの視認が困難であり情報の表示非表示を電氣的な発光非発光で制御可能とすることが出来ることを見出して本発明を完成させるに至った。

【0027】

また筆者等は種々の薄膜トランジスタの組み合わせによる駆動手段を検討し、チャンネル

50

の移動度が変化した場合に、実際の発光がどのように変化するかを検討した中から、駆動手段として特定のトランジスタ、容量、抵抗の組み合わせにより、各画素の発光均一性が高く、すなわち高レベルの階調が実現できることを見出して本発明を完成させるに至った。

【 0 0 2 8 】

具体的には、第 1 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と電子注入輸送層を有し、前記発光層と電子注入輸送層との間に非発光性電子輸送層を有することを特徴とする。

【 0 0 2 9 】

また、第 2 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と電子注入輸送層を有し、前記発光層と電子注入輸送層との間に非発光性正孔阻止層を有することを特徴とする。

【 0 0 3 0 】

また、第 3 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と電子注入輸送層を有し、前記発光層が正孔輸送能と電子輸送能の両方を有することを特徴とする。

【 0 0 3 1 】

また、第 4 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と電子注入輸送層を有し、前記発光層と電子注入輸送層との間にアクセプター性有機分子からなる薄層を有することを特徴とする。

【 0 0 3 2 】

また、第 5 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と電子注入輸送層を有し、前記発光層が主として有機発光分子とアクセプター性有機分子からなることを特徴とする。

【 0 0 3 3 】

また、第 6 の発明の有機薄膜 E L 素子は、前記アクセプター性有機分子が主として 7 , 7 , 8 , 8 - テトラシアノキノジメタンよりなることを特徴とする。

【 0 0 3 4 】

また、第 7 の発明の有機薄膜 E L 素子は、前記アクセプター性有機分子が主としてテトラシアノエチレンよりなることを特徴とする。

【 0 0 3 5 】

また、第 8 の発明の有機薄膜 E L 素子は、前記電子注入輸送層が発光性であり、且つ当該発光波長が発光層の発光波長と異なることを特徴とする。

【 0 0 3 6 】

また、第 9 の発明の有機薄膜 E L 素子は、前記電子注入輸送層が発光性であり、且つ当該発光波長より発光層の発光波長が短波長であることを特徴とする。

【 0 0 3 7 】

また、第 1 0 の発明の有機薄膜 E L 素子は、前記電子注入輸送層が主としてトリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウムまたはその誘導体よりなることを特徴とする。

【 0 0 3 8 】

また、第 1 1 の発明の有機薄膜 E L 素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層を有し、前記発光層が、主として 1 , 1 , 4 , 4 - テトラフェニル - 1 , 3 - プタジエンと N , N ' - ジフェニル - N , N ' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - 1 , 1 ' - ビフェニル - 4 , 4 ' - ジアミンからなることを特徴とする。

【 0 0 3 9 】

10

20

30

40

50

また、第12の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層を有し、前記発光層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)-N, N'-ジフェニルベンジジンからなることを特徴とする。

【0040】

また、第13の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と正孔阻止層を有し、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンからなることを特徴とする。

10

【0041】

また、第14の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光層と正孔阻止層を有し、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとテトラフェニルエチレンからなることを特徴とする。

【0042】

また、第15の発明の有機薄膜EL素子は、前記発光層が、主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ピフェニル-4, 4'-ジアミンからなることを特徴とする。

【0043】

また、第16の発明の有機薄膜EL素子は、前記発光層が、主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)-N, N'-ジフェニルベンジジンからなることを特徴とする。

20

【0044】

また、第17の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に連続して設けられた発光層と正孔阻止層と非発光性電子輸送層を有し、前記発光層が主として、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ピフェニル-4, 4'-ジアミンからなり、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンからなることを特徴とする。

30

【0045】

また、第18の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に連続して設けられた発光層と正孔阻止層と非発光性電子輸送層を有し、前記発光層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)-N, N'-ジフェニルベンジジンからなり、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンからなることを特徴とする。

【0046】

また、第19の発明の有機薄膜EL素子は、前記非発光性電子輸送層が主として7, 7, 8, 8-テトラシアノキノジメタンよりなることを特徴とする。

40

【0047】

また、第20の発明の有機薄膜EL素子は、前記非発光性電子輸送層が主としてテトラシアノエチレンよりなることを特徴とする。

【0048】

また、第21の発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた絶縁層と発光機能層を有し、前記絶縁層が像情報に対応してパターン形成されたフォトレジスト層であることを特徴とする。

【0049】

また、第22の発明の有機薄膜EL素子は、前記フォトレジスト層が膜厚0.02 μm以

50

上  $0.2 \mu\text{m}$  以下であり、且つパターン形成された後に  $150$  以上の温度で完全硬化されていることを特徴とする。

【0050】

また、第23の発明の有機薄膜EL素子は、前記正孔注入電極上に前記フォトリソ層を形成し完全硬化した後で、発光機能層を形成する前に前記正孔注入電極表面の気相クリーニングを行うことを特徴とする。

【0051】

また、第24の発明は、正孔注入電極と電子注入電極との間に電圧を加えることで電流を流し発光を得る有機薄膜EL素子の駆動方法であって、電源の片方の極と有機薄膜EL素子の片方の極を接続するとともに、それぞれの他方の極を薄膜トランジスタを介して接続し、且つ当該トランジスタのゲート電圧保持用のメモリー容量を有し、一定の時間間隔毎に発光強度の情報または発光非発光の情報を当該メモリー容量に充放電させることにより書き込んで、発光状態を制御する駆動方法において、当該メモリー容量と並列に前記薄膜トランジスタのチャネル層と同時に同じ成膜条件で作成した層を抵抗として配置したことを特徴とする。

10

【0052】

また、第25の発明は、前記メモリー容量と抵抗の平均値の積より求められる時定数が、少なくとも前記の一定の時間間隔より小さく、且つ当該時間間隔の  $1/100$  の時間より大きいことを特徴とする。

【0053】

20

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態に係る有機薄膜EL素子について説明する。

【0054】

本発明の有機薄膜EL素子は、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた発光機能層により構成される。ここで発光機能層とは両電極から注入された正孔と電子によって発光する過程に関与する各層を集合的に総称するものであり、一般に知られるように、実際には正孔輸送層と電子輸送性発光層との積層構造であったり、正孔輸送層と発光層と電子輸送層の積層構造であったり、さらに正孔注入層や電子注入層などの層が積層された構造であったりする。

【0055】

30

前記透明基板は、有機薄膜EL素子を担持出来るものであればよく、コーニング1737ガラスなどの通常のガラス基板が用いられる事が多いが、ポリエステルその他の樹脂フィルムなども用いられる事が出来る。一般に電子注入電極および正孔注入電極は、そのどちらか一方が透明である必要があり、透明基板上に透明電極を設けて発光を外部に取り出すことが多いが、シリコン基板などの不透明基板上に成膜し上部電極を透明電極として発光を取出しても良い。通常、正孔注入電極に透明なITO（インジウム錫酸化物）膜を用いる事が多く、電子注入電極はTangらの提案したMgAg合金またはAlLi合金など、仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金が用いられることが多い。

【0056】

40

また、電子注入電極は、実質的に発光機能層への電子の注入に寄与する層と電極としての電気伝導性を担う層の積層構造としてもよく、一般には数程度の膜厚の弗化リチウム層や酸化リチウム層とアルミニウム層の積層構造の電子注入電極などが用いられる。この場合、電子注入電極にアルミニウム層のみを用いた場合と比較して駆動電圧が低下し発光効率が向上することが知られている。

【0057】

ITO膜はその透明性を向上させまたは抵抗率を低下させる目的でスパッタ、エレクトロンビーム蒸着、イオンプレーティング等の成膜方法が行われており、また抵抗率や形状制御の目的で種々の後処理が行われる事も多い。また膜厚は必要とされるシートレジスタンス値と可視光透過率から決定されるが、有機EL素子では比較的駆動電流密度が高いため

50

、シートレジスタンスを小さくするため100nm以上の厚さで用いられることが多い。

【0058】

正孔注入電極には、これらの通常のITO膜を用いる事が出来る他、導電性粉体を分散した透明導電性塗料の塗布膜その他の電極を用いる事が出来る。また、電子注入電極には、上述したMgAg、AlLiその他の仕事関数が低く電子注入障壁の低い金属と比較的仕事関数が大きく安定な金属との合金の他、はじめに薄層のLi膜を形成した後にAl膜を比較的厚く形成するような積層電極や、LiF膜やAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜を薄層に形成した後にAl膜を比較的厚く形成するような積層電極や、その他の種々の電極構成を用いる事が出来る。

【0059】

第1の発明において、その要部は発光層と電子注入輸送層との間に非発光性の電子輸送層を設ける独自の構成にあり、各層を構成する材料は一般に知られている材料を広く用いることができる。

10

【0060】

第2の発明において、その要部は発光層と電子注入輸送層との間に非発光性の正孔阻止層を設ける独自の構成にあり、各層を構成する材料は一般に知られている材料を広く用いることができる。

【0061】

第3の発明において、その要部は発光層として電子と正孔の両方を輸送できるものを用いた独自の構成にあり、各層を構成する材料は一般に知られている材料を広く用いることができる。

20

【0062】

第4の発明において、その要部は発光層と電子注入輸送層との間にアクセプター性の有機分子からなる薄層を設ける独自の構成にあり、各層を構成する材料は一般に知られている材料を広く用いることができる。

【0063】

第5の発明において、その要部は発光層が有機発光分子とアクセプター性有機分子からなる独自の構成にあり、各層を構成する材料は一般に知られている材料を広く用いることができる。

【0064】

特に電子注入輸送層として発光性のトリス(8-キノリノラト)アルミニウムまたはその誘導体などの材料を用いる場合には、これらの構成とすることで顕著な色純度の向上と寿命の向上が認められる。

30

【0065】

これはこれらの独自の構成により正孔と電子の再結合領域が制御されて、発光性電子注入輸送層の発光が抑制され、効果的に発光層の中で再結合および発光が行われるためである。

【0066】

電子注入輸送層とは、電子注入電極から電子を注入され、且つ電子を輸送する役割を担う層を言い、単層または積層膜としてこの機能を有する部分の総称として用いている。正孔阻止層は正孔の移動を妨げ、その正孔注入電極側に正孔を溜める働きを有する層であれば良いが、その正孔注入電極側に接する層と比較してそのイオン化ポテンシャルが大きく正孔の注入が困難であるか、または注入できたとしても、正孔移動度が極端に小さい層であれば、このような役目を果たすことができる。正孔輸送能と電子輸送能の両方を有するとは、両キャリアの輸送能が大きな差でないことを指す。有機発光分子とは、分子に固有の蛍光を示し、特に本発明では固体薄膜状態で電氣的な励起(電子と正孔の再結合)によって蛍光を発する材料を言う。

40

【0067】

第11の発明において、その要部は発光層が主として1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエンとN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-

50

1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミンからなることにあり、正孔注入輸送層や電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。この2つの材料は共蒸着または混合塗料からの塗布などにより発光層として成膜されるが、その混合割合は重量比で1:9以上9:1以下であればよい。この混合材料からなる発光層を用いることで高い発光効率が安定して得られるものである。

【0068】

第12の発明において、その要部は発光層が主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンとN, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル) - N, N' - ジフェニルベンジジンからなることにあり、正孔注入輸送層や電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。この2つの材料は、共蒸着または混合塗料からの塗布などにより発光層として成膜されるが、その混合割合は重量比で1:9以上9:1以下であればよい。この混合材料からなる発光層を用いることで、高い発光効率が安定して得られるものである。

10

【0069】

第13の発明において、その要部は発光層と接して設けられた正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンからなることにあり、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンはそのイオン化ポテンシャルが極めて大きく、正孔の注入障壁が高い特徴があり、結果としてそれに接する発光層内での再結合確率を高める働きをするものである。

20

【0070】

第14の発明において、その要部は発光層と接して設けられた正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンとテトラフェニルエチレンからなることにあり、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。テトラフェニルエチレンを適量混合することにより、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンの結晶化による黒点(非発光欠陥)を抑制することができるが、多量に混合すると正孔阻止層としての効果が損なわれる。1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンに対するテトラフェニルエチレンの混合割合は重量比で0.5%以上60%以下である。

【0071】

第17の発明において、その要部は連続して設けられた発光層と正孔阻止層と非発光性電子輸送層を有し、前記発光層が、主として、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンとN, N' - ジフェニル - N, N' - ビス(3 - メチルフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミンからなり、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンからなることにあり、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。また非発光性電子輸送層としては7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタンやテトラシアノエチレンなどの材料を用いることができる。

30

【0072】

この1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンとN, N' - ジフェニル - N, N' - ビス(3 - メチルフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミンの発光層材料は、共蒸着、または混合塗料からの塗布などにより発光層として成膜されるが、その混合割合は重量比で1:9以上9:1以下であればよい。この混合材料からなる発光層を用いることと、正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンからなることで、正孔と電子の再結合領域を発光層内に効果的に限定し、色純度が良く高い発光効率が安定して得られるものである。

40

【0073】

第17の発明において、その要部は連続して設けられた発光層と正孔阻止層と非発光性電子輸送層を有し、前記発光層が、主として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンとN, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル) - N, N' -

50

ジフェニルベンジジンからなり、前記正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンからなることにあり、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層その他の各層は通常の方法を幅広く用いることができる。

【0074】

また、非発光性電子輸送層としては7, 7, 8, 8-テトラシアノキノジメタンやテトラシアノエチレン等の材料を用いることができる。この1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンとN, N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの発光層材料は、共蒸着または混合塗料からの塗布などにより発光層として成膜されるが、その混合割合は重量比で1:9以上9:1以下であればよい。この混合材料からなる発光層を用いることと、正孔阻止層が主として1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンからなることで、正孔と電子の再結合領域を発光層内に効果的に限定し、色純度が良く高い発光効率が安定して得られるものである。

10

【0075】

第21の発明において、その要部はパターン形成されたフォトレジスト層を縁層として用いて発光をパターン化することにあり、発光機能層は通常の方法を幅広く用いることができる。

【0076】

第22の発明において、要部は、上記に加えてフォトレジストの膜厚を0.02 μm以上0.2 μm以下とすることと、150 °C以上の温度で完全硬化させることである。フォトレジスト膜厚を0.02 μm以下にすると均一な膜を得ることが困難になり、ハジキなどの膜欠陥部が発光するなどの問題が顕著になる。また0.2 μm以上では、フォトレジストの形成されている部分と非形成部分の段差が大きくなり、段差部で発光機能層の上部に形成する電極の導通が不十分となる問題が顕著になる他、段差部が目立ち、非発光時にも発光パターンが容易に視認出来てしまう問題がある。またフォトレジスト層の硬化温度が150 °C未満で不十分であると、未硬化有機レジスト分子の発光部分への再付着によって著しく発光効率が低下する問題がある。

20

【0077】

第23の発明において、要部は、上記に加えてフォトレジスト層を完全硬化した後で、発光機能層を形成する前に、正孔注入電極表面の気相クリーニングを行うことにある。気相クリーニングの方法としては、酸素プラズマ処理やUVオゾン処理など一般に用いられている方法を幅広く用いることができる。このクリーニング処理により、表面に残留した微量の有機物層などを取り除き高い発光効率を安定して得ることができるものである。

30

【0078】

第24の発明において、その要部は有機薄膜EL素子の駆動用薄膜トランジスタ素子のゲート電圧をメモリーする容量と並列に、同トランジスタのチャンネル層と同時に同じ成膜条件で作成した層を抵抗として配置することにある。これにより、基板条件や成膜条件等の局所的なバラツキにより、チャンネル層の移動度、キャリア濃度等の特性が変化しても、それと同様に抵抗層の移動度、キャリア濃度も変化することとなる。すなわち、例えば各画素に一定の電圧が発光情報として与えられ、メモリー容量に蓄えられ、その電圧に応じて各駆動用薄膜トランジスタに電流が流れて有機薄膜EL素子が発光するわけであるが、この時移動度が大きいなどの理由により同一ゲート電圧に対する電流が大きくなる画素では、メモリー容量に並列に配置された上記抵抗を流れる電流も大きくなり、他の画素と比較して速くにゲート電圧が低下し、結果として発光時間が短くなることとなる。

40

【0079】

つまり、画素の駆動用薄膜トランジスタに流れる電流の大きな画素は、発光の輝度は流れる電流に応じて高くなるが、駆動用薄膜トランジスタのチャンネルと同時に同条件で作成した抵抗を流れる電流も同じ割合で大きくなるため、その分だけメモリー容量の放電が速く、発光情報の書き込みから書き込みまでの時間間隔(1フレーム時間)の中での実際の発光時間が短くなることになり、パネルとして観察される平均の輝度は互いに補償されて同等になることを意味する。

50

## 【0080】

一方、反対に同一のゲート電圧に対して、駆動用薄膜トランジスタに流れる電流の小さな画素は、発光の輝度は流れる電流に応じて低くなるが、駆動用薄膜トランジスタのチャンネルと同時に同条件で作成した抵抗を流れる電流も同じ割合で小さくなるため、その分だけメモリー容量の放電が遅く、1フレーム時間の中での実際の発光時間が長くなることになり、パネルとして観察される平均の輝度は互いに補償されて同等になることを意味する。

## 【0081】

第25の発明において、その要部は上記構成に加えて、メモリー容量と、駆動用薄膜トランジスタのチャンネルと同時に同条件で作成した抵抗の各画素の平均値の積より求められる時定数が、少なくとも前記の1フレーム時間より小さく、且つ1フレーム時間の1/100の時間より大きいことである。移動度のバラツキなどにより上述の抵抗値はばらつくことになるが、その平均値とメモリー容量の積（放電時定数）が1フレーム時間より長いと、実質的にほとんどの画素においては、1フレーム時間全体に渡って発光を続けることとなり、効果的な電流バラツキの補償が期待できない。

10

## 【0082】

一方、同時定数が1フレーム時間の1/100以下では、補償は効果的に機能するものの、実際に必要なピーク輝度がパネル輝度の100倍以上となり、先に述べたパッシブマトリクス駆動と同様に消費電力が大きくなりアクティブマトリクス駆動のメリットが得られない。すなわち、本発明の駆動手段はこれらの現象に鑑み、前述の時定数の平均を1フレーム時間より小さく、且つ1フレーム時間の1/100の時間より大きくなるようにメモリー容量および抵抗層の幅と長さを設定することによって、平均より時定数が大きい画素も小さい画素も発光時間がその輝度に反比例することによって輝度バラツキを抑制できるものである。

20

## 【0083】

本駆動手段で設けたメモリー容量と並列に配置する抵抗層による、駆動用薄膜トランジスタの特性バラツキの補償効果は極めて顕著であり、ここで述べた抵抗層をメモリー容量と並列に設けない通常の駆動手段では、トランジスタの特性バラツキにより一桁以上の輝度バラツキとなる場合でも、目視では全く輝度バラツキを認識出来ないレベルにまで抑制することが出来る。これによりゲート電圧値自体で階調制御する場合でも、サブフィールド法を用いる場合でも、高い階調再現性が得られる。

30

## 【0084】

一方、通常の駆動手段による方法では、メモリー容量は僅かなリーク電流で放電するのみであり、通常、走査によるデータ書き込みの僅かな時間以外は常に発光を続けているのに対して、本発明による駆動手段を用いた場合には、そのトランジスタ特性のバラツキに応じて、画素によって発光時間が短くなっており、その分だけ発光効率が低下することになるのが欠点である。しかしながら、本欠点は、表示画像として要求される均一性や階調レベルに応じて、前述の放電時定数を適切に設定することによって最小化することが出来る。

## 【0085】

次に具体的な実施例に基づいてさらに詳細に説明する。

40

## 【0086】

（実施例1）

透明基板上に正孔注入電極を形成した基板として、市販のITO付きガラス基板（三容真空株式会社製、サイズ100×100mm×t=0.7mm、シート抵抗約14 / ）を用い、電子注入電極との重なりにより発光面積が10×10mmとなるようにフォトリソグラフィによりパターン化した。フォトリソ後の基板処理は市販のレジスト剥離液（ジメチルスルホキシドとN-メチル-2-ピロリドンとの混合溶液）に浸漬して剥離を行った後、アセトンでリンスし、さらに発煙硝酸中に1分間浸漬して完全にレジストを除去した。

## 【0087】

50

I T O表面の洗浄は、基板の裏面表面の両面を十分に行い、テトラメチルアンモニウムハイドロオキシドの0.238%水溶液を十分に供給しながら、ナイロンブラシによる機械的な擦り洗浄を行った。その後、純水で十分にすすぎ、スピン乾燥を行った。また有機薄膜E L素子の蒸着前には、市販のプラズマリアクター（ヤマト科学株式会社製、P R 4 1型）中で、酸素流量20sccm、圧力0.2Torr、高周波出力300Wの条件で1分間の酸素プラズマ処理を行ってから、蒸着槽内に配置した。

#### 【0088】

真空蒸着装置は市販の高真空蒸着装置（日本真空技術株式会社製、E B V - 6 D A型）を改造した装置を用いた。主たる排気装置は排気速度1500リットル/minのターボ分子ポンプ（大阪真空株式会社製、T C 1 5 0 0）であり、到達真空度は約 $1 \times 10^{-6}$ Torr以下であり、全ての蒸着は $2 \sim 3 \times 10^{-6}$ Torrの範囲で行った。また全ての蒸着はタングステン製の抵抗加熱式蒸着ボートに直流電源（菊水電子株式会社製、P A K 1 0 - 7 0 A）を接続して行った。

10

#### 【0089】

このようにして真空層中に配置したI T O付きガラス基板の上に、正孔輸送層として、N, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ピフェニル) - N, N' - ジフェニルベンジジン（保土ヶ谷化学株式会社製）と、4 - N, N - ジフェニルアミノ - フェニルスチルベンを、それぞれ0.3nm/sおよび0.01nm/sの蒸着速度で共蒸着して膜厚約80nmに形成した。

#### 【0090】

次に、発光層として1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン（関東化学株式会社製）を0.3nm/sの蒸着速度で膜厚約10nmに形成した。

20

#### 【0091】

次に、非発光性電子輸送層7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン（関東化学株式会社製）を0.1nm/sの蒸着速度で膜厚約5nmに形成した。

#### 【0092】

次に電子輸送層としてトリス(8 - キノリノラト)アルミニウム（同仁化学株式会社製）を0.3nm/sの蒸着速度で膜厚約25nmに形成した。

#### 【0093】

次に、電子注入電極として、A l L i合金（高純度化学株式会社製、A l / L i重量比99/1）から低温でL iのみを、約0.1nm/sの蒸着速度で膜厚約1nmに形成し、続いて、そのA l L i合金をさらに昇温しL iが出尽くした状態から、A lのみを、約1.5nm/sの蒸着速度で膜厚約100nmに形成し、積層型の電子注入電極とした。

30

#### 【0094】

このようにして作成した有機薄膜E L素子は、蒸着槽内を乾燥窒素でリークした後、乾燥窒素雰囲気下で、コーニング7059ガラス製の蓋を接着剤（アネルバ株式会社製、商品名スーパーバックシール953 - 7000）で貼り付けてサンプルとした。

#### 【0095】

このようにして得た有機薄膜E L素子サンプルは、次のようにして評価を行った。D C駆動電源は直流定電流電源（アドバンテスト株式会社製、商品名マルチチャンネルカレントボルテージコントローラーT R 6 1 6 3）を用い、発光波長のスペクトル測定およびC I E色度測定は瞬間マルチ測光システム（大塚電子株式会社製、MCPD5000）により測定し、輝度は輝度計（東京光学機械株式会社製、商品名トプコンルミネセンスメーターB M - 8）によって測定した。輝度ムラ、黒点（非発光部）等の発光画像品質は、50倍の光学顕微鏡により観察した。

40

#### 【0096】

初期の評価は素子の蒸着後ガラス蓋を接着してから12時間後に常温常湿の通常の実験室環境で行い、発光色度C I E ( X , Y )、発光効率(c d / A)、 $100 \text{ c d / m}^2$ 発光時の駆動電圧を評価した。また初期輝度が $100 \text{ c d / m}^2$ となる電流値で、常温常湿の通常の実験室環境で直流定電流駆動で連続発光試験を行った。この試験から色度が変化する

50

るが、輝度が半減 ( $50 \text{ cd/m}^2$ ) に達した時間を寿命として評価した。これらの評価結果を (表 1) に示す。

【 0 0 9 7 】

【 表 1 】

番号	サンプル 内容	評価結果				
		発光色度 CIE(X,Y)	発光効率 (cd/A)	100cd/m <sup>2</sup> 時の 駆動電圧(V)	色度変化寿命 (時間)	輝度半減時間 (時間)
実施例1	TPT+PS(80)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例2	TPT+PS(80)/TPB(10)/TCNE(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例3	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例4	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNE(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例5	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB+TCNQ(10)/Alq3(25)	0.17,0.18	3.0	6.0	-	1800
実施例6	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB+TCNE(10)/Alq3(25)	0.17,0.18	3.0	6.0	-	1800
実施例7	TPT+PS(80)/TPB+C540(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例8	TPT+PS(80)/TPB+C540(10)/TCNE(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例9	TPT+PS(80)/TPB(10)/TPB+TCNQ(10)/Alq3(25)	0.17,0.18	2.5	6.0	-	1800
実施例10	TPT+PS(80)/TPB(10)/TPB+TCNE(10)/Alq3(25)	0.17,0.18	2.5	6.0	-	1800
実施例11	TPT+PS(80)/TPB(10)/TCNQ(5)/Almq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例12	TPT+PS(80)/TPB(10)/TCNE(5)/Almq3(25)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例13	TPT+PS(80)/TPB+TPD(10)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例14	TPT+PS(80)/TPB+TPD(10)/TPB(10)/TCNE(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例15	TPT+PS(80)/TPB+C540(10)/TPB(10)/Ak3(25)	0.18,0.19	2.0	6.0	1000	-
実施例16	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB+TPE(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2200
実施例17	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/Alq3(25)	0.18,0.19	2.5	6.0	1000	-
実施例18	TPT+PS(80)/TPB+TPD(10)/TPB(10)/Alq3(25)	0.18,0.19	2.5	6.0	1000	-
実施例19	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(20)	0.16,0.17	2.5	6.5	-	2000
実施例20	TPT+PS(80)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(30)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例21	TPT+PS(80)/TPT(5)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNQ(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
実施例22	TPT+PS(80)/TPT(5)/TPB+TPT(10)/TPB(10)/TCNE(5)/Alq3(25)	0.16,0.17	3.0	6.5	-	2000
比較例1	TPT+PS(80)/TPB(10)/Alq3(15)	0.17,0.24	0.1	13.0	57	-
比較例2	TPT+PS(80)/TPB(10)/Alq3(20)	0.19,0.24	0.4	11.2	19	-
比較例3	TPT+PS(80)/TPB(10)/Alq3(25)	0.19,0.25	1.1	9.8	5	-
比較例4	TPT+PS(80)/TPB(10)/Alq3(30)	0.22,0.30	2.0	8.0	2	-

【 0 0 9 8 】

本実施例によれば、色純度が良く、高い発光効率を有し、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、連続発光試験においても輝度低下が小さく、色度の変化が無い、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜 EL 素子を実現

できた。

【 0 0 9 9 】

( 実施例 2 )

実施例 1 の非発光性電子輸送層の形成において、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) の代わりに、テトラシアノエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 0 】

( 実施例 3 )

実施例 1 の正孔輸送層と発光層との間に、新たな発光層として 1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と N, N' - ビス ( 4' - ジフェニルアミノ - 4 - ピフェニル ) - N, N' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm / s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

10

【 0 1 0 1 】

それ以外の構成は全て実施例 1 と同様にして、有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 2 】

( 実施例 4 )

実施例 3 の非発光性電子輸送層の形成において、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) の代わりに、テトラシアノエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 1 と同様にして、有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

20

【 0 1 0 3 】

( 実施例 5 )

実施例 3 の発光層である 1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン層と、非発光性電子輸送層である 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタンの代わりに、新たな発光層として、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm / s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

30

【 0 1 0 4 】

それ以外の構成は全て実施例 3 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 5 】

( 実施例 6 )

実施例 5 の新たな発光層において、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) の代わりに、テトラシアノエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 5 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 6 】

( 実施例 7 )

実施例 1 の発光層の形成において、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン層の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と Coumarin 540 ( Lambda Physik 株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm / s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

40

【 0 1 0 7 】

それ以外の構成は全て実施例 1 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 8 】

( 実施例 8 )

50

実施例 7 の非発光性電子輸送層として、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) の代わりに、テトラシアノエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 7 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 0 9 】

( 実施例 9 )

実施例 1 の非発光性電子輸送層である 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン層の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - プタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm / s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

10

【 0 1 1 0 】

それ以外の構成は全て実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 1 1 】

( 実施例 1 0 )

実施例 9 の 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン ( 関東化学株式会社製 ) の代わりに、テトラシアノエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 9 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 1 2 】

( 実施例 1 1 )

実施例 1 の電子輸送層の形成において、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( 同仁化学株式会社製 ) の代わりに、トリス ( 4 - メチル - 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( ケミプロ化成株式会社製 ) を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

20

【 0 1 1 3 】

( 実施例 1 2 )

実施例 2 の電子輸送層の形成において、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( 同仁化学株式会社製 ) の代わりに、トリス ( 4 - メチル - 8 - キノリノラト ) アルミニウム ( ケミプロ化成株式会社製 ) を用いた以外は実施例 2 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

30

【 0 1 1 4 】

( 実施例 1 3 )

実施例 3 の新たな発光層の形成において、N, N' - ビス ( 4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル ) - N, N' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) の代わりに、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン ( 同仁化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 3 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 1 5 】

( 実施例 1 4 )

実施例 4 の新たな発光層の形成において、N, N' - ビス ( 4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル ) - N, N' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) の代わりに、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン ( 同仁化学株式会社製 ) を用いた以外は実施例 4 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

40

【 0 1 1 6 】

( 実施例 1 5 )

実施例 7 の非発光性電子輸送層として用いた 7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン

50

層 5 nm の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) を 10 nm の膜厚に形成した以外は実施例 7 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 1 7 】

( 実施例 1 6 )

実施例 1 の発光層として設けた 1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン層 10 nm の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と N, N' - ビス ( 4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル ) - N, N' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) を、各々 0.15 nm/s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成し、さらに続けて、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) とテトラフェニルエチレン ( 関東化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm/s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

10

【 0 1 1 8 】

それ以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 1 9 】

( 実施例 1 7 )

実施例 1 5 の発光層として設けた 1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンと Coumarin 540 との共蒸着層 10 nm の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と N, N' - ビス ( 4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル ) - N, N' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm/s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

20

【 0 1 2 0 】

それ以外は実施例 1 5 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 2 1 】

( 実施例 1 8 )

実施例 1 5 の発光層として設けた 1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエンと Coumarin 540 との共蒸着層 10 nm の代わりに、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン ( 関東化学株式会社製 ) と N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン ( 同仁化学株式会社製 ) を、それぞれ 0.15 nm/s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 10 nm に形成した。

30

【 0 1 2 2 】

それ以外は実施例 1 5 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 2 3 】

( 実施例 1 9 )

実施例 3 の電子輸送層の形成において、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム層の膜厚を 25 nm の代わりに、20 nm とした以外は実施例 3 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

40

【 0 1 2 4 】

( 実施例 2 0 )

実施例 3 の電子輸送層の形成において、トリス ( 8 - キノリノラト ) アルミニウム層の膜厚を 25 nm の代わりに、30 nm とした以外は実施例 3 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を ( 表 1 ) に示す。

【 0 1 2 5 】

( 実施例 2 1 )

50

実施例 3 の正孔輸送層の形成に続いて、発光層形成の前に、N, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル) - N, N' - ジフェニルベンジジン(保土ヶ谷化学株式会社製)を 0.3 nm/s の蒸着速度で膜厚約 5 nm に形成した以外は実施例 3 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を(表 1)に示す。

## 【0126】

(実施例 22)

実施例 4 の正孔輸送層の形成に続いて、発光層形成の前に、N, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル) - N, N' - ジフェニルベンジジン(保土ヶ谷化学株式会社製)を 0.3 nm/s の蒸着速度で膜厚約 5 nm に形成した以外は実施例 4 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 に記載のように評価を行った。その結果を(表 1)に示す。

## 【0127】

(比較例 1)

実施例 1 において、非発光性電子輸送層(7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン層 5 nm)を形成せず、また電子輸送層(トリス(8 - キノリノラト)アルミニウム層 25 nm)を膜厚 15 nm に形成した以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 と同様に評価を行った。その結果を(表 1)に示す。

## 【0128】

(比較例 2)

実施例 1 において、非発光性電子輸送層(7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン層 5 nm)を形成せず、また電子輸送層(トリス(8 - キノリノラト)アルミニウム層 25 nm)を膜厚 20 nm に形成した以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 と同様に評価を行った。その結果を(表 1)に示す。

## 【0129】

(比較例 3)

実施例 1 において、非発光性電子輸送層(7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン層 5 nm)を形成せず、また電子輸送層(トリス(8 - キノリノラト)アルミニウム層 25 nm)を膜厚 25 nm に形成した以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 と同様に評価を行った。その結果を(表 1)に示す。

## 【0130】

(比較例 4)

実施例 1 において、非発光性電子輸送層(7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン層 5 nm)を形成せず、また電子輸送層(トリス(8 - キノリノラト)アルミニウム層 25 nm)を膜厚 30 nm に形成した以外は実施例 1 と同様にして有機薄膜 EL 素子サンプルを作成し、実施例 1 と同様に評価を行った。その結果を(表 1)に示す。(表 1)において各実施例および比較例の素子構成は略号によって略記されており、

「TPT」は、N, N' - ビス(4' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル) - N, N' - ジフェニルベンジジン、

「TPD」は、N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス(3 - メチルフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン、

「PS」は、4 - N, N - ジフェニルアミノ - フェニル Stilben、

「TPB」は、1, 1, 4, 4 - テトラフェニル - 1, 3 - ブタジエン、

「TPE」は、テトラフェニルエチレン、

「C540」は、Coumarin 540

「TCNQ」は、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン、

「TCNE」は、テトラシアノエチレン、

「Alq<sub>3</sub>」は、トリス(8 - キノリノラト)アルミニウム、

「Almq<sub>3</sub>」は、トリス(4 - メチル - 8 - キノリノラト)アルミニウム、

を表し、左から積層構成を表す記号として/で区切ってITO電極側から順に記載した。

10

20

30

40

50

( )内の数字は膜厚をnmで示し、+は共蒸着を示す。

【0131】

(実施例23)

透明基板上に正孔注入電極を形成した基板として、市販のITO付きガラス基板(三容真空株式会社製、サイズ100×100mm×t=0.7mm、シート抵抗約14 $\Omega$ /sq)を用い、電子注入電極との重なりにより発光可能面積が70×70mmとなるようにフォトリソグラフィによりパターン化した。フォトリソ後の基板処理は市販のレジスト剥離液(ジメチルスルホキシドとnメチル2ピロリドンとの混合溶液)に浸漬して剥離を行った後、アセトンでリンスし、さらに発煙硝酸中に1分間浸漬して完全にレジストを除去した。ITO表面の洗浄は、基板の裏面表面の両面を十分にいき、テトラメチルアンモニウムハイドロオキシドの0.238%水溶液を十分に供給しながら、ナイロンブラシによる機械的な擦り洗浄を行った。その後、純水で十分にすすぎ、スピン乾燥を行った。

10

【0132】

このようにして作製した正孔注入電極の上に、絶縁層を次のように形成した。ポジ型フォトレジスト(東京応化工業株式会社製OFPR5000)を専用シンナーで希釈してスピナーで塗布した。露光前のプリベークとして130 $^{\circ}$ C 15分間のオープン加熱を行った後、発光パターンに対応したマスクを用いて露光し、現像して発光パターンに対応したレジスト膜を得た。さらに180 $^{\circ}$ C 30分間のオープン加熱を行って、膜厚約0.1 $\mu$ mのパターン化されたフォトレジスト層(絶縁層)を得た。

【0133】

発光パターンに対応したマスクは、市販のプリンター(アルプス電機株式会社製MD2000)でOHPシートに600dpiの解像度で黒色プリントしたものをを用いた。

20

【0134】

次に、再度基板の裏面表面の両面を、テトラメチルアンモニウムハイドロオキシドの0.238%水溶液を十分に供給しながら、ナイロンブラシによる機械的な擦り洗浄を行った。その後、純水で十分にすすぎ、スピン乾燥を行った。

【0135】

また発光機能層の蒸着前には、市販のプラズマリアクター(ヤマト科学株式会社製、PR41型)中で、酸素流量20sccm、圧力0.2Torr、高周波出力300Wの条件で1分間の酸素プラズマ処理を行ってから、蒸着槽内に配置した。

30

【0136】

真空蒸着装置は市販の高真空蒸着装置(日本真空技術株式会社製、EBV-6DA型)を改造した装置を用いた。主たる排気装置は排気速度1500リットル/minのターボ分子ポンプ(大阪真空株式会社製、TC1500)であり、到達真空度は約1×10<sup>-6</sup>Torr以下であり、全ての蒸着は2~3×10<sup>-6</sup>Torrの範囲で行った。また全ての蒸着はタングステン製の抵抗加熱式蒸着ボートに直流電源(菊水電子株式会社製、PAK10-70A)を接続して行った。

【0137】

このようにして真空層中に配置したITO付きガラス基板上に、正孔輸送層として、N,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン(保土ヶ谷化学株式会社製)と、4-N,N'-ジフェニルアミノ-フェニルスチルベンを、それぞれ0.3nm/sおよび0.01nm/sの蒸着速度で共蒸着して膜厚約80nmに形成した。

40

【0138】

次に、発光層(発光性電子輸送層)としてトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(同仁化学株式会社製)を0.3nm/sの蒸着速度で膜厚約40nmに形成した。

【0139】

次に、電子注入電極として、AlLi合金(高純度化学株式会社製、Al/Li重量比9/1)から低温でLiのみを、約0.1nm/sの蒸着速度で膜厚約1nmに形成し、続いて、そのAlLi合金をさらに昇温しLiが出尽くした状態から、Alのみを、約1

50

．5 nm / s の蒸着速度で膜厚約 1 0 0 nm に形成し、積層型の電子注入電極とした。

【 0 1 4 0 】

このようにして作成した有機薄膜 E L 素子は、蒸着槽内を乾燥室素でリークした後、乾燥室素雰囲気下で、コーニング 7 0 5 9 ガラス製の蓋を接着剤（アネルバ株式会社製、商品名スーパーバックシール 9 5 3 - 7 0 0 0 ）で貼り付けてサンプルとした。

【 0 1 4 1 】

このようにして得た有機薄膜 E L 素子サンプルは、市販の小型ボタン電池（3 V × 2 個）で駆動し、明るく視認性に優れ、低消費電力で長寿命だけでなく、用いた 6 0 0 dpi のマスクパターンに極めて忠実な、通常の印刷物に匹敵する優れた解像度のパターン発光を得ることができた。発光輝度は 6 V で 3 0 0 cd / m<sup>2</sup>、輝度半減寿命は 5 0 0 0 時間以上であった。

10

【 0 1 4 2 】

また発光パターン情報は非発光時にはほとんど見えず、判読は極めて困難であり、通電の有無のみで情報の表示・非表示を切りかえられるものであった。

【 0 1 4 3 】

このように本実施例によれば、高い発光効率で、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、また極めて高解像度で忠実な発光パターンが再現性良く得られ、且つ連続発光試験においても輝度低下が小さく、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜 E L 素子を実現できるものである。

【 0 1 4 4 】

（比較例 5）

実施例 2 3 において、パターン化絶縁層（フォトレジスト）の現像後、1 8 0 3 0 分間の硬化を行わず、代わりに通常のポストベークとして 1 3 5 3 0 分の乾燥を行った以外は実施例 2 3 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 2 3 と同様に発光させた。

20

【 0 1 4 5 】

このようにして得た有機薄膜 E L 素子サンプルは、同じ電池による駆動ではほとんど発光せず、通常の直流電源による駆動でも発光効率が低く、発光を得るのに極めて高い電圧が必要であった。発光輝度は、1 2 V で 1 0 0 cd / m<sup>2</sup> であった。

【 0 1 4 6 】

また発光パターン情報は実施例 2 3 と同様に、非発光時にはほとんど見えず、判読は極めて困難であり、通電の有無のみで情報の表示・非表示を切りかえられるものであった。

30

【 0 1 4 7 】

（比較例 6）

実施例 2 3 において、パターン化絶縁層（フォトレジスト）の膜厚 0 . 1 μ m の代わりに、膜厚 0 . 3 μ m に形成を行った以外は実施例 2 3 と同様にして有機薄膜 E L 素子サンプルを作成し、実施例 2 3 と同様に発光させた。

【 0 1 4 8 】

このようにして得た有機薄膜 E L 素子サンプルは、初期においては実施例 2 3 と同様の優れた発光状態が得られるものもあったが、発光を続けていると部分的に陰極が劣化し非発光となる部分が増加し、数時間で相当の部分が非発光となった。またサンプルによっては初期から非発光部分のあるものや、正負電極の短絡により全く発光しないものも多かった。

40

【 0 1 4 9 】

また本素子が非発光の時もパターンが容易に判読することが出来る状態であり、通電の有無のみで情報の表示・非表示を切り替えることが出来なかった。

【 0 1 5 0 】

（比較例 7）

実施例 2 3 において、パターン化絶縁層（フォトレジスト）の膜厚 0 . 1 μ m の代わりに、膜厚 0 . 0 1 μ m に形成を行った以外は実施例 2 3 と同様にして有機薄膜 E L 素子サン

50

プルを作成し、実施例 2 3 と同様に発光させた。

【 0 1 5 1 】

このようにして得た有機薄膜 E L 素子サンプルは、パターンとしては非発光であるべきところの多くが発光し、極めて表示品質が低下した判読しにくいものであった。発光の輝度および寿命においては実施例 2 3 と同様に良好であった。

【 0 1 5 2 】

また発光パターン情報は実施例 2 3 と同様に、非発光時にはほとんど見えず、判読は極めて困難であったが、前述のように発光時も本来非発光であるべき部分の発光により判読が困難であった。

【 0 1 5 3 】

( 実施例 2 4 )

透明基板として、ガラス基板 ( コーニング 1 7 3 7 ) を用い、通常の低温ポリシリコン T F T の作製プロセスを用いて、駆動手段を次のように作製した。

【 0 1 5 4 】

画素数は縦 4 8 0、横 6 4 0 の V G A とし、各画素毎に透明電極として I T O 膜を形成した。I T O 電極と正電極ライン間には駆動用薄膜トランジスタとして  $W = 3 0 \mu m$ 、 $L = 3 \mu m$  の p 型低温ポリシリコン薄膜トランジスタを形成して接続した。また、このゲート電極と正電極ライン間には 0 . 2 p F のメモリー容量を設けた。

【 0 1 5 5 】

また、このメモリー容量と並列に前記の駆動用薄膜トランジスタの p 型チャネル層形成と同時に、同条件で抵抗層を形成した。抵抗層の抵抗値は厚さ、幅、長さが一定であっても移動度の差などの成膜バラツキにより異なるが、全画素の平均値で 1 0 G となるように形成した。

【 0 1 5 6 】

また、各画素の発光情報を一定の時間毎にメモリー容量を充放電させることにより書き込むため、各画素毎に順次情報書き込み用薄膜トランジスタとして  $W = 3 \mu m$ 、 $L = 3 \mu m$  の p 型低温ポリシリコン薄膜トランジスタを形成して、同トランジスタのゲートを走査電極に、ソースをデータ ( ソース ) 電極に、ドレインを前記駆動用薄膜トランジスタのゲートに接続した。

【 0 1 5 7 】

このようにして作製した駆動手段の上に、前記の I T O 電極部のみを開口部として残して絶縁膜を形成した。

【 0 1 5 8 】

次に、この基板を洗浄した後、市販のプラズマリアクター ( ヤマト科学株式会社製、P R 4 1 型 ) 中で、酸素流量 2 0 s c c m、圧力 0 . 2 T o r r、高周波出力 3 0 0 W の条件で 1 分間の酸素プラズマ処理を行ってから、蒸着槽内に配置した。

【 0 1 5 9 】

真空蒸着装置は市販の高真空蒸着装置 ( 日本真空技術株式会社製、E B V - 6 D A 型 ) を改造した装置を用いた。主たる排気装置は排気速度 1 5 0 0 リットル / m i n のターボ分子ポンプ ( 大阪真空株式会社製、T C 1 5 0 0 ) であり、到達真空度は約  $1 \times 1 0^{-6}$  T o r r 以下であり、全ての蒸着は  $2 \sim 3 \times 1 0^{-6}$  T o r r の範囲で行った。また全ての蒸着はタングステン製の抵抗加熱式蒸着ポートに直流電源 ( 菊水電子株式会社製、P A K 1 0 - 7 0 A ) を接続して行った。

【 0 1 6 0 】

このようにして真空層中に配置した駆動手段形成後のガラス基板の上に、正孔輸送層として、N , N ' - ビス ( 4 ' - ジフェニルアミノ - 4 - ビフェニル ) - N , N ' - ジフェニルベンジジン ( 保土ヶ谷化学株式会社製 ) と、4 - N , N - ジフェニルアミノ - フェニルスチルベンを、それぞれ 0 . 3 n m / s および 0 . 0 1 n m / s の蒸着速度で共蒸着して膜厚約 8 0 n m に形成した。

【 0 1 6 1 】

10

20

30

40

50

次に、発光層（発光性電子輸送層）としてトリス（8 - キノリノラト）アルミニウム（同仁化学株式会社製）を  $0.3 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で膜厚約  $40 \text{ nm}$  に形成した。

【0162】

次に、電子注入電極として、AlLi合金（高純度化学株式会社製、Al/Li重量比99/1）から低温でLiのみを、約  $0.1 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で膜厚約  $1 \text{ nm}$  に形成し、続いて、そのAlLi合金をさらに昇温しLiが出尽くした状態から、Alのみを、約  $1.5 \text{ nm/s}$  の蒸着速度で膜厚約  $100 \text{ nm}$  に形成し、積層型の電子注入電極とした。

【0163】

このようにして作成した有機薄膜EL素子は、蒸着槽内を乾燥窒素でリークした後、乾燥窒素雰囲気下で、コーニング7059ガラス製の蓋を接着剤（アネルバ株式会社製、商品名スーパーバックシール953-7000）で貼り付けてサンプルとした。

10

【0164】

このようにして得た有機薄膜EL素子サンプルは、電子注入電極を接地し、正電極ラインに7Vの直流電圧を印加し、走査電極を順に走査して、データ（ソース）電極に各画素の発光情報に対応した電圧を与えて発光させた。走査は横一行毎に順に縦方向に480行の走査を行った。走査の繰り返し周波数（フレームレート）は  $100 \text{ Hz}$  とし、データ（ソース）電極に与える各画素の発光情報に対応した電圧値は発光の階調情報に対応した256段階の直流電圧を与えた。

【0165】

このようにして発光させたVGAサイズの有機薄膜EL素子は、全画素に同一のデータを与えた場合には、輝度ムラや発光の不均一が無く、256段階の階調信号を与えた場合には、信号に忠実な発光が得られた。また全画素最大輝度で点灯時のパネルの輝度は  $300 \text{ cd/m}^2$  であり、直流7Vの駆動で高い発光輝度が得られた。また連続点灯時の寿命は5000時間以上であった。

20

【0166】

このように本実施例によれば、表示が多くの画素から構成される場合であっても、高い発光効率で、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、またムラなどの不均一の無い極めて一様性に優れた発光が得られ、また256階調の高い階調再現性が得られた。また連続発光試験においても輝度低下が小さく、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜EL素子を実現できるものである。

30

【0167】

（比較例8）

実施例24において、メモリー容量と並列に抵抗層を形成しない以外は全て実施例24と同様にして有機薄膜EL素子サンプルを作成し、実施例24と同様に発光させた。

【0168】

このようにして発光させたVGAサイズの有機薄膜EL素子は、全画素に同一データを与えた場合にもは、輝度ムラや発光の不均一が認められ、256段階の階調信号を与えた場合にも、階調の再現性が悪く、極めて低品質な表示画像しか得られなかった。また全画素最大輝度で点灯時のパネルの輝度は高い部分では  $500 \text{ cd/m}^2$  を超える一方、低い部分は  $50 \text{ cd/m}^2$  以下であった。

40

【0169】

（実施例25）

実施例24と駆動手段および有機薄膜EL素子は同様に作製し、駆動方法も実施例24と同様に正電極ラインに7Vの直流電圧を印加し、走査電極を順に走査して、データ（ソース）電極に各画素の発光情報に対応した電圧を与えて発光させた。階調の表現方法のみ、実施例24の方法の代わりに、データ（ソース）電極には常に発光または非発光に対応する電圧を与えることとし、走査速度を速くしてサブフィールド法により階調制御を行った。

【0170】

このようにして発光させたVGAサイズの有機薄膜EL素子は、全画素が同じ明るさとな

50

るように駆動した場合には、輝度ムラや発光の不均一が無く、256段階の階調をサブフィールド法で与えた場合には信号に忠実な発光が得られた。また全画素最大輝度で点灯時のパネルの輝度は $250\text{cd}/\text{m}^2$ であり、直流7Vの駆動で高い発光輝度が得られた。また連続点灯時の寿命は5000時間以上であった。

【0171】

(比較例9)

実施例25において、メモリー容量と並列に抵抗層を形成しない以外は全て実施例25と同様にして有機薄膜EL素子サンプルを作成し、実施例25と同様に発光させた。

【0172】

このようにして発光させたVGAサイズの有機薄膜EL素子は、全画素に同一の条件で駆動した場合にも、輝度ムラや発光の不均一が認められ、256段階の階調をサブフィールド法で与えた場合にも、階調の再現性が悪く、極めて低品質な表示画像しか得られなかった。また全画素をフルフィールドで点灯時のパネルの輝度は高い部分では $400\text{cd}/\text{m}^2$ を超える一方、低い部分は $50\text{cd}/\text{m}^2$ 以下であった。

【0173】

【発明の効果】

以上のように本発明によれば、色純度が良く、高い発光効率を有し、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、連続発光試験においても輝度低下が小さく、色度の変化が無い、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜EL素子を実現できるものである。

【0174】

また、透明基板上に正孔注入電極と電子注入電極と、少なくとも前記正孔注入電極と電子注入電極との間に設けられた絶縁層と発光機能層を有し、前記絶縁層が像情報に対応してパターン形成されたフォトレジスト層としたことによって、高い発光効率で、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、また極めて高解像度で忠実な発光パターンが再現性良く得られ、且つ連続発光試験においても輝度低下が小さく、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜EL素子を実現できるものである。

【0175】

また、正孔注入電極と電子注入電極との間に電圧を加えることで電流を流し、発光を得る有機薄膜EL素子の駆動方法であって、電源の片方の極と有機薄膜EL素子の片方の極を接続するとともに、それぞれの他方の極を薄膜トランジスタを介して接続し、且つ当該トランジスタのゲート電圧保持用のメモリー容量を有し、一定の時間間隔毎に発光強度の情報または発光非発光の情報を当該メモリー容量に充放電させることにより書き込んで、発光状態を制御する駆動方法において、当該メモリー容量と並列に前記薄膜トランジスタのチャネル層と同時に同じ成膜条件で作成した層を抵抗として配置したことによって、表示が多くの画素から構成される場合であっても、高い発光効率で、低い駆動電圧で自発光で視認性に優れた発光が得られ、またムラなどの不均一の無い極めて一様性に優れた発光が得られ、また256階調の高い階調再現性が得られた。また連続発光試験においても輝度低下が小さく、少ない消費電力で、極めて長期間にわたって安定して使用できる有機薄膜EL素子を実現できるものである。

---

フロントページの続き

- (72)発明者 川瀬 透  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
- (72)発明者 杉浦 久則  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
- (72)発明者 久田 均  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内
- (72)発明者 水口 信一  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

審査官 伊藤 昌哉

- (56)参考文献 実開平3-62497(JP,U)  
特開平8-241057(JP,A)  
特開平5-35207(JP,A)  
特開昭59-123873(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl.<sup>7</sup>, DB名)  
G09F 9/30  
G09G 3/12、3/14、3/30、3/32