(11)特許出願公開番号

### 特開2020-25111 (P2020-25111A)

(43) 公開日 令和2年2月13日(2020.2.13)

(51) Int.Cl.		FΙ			テーマコード (参考)
HO1L 51/50	(2006.01)	HO5B	33/14	В	3 K 1 O 7
CO9K 11/06	(2006.01)	СОЭК	11/06	690	4C2O4
COTD 209/86	(2006.01)	C O 7 D	209/86		

審査請求 有 請求項の数 12 OL (全 88 頁)

(21) 出願番号 (22) 出願日 (62) 分割の表示	特願2019-190174 (P2019-190174) 令和1年10月17日 (2019.10.17) 特願2018-197509 (P2018-197509)	(71) 出願人	000153878 株式会社半導体エネルギー研究所 神奈川県厚木市長谷398番地	fr	
原出願日 (31)優先権主張番号	の分割 平成25年7月29日 (2013.7.29) 特願2012-172944 (P2012-172944)	(12) 宠明者	<ul> <li>         (項ロ 李大 神奈川県厚木市長谷398番地 半導体エネルギー研究所内     </li> </ul>	株式会社	
(32) 優先日	平成24年8月3日 (2012.8.3)	(72)発明者	瀬尾 広美		
(33) 優先権主張国・地域又は機関 日本国 (JP)			神奈川県厚木市長谷398番地 半導体エネルギー研究所内	株式会社	
<ul><li>(31) 優先権主張番号</li><li>(32) 優先日</li></ul>	特願2013-45127 (P2013-45127) 平成25年3月7日 (2013.3.7)	(72)発明者	安部 寬太 神奈川県厚木市長谷398番地	株式会社	
(33) 優先権主張国・地域又は機関			半導体エネルギー研究所内		
	日本国(JP)	(72)発明者	竹田恭子		
			神奈川県厚木市長谷398番地 半導体エネルギー研究所内	株式会社	
			最終頁に続く		

(54) 【発明の名称】発光層用材料

(19) 日本国特許庁(JP)

(57)【要約】

【課題】長寿命の発光素子を提供する。高輝度領域で高い発光効率を示す発光素子を提供 する。

【解決手段】一対の電極間に、発光層を有し、該発光層は、第1の有機化合物、第2の有 機化合物、及び燐光性化合物を含み、該第1の有機化合物は、一般式(G0)で表される 化合物であり、該第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であり、該第2 の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子。一般式(G0)中、Ar<sup>1</sup> 及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、フルオレニル基、スピロフルオレニル基、又はビフェニ ル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。



10

# (12) 公開特許公報(A)

【特許請求の範囲】

【請求項1】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G0)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子輸送性化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。

【化1】



(式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。)

【請求項2】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G1)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子輸送性化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。



(式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレ ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ 40 ニル基を表し、 は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビ フェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3-カルバゾ リル基を表す。)

【請求項3】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G2)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子輸送性化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。

10



10

20

30

(G2)

(式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレ ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ ニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~1 0のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル 基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を表 し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル 基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換した ターフェニル基を表す。)

【請求項4】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G3)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子輸送性化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。 【化 4 】



40

(3)

ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ ニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に、水 素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換した ビフェニル基を表す。)

【請求項5】

請求項1乃至請求項4のいずれかーにおいて、

前記Ar<sup>1</sup>及び前記Ar<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の2-フルオレニ ル基、置換もしくは無置換のスピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル基、又はビフェ ニル-4-イル基である、発光層用材料。

【請求項6】

請求項1乃至請求項5のいずれか一において、

前記電子輸送性化合物は、キノキサリン骨格、ジベンゾキノキサリン骨格、キノリン骨格、ピラジン骨格、ピリジン骨格、ジアゾ・ル骨格、又はトリアゾール骨格を含む化合物 である、発光層用材料。

【請求項7】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G0)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子不足型複素芳香族化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせ <sup>20</sup> であり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。

【化5】



30

40

10

(式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。)

【請求項8】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G1)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子不足型複素芳香族化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。

【化6】



10

20

(式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレ ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ ニル基を表し、 は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビ フェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3-カルバゾ リル基を表す。)

#### 【請求項9】

第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G2)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子不足型複素芳香族化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。 【化7】



30

40

(G2)

(式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレ ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ ニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~1 0のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル 基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を表 し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル 基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置 換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換した ターフェニル基を表す。) 【請求項10】 第1の有機化合物と、第2の有機化合物と、を含み、

前記第1の有機化合物は、式(G3)で表される化合物であり、

前記第2の有機化合物は、電子不足型複素芳香族化合物であり、

前記第1の有機化合物と、前記第2の有機化合物とは、励起錯体を形成する組み合わせであり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。 【化8】



(式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレ ニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェ ニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に、水 素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換した ビフェニル基を表す。)

【請求項11】

請求項7乃至請求項10のいずれかーにおいて、

前記Ar<sup>1</sup>及び前記Ar<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の2-フルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル基、又はビフェニル-4-イル基である、発光層用材料。

【請求項12】

請求項7乃至請求項11のいずれかーにおいて、

前記 電子不足型複素芳香族化合物は、キノキサリン骨格、ジベンゾキノキサリン骨格 、キノリン骨格、ピラジン骨格、ピリジン骨格、ジアゾ - ル骨格、又はトリアゾール骨格 を含む化合物である、発光層用材料。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【 0 0 0 1 】

本発明は、エレクトロルミネッセンス(EL:Electroluminescence )を利用した発光素子(EL素子とも記す)、発光装置、電子機器、及び照明装置に関す る。

【背景技術】

【 0 0 0 2 】

近年、 EL素子の研究開発が盛んに行われている。 EL素子の基本的な構成は、一対の電 極間に発光物質を含む層を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発 光物質からの発光を得ることができる。

【 0 0 0 3 】

10

EL素子は自発光型であるため、液晶ディスプレイに比べ画素の視認性が高く、バックラ イトが不要である等の利点があり、フラットパネルディスプレイ素子として好適であると 考えられている。また、EL素子は、薄型軽量に作製できることも大きな利点である。さ らに非常に応答速度が速いことも特徴の一つである。 [0004]EL素子は膜状に形成することが可能であるため、面状に発光を得ることができる。よっ て、大面積の素子を容易に形成することができる。このことは、白熱電球やLEDに代表 される点光源、あるいは蛍光灯に代表される線光源では得難い特色であるため、照明等に 応用できる面光源としての利用価値も高い。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 5 \end{bmatrix}$ EL素子は、発光物質が有機化合物であるか、無機化合物であるかによって大別できる。 発光物質に有機化合物を用い、一対の電極間に該有機化合物を含む層を設けた有機EL素 子の場合、発光素子に電圧を印加することにより、陰極から電子が、陽極から正孔(ホー ル)がそれぞれ該有機化合物を含む層に注入され、電流が流れる。そして、注入した電子 及び正孔が該有機化合物を励起状態に至らしめ、励起された該有機化合物から発光を得る ものである。 [0006]有 機 化 合 物 が 形 成 す る 励 起 状 態 の 種 類 と し て は 、 一 重 項 励 起 状 態 と 三 重 項 励 起 状 態 が 可 能 であり、 一 重 項 励 起 状 態 ( S \* ) か ら の 発 光 が 蛍 光 、 三 重 項 励 起 状 態 ( T \* ) か ら の 発 光 が燐光と呼ばれている。 [0007]このような発光素子に関しては、その素子特性を向上させる上で、物質に依存した問題が 多く、これらを克服するために、素子構造の改良や物質開発等が行われている。例えば、 特許文献1には、有機低分子正孔輸送物質、有機低分子電子輸送物質、及び燐光性ドーパ ントを含有する混合層を有する有機発光素子が開示されている。 【先行技術文献】 【特許文献】 [0008]【特許文献1】特表2004-515895号公報 【発明の概要】 【発明が解決しようとする課題】  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 9 \end{bmatrix}$ 有機EL素子の開発は、発光効率、信頼性、コスト等の面で未だ改善の余地が残されてい る。 [0010]また、有機EL素子を用いたディスプレイや照明の実用化に向け、有機EL素子は、長寿 命化や、高輝度領域で高い発光効率を示すことなどが求められている。 [0011]そこで、本発明の一態様は、長寿命の発光素子を提供することを目的とする。また、本発 明の一態様は、高輝度領域で高い発光効率を示す発光素子を提供することを目的とする。 【0012】 また、本発明の一態様は、該発光素子を用いた、信頼性の高い発光装置、電子機器、及び 照明装置を提供することを目的とする。 【課題を解決するための手段】 [0013]本発明の一態様の発光素子は、一対の電極間に発光層を有し、該発光層は、第1の有機化 合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含む。該第1の有機化合物は第3級アミン であり、フルオレン骨格、スピロフルオレン骨格、又はビフェニレン骨格のいずれかを含 む2つの置換基と、カルバゾール骨格を含む1つの置換基とが、それぞれ窒素原子に直接

結合した構造を有する。かつ、該第1の有機化合物の分子量は500以上2000以下で

(7)

30

40

50

10

ある。該第 2 の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である。発光層をこのような構 成とすることで、長寿命の発光素子を実現することができる。また、高輝度領域で高い発 光効率を示す発光素子を実現することができる。

【0014】

具体的には、本発明の一態様は、一対の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機 化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G 0)で表される化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下で あり、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。 【0015】

【化1】

10

30

40



[0016]

ー般式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ 20 ェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

【0017】

また、本発明の一態様は、一対の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機化合物 、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G1)で 表される有機化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であ り、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。

【0018】

【化2】



【0019】

ー般式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ ェニル基を表し、 は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換の ビフェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3-カルバ ゾリル基を表す。

[0020]

また、本発明の一態様は、一対の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機化合物 、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G2)で 表される有機化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であ り、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。 【0021】



(G2)

【0022】

ー 般式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ ェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~ 10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニ ル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を 表し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキ ル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換し たターフェニル基を表す。

【0023】

また、本発明の一態様は、一対の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機化合物 、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G3)で 表される有機化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であ り、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。 【0024】

【化4】



(G3)

[0025]

ー 般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>、及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に

10

20

30

40

、水素、炭素数1~10のアルキル基、 無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1 以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換 したビフェニル基を表す。

【0026】

上記本発明の一態様において、一般式(G0)乃至一般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の2-フルオレニル基、置換もしくは無置換の スピロ - 9,9'-ビフルオレン - 2-イル基、又はビフェニル - 4 - イル基であること が好ましい。

[0027]

上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の <sup>10</sup> 有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G0)で表される有機化合物であり、 第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。 【0028】

【化5】



(G0)

【0029】

ー 般式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ ェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

[0030]

上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の 有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G1)で表される有機化合物であり、 第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。 【0031】

【化6】



(G1)

【0032】

ー般式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3-カルバ ゾリル基を表す。

【 0 0 3 3 】

上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の 有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G2)で表される有機化合物であり、 第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。 20

【0034】 【化7】



(11)

10

(G2)

[0035]

ー 般式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~ 10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を表し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキ ル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~1000アルキル基が1以上

[0036]

上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の 有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G3)で表される有機化合物であり、 第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。 【0037】

【化8】



(G3)

[0038]

ー 般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>、及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に

20

30

、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1 以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換 したビフェニル基を表す。 [0039]上記本発明の一態様において、第3の有機化合物は、第1の有機化合物と同一であること が好ましい。 上記本発明の一態様において、第1の有機化合物と、第2の有機化合物は励起錯体(ex ciplex:エキサイプレックス)を形成する組み合わせであることが好ましい。 10  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 4 & 1 \end{bmatrix}$ 上記本発明の一態様において、電子輸送性を有する化合物は、電子不足型複素芳香族化 合物であることが好ましい。 電子不足型複素芳香族化合物としては、例えば、キノキサ リン骨格、ジベンゾキノキサリン骨格、キノリン骨格、ピリミジン骨格、ピラジン骨格、 ピリジン骨格、ジアゾ - ル骨格、又はトリアゾール骨格を含む化合物が挙げられる。 [0042]また、本発明の一態様は、上記発光素子を発光部に備える発光装置である。また、本発明 の一態様は、該発光装置を表示部に備える電子機器である。また、本発明の一態様は、該 発光装置を発光部に備える照明装置である。 20 本発明の一態様の発光素子は、長寿命であるため、信頼性の高い発光装置を実現すること ができる。同様に、本発明の一態様を適用することで、信頼性の高い電子機器及び照明装 置を実現することができる。 [0044]また、本発明の一態様の発光素子は、高輝度領域で高い発光効率を示すため、発光効率の 高い発光装置を実現することができる。同様に、本発明の一態様を適用することで、発光 効率の高い電子機器及び照明装置を実現することができる。 [0045]なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子を用いた画像表示デバイスを含む。ま た、発光素子にコネクター、例えば異方導電性フィルム、もしくはTCP(Tape С 30 arrier Package)が取り付けられたモジュール、TCPの先にプリント配 線板が設けられたモジュール、又は発光素子にCOG(Chip On Glass)方 式によりIC(集積回路)が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする 。さらに、照明器具等に用いられる発光装置も含むものとする。 【発明の効果】 [0046]本発明の一態様では、長寿命の発光素子を提供できる。該発光素子を用いることで、信頼 性の高い発光装置、電子機器、及び照明装置を提供できる。また、本発明の一態様では、 高輝度領域で高い発光効率を示す発光素子を提供できる。該発光素子を用いることで、発 光効率の高い発光装置、電子機器、及び照明装置を提供できる。 40 【図面の簡単な説明】 [0047] 【図1】本発明の一態様の発光素子の一例を示す図。 【図2】本発明の一態様の発光素子の一例と、励起錯体を説明する図。 【図3】本発明の一態様の発光装置の一例を示す図。 【図4】本発明の一態様の発光装置の一例を示す図。 【図5】電子機器の一例を示す図。 【図6】照明装置の一例を示す図。 【図7】実施例の発光素子を示す図。 【図8】実施例1の発光素子の輝度-電流効率特性を示す図。 50

(12)

【図9】実施例1の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

【図12】実施例2の発光素子の輝度-電流効率特性を示す図。 【図13】実施例2の発光素子の電圧-輝度特性を示す図。 【図14】実施例2の発光素子の輝度 - パワー効率特性を示す図。 【図15】実施例2の発光素子の輝度-外部量子効率特性を示す図。 【図16】実施例2の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。 【図17】実施例3の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。 【図18】実施例3の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。 10 【図19】実施例3の発光素子の輝度 - パワー効率特性を示す図。 【図20】実施例3の発光素子の輝度-外部量子効率特性を示す図。 【図21】N‐(1.1'‐ビフェニル‐4‐イル)‐N‐「4‐(9‐フェニル‐9H - カルバゾール - 3 - イル)フェニル] - 9,9 - ジメチル - 9H - フルオレン - 2 - ア ミン(略称:PCBBiF)の<sup>1</sup>H NMRチャートを示す図。 【図22】PCBBiFのトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。 【図23】PCBBiFの薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。 【図24】N‐(1,1'‐ビフェニル‐4‐イル)‐N‐[4‐(9‐フェニル‐9H - カルバゾール - 3 - イル)フェニル] - 9 , 9 ' - スピロビ[9H - フルオレン] - 2 - アミン(略称:PCBBiSF)の<sup>1</sup>H NMRチャートを示す図。 20 【図25】PCBBiSFのトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図 【図26】PCBBiSFの薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。 【図27】実施例4の発光素子の電圧 - 電流特性を示す図。 【図28】実施例4の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。 【図29】実施例4の発光素子の発光スペクトルを示す図。 【図30】実施例4の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。 【図31】実施例5の発光素子の輝度-電流効率特性を示す図。 【図32】実施例5の発光素子の電圧-輝度特性を示す図。 【図33】実施例5の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。 【図34】実施例5の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。 30 【図35】実施例6の発光素子の輝度-電流効率特性を示す図。 【図36】実施例6の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。 【図37】実施例6の発光素子の輝度-外部量子効率特性を示す図。 【図38】実施例6の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。 【図39】実施例7の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。 【図40】実施例7の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。 【図41】実施例7の発光素子の輝度-外部量子効率特性を示す図。 【図42】実施例7の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。 【発明を実施するための形態】 40 [0048]実施の形態について、図面を用いて詳細に説明する。但し、本発明は以下の説明に限定さ れず、本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し 得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本発明は以下に示す実施の形態の 記載内容に限定して解釈されるものではない。なお、以下に説明する発明の構成において 、同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を異なる図面間で共通して用い、 その繰り返しの説明は省略する。 [0049] (実施の形態1) 本実施の形態では、本発明の一態様の発光素子について図1を用いて説明する。 50 [0050]

(13)

【図10】実施例1の発光素子の輝度-外部量子効率特性を示す図。

【図11】実施例1の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

本実施の形態で例示する発光素子は、一対の電極と、該一対の電極間に設けられた発光性 の有機化合物を含む層(EL層)と、を有する。 [0051]図1(A)に示す発光素子は、第1の電極201及び第2の電極205の間にEL層20 3を有する。本実施の形態では、第1の電極201が陽極として機能し、第2の電極20 5が陰極として機能する。 [0052]第1の電極201と第2の電極205の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加す ると、 E L 層 2 0 3 に第 1 の電極 2 0 1 側から正孔が注入され、第 2 の電極 2 0 5 側から 10 電子が注入される。注入された電子と正孔はEL層203において再結合し、EL層20 3 に含まれる発光物質が発光する。 [0053]E L 層 2 0 3 は、少なくとも発光層 3 0 3 を有する。本実施の形態の発光素子は、発光層 303に、第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含む。 [0054]本実施の形態では、発光物質であるゲスト材料として、燐光性化合物を用いる。また、第 1の有機化合物及び第2の有機化合物のうち、発光層に含まれる割合が多い材料を、該ゲ スト材料を分散するホスト材料という。 [0055]20 本実施の形態の発光素子の発光層は、ゲスト材料の含有量に比べてホスト材料の含有量が 多い。ゲスト材料をホスト材料に分散させた構成とすることにより、発光層の結晶化を抑 制することができる。また、ゲスト材料の濃度が高いことによる濃度消光を抑制し、発光 素子の発光効率を高くすることができる。 [0056]第1の有機化合物は、第3級アミンであり、フルオレン骨格、スピロフルオレン骨格、又 はビフェニレン骨格のいずれかを含む2つの置換基と、カルバゾール骨格を含む1つの置 換基とが、それぞれ窒素原子に直接結合した構造を有する。かつ、該第1の有機化合物の 分子量は500以上2000以下である。該第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化 合物である。 30 [0057]該第3級アミンは、窒素原子に直接結合する置換基として、単純な構造であるフェニル基 やアルキルフェニル基を含まず、代わりにビフェニル基、フルオレニル基、又はスピロフ ルオレニル基を導入しているため、化学的に安定となり、再現性よく安定して長寿命な発 光素子が得られやすい。また、該第3級アミンは、カルバゾール骨格を有するため、熱的 な安定性が高く、信頼性が向上する。さらに、該第3級アミンは、フルオレニルアミン骨 格、スピロフルオレニルアミン骨格、又はビフェニルアミン骨格を有するため、高い正孔 輸送性及び高い電子ブロック性を有する上に、ナフタレン骨格を含むアミン等に比べて三 重項励起エネルギーが高いため、励起子ブロック性にも優れる。そのため、高輝度領域で も電子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができ、高い発光効率を示す発光素子を実現でき 40 る。 [0058] 以下では、発光層303に含まれる第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化 合物として用いることができる材料について、それぞれ詳述する。 【0059】 第1の有機化合物 第1の有機化合物は一般式(G0)で表される化合物であり、第1の有機化合物の分子量 は500以上2000以下である。

 $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 6 & 0 \end{bmatrix}$ 

(14)



[0061]

ー般式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ 10 レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ ェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。 【0062】

一般式(G0)において、フルオレニル基、スピロフルオレニル基、又はビフェニル基が 置換基を有する場合、該置換基としては、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは 炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~1 0のアルキル基が1以上置換したビフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキ ル基が1以上置換したターフェニル基が挙げられる。これらの置換基であれば、一般式( G0)で表される化合物は、置換基を有さない場合に比べて、正孔輸送性、電子ブロック 性、及び励起子ブロック性が低くなりにくい(同程度に高い正孔輸送性、電子ブロック性、 及び励起子ブロック性を示すことができる)。

【0063】

また、Ar <sup>3</sup> としては、置換もしくは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)フェニ ル基、置換もしくは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)ビフェニル基、置換もし くは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)ターフェニル基、置換もしくは無置換の (9-アリール-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル基、置換もしくは無置換の( 9-アリール-9H-カルバゾール-3-イル)ビフェニル基、置換もしくは無置換の( 9 - アリール - 9 H - カルバゾール - 3 - イル)ターフェニル基、置換もしくは無置換の 9-アリール-9H-カルバゾール-3-イル基などが挙げられる。アリール基の具体例 としては、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、無 置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基、無置換もしく は炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したターフェニル基等が挙げられる。なお、 上述した Ar<sup>3</sup>が置換基を有する場合、該置換基としては、炭素数 1 ~ 1 0 のアルキル基 、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、無置換もし くは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基、無置換もしくは炭素数 1~10のアルキル基が1以上置換したターフェニル基などが挙げられる。これらの置換 基であれば、一般式(G0)で表される化合物が、高い正孔輸送性、電子ブロック性、及 び励起子ブロック性を損なうことを抑制できる。

[0064]

発光層 3 0 3 に含まれる第 1 の有機化合物としては、下記一般式(G 1 )で表される化合 40 物が好ましい。

【0065】

(16)



10

[0066]

ー般式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、 は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換の ビフェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3-カルバ ゾリル基を表す。

【 0 0 6 7 】

ー 般 式 (G1)における の具体的な構造の一例を、構造式 (1-1)~構造式 (1-9) )に示す。

【0068】

【化11】





【0069】

発 光 層 3 0 3 に 含 ま れ る 第 1 の 有 機 化 合 物 と し て は 、 下 記 一 般 式 ( G 2 ) で 表 さ れ る 化 合 物 が よ り 好 ま し い 。

【 0 0 7 0 】

20

【化12】



10

(G2)

#### 【0071】

ー 般式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオ レニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフ ェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~ 10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニ ル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を 表し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキ ル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上 置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~1000アルキル基が1以上 置換したビフェニル基を表す。

【0072】

発 光 層 3 0 3 に 含 ま れ る 第 1 の 有 機 化 合 物 と し て は 、 下 記 一 般 式 ( G 3 ) で 表 さ れ る 化 合 物 が 特 に 好 ま し い 。

- 【0073】
- 【化13】



**[** 0 0 7 4 **]** 

ー 般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換し

20

30

たビフェニル基を表す。

【0075】

Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の2-フルオレニル基、置換 もしくは無置換のスピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル基、又はビフェニル-4-イル基であることが好ましい。これらの骨格のいずれかを有する第3級アミンは、高い正 孔輸送性と高い電子ブロック性を有する上に、ナフタレン骨格を含むアミン等に比べて三 重項励起エネルギーが高いため、励起子ブロック性にも優れ、好ましい。さらに、ビフェ ニル基、フルオレニル基、スピロフルオレニル基の中でも、これらの置換位置のものは合 成しやすく、安価であり、好ましい。

(18)

[0076]

一般式(G2)や一般式(G3)における、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>の具体的な構造の一例を、構造式(2-1)~構造式(2-17)に示す。また、上記に挙げた各一般式において、フルオレニル基、スピロフルオレニル基、又はビフェニル基が置換基を有する場合、該置換基としては、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基が挙げられる。これらの具体的な構造の一例としても、構造式(2-2)~構造式(2-17)に示す置換基が挙げられる。また、一般式(G2)におけるAr<sup>4</sup>の具体的な構造の一例としては、構造式(2-2)~ 構造式(2-17)に示す置換基が挙げられる。 【0077】

【化14】







40

10

20

ー般式(G0)に示される有機化合物の具体例としては、構造式(101)~構造式(1 42)に示される有機化合物を挙げることができる。ただし、本発明はこれらに限定され ない.

- [0079]
- 【化15】





(105)



40

30

10

20

[0080]



**[**0081**]** 

40

10

20

【化17】



(114)

[0082]

30



10

20



[0083]

【化19】



(121)



(122)

(124)

Ν

10

20

30



[0084]



10

20

30

[0085]

【化21】 (128) ,CH₃ (129) H<sub>3</sub>C СН₃ H<sub>3</sub>C CH₃ (131) CH<sub>3</sub> Н₃С ℃H<sub>3</sub> (130) ÇH₃ CH3 N (133) CH3 ℃H₃ (132)

10

20



[0086]



30

10

20

## [0087]





[0088]

第2の有機化合物

第2の有機化合物は電子輸送性を有する化合物である。電子輸送性を有する化合物として は、含窒素複素芳香族化合物のような 電子不足型複素芳香族化合物や、キノリン骨格又 はベンゾキノリン骨格を有する金属錯体、オキサゾール系配位子又はチアゾール系配位子 を有する金属錯体などを用いることができる。 【0089】

具体的には、ビス(10 - ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(II)(略 称:BeB q <sub>2</sub> )、ビス(2 - メチル - 8 - キノリノラト)(4 - フェニルフェノラト)

10

20

30

アルミニウム(III)(略称:BAlq)、ビス(8-キノリノラト)亜鉛(II)( 略称: Znq)、ビス[2-(2-ベンゾオキサゾリル)フェノラト]亜鉛(II)(略 称: Zn(BOX), 、ビス[2-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラト] 亜鉛(II ) (略称:Zn(BTZ))) などの金属錯体、2-(4-ビフェニリル)-5-(4tert-ブチルフェニル) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール(略称: PBD)、 3 - ( 4 - ビフェニリル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - tert - プチルフェニル) - 1 , 2 , 4 - トリアゾール(略称:TAZ)、1 , 3 - ビス[5 - (p - tert - ブチルフェニ ル) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール - 2 - イル]ベンゼン(略称: O X D - 7)、9 -[4-(5-フェニル-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称: CO11)、2,2',2',-(1,3,5-ベンゼントリイル )トリス(1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール)(略称: TPBI)、2-[3-(ジベンゾチオフェン - 4 - イル)フェニル ] - 1 - フェニル - 1 H - ベンゾイミダゾー ル(略称: m D B T B I m - I I )などのポリアゾール骨格を有する複素環化合物、 2 -[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン( 略称:2mDBTPDBQ-II)、7-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェ ニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称:7mDBTPDB q -II)、6-[3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称 : 6 m D B T P D B q - I I )、2 - [3'-(ジベンゾチオフェン - 4 - イル)ビフェ ニル-3-イル]ジベンゾ[f、h]キノキサリン(略称:2mDBTBPDBQ-II )、2 - [3'-(9H-カルバゾール - 9 - イル)ビフェニル - 3 - イル]ジベンゾ[ f、 h ] キノキサリン(略称: 2 m C z B P D B q ) などのキノキサリン骨格又はジベン ゾキノキサリン骨格を有する複素環化合物、 4,6-ビス「3-(フェナントレン-9-イル)フェニル]ピリミジン(略称:4,6mPnP2Pm)、4,6-ビス[3-(9 H - カルバゾール - 9 - イル)フェニル]ピリミジン(略称: 4 , 6 m C z P 2 P m)、 4,6-ビス[3-(4-ジベンゾチエニル)フェニル]ピリミジン(略称:4,6mD BTP2Pm-II)などのジアジン骨格(ピリミジン骨格やピラジン骨格)を有する複 素環化合物、3,5-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ピリジン (略称:3,5DCzPPy)、1,3,5-トリ[3-(3-ピリジル)フェニル]ベ ンゼン(略称:TmPyPB)、3,3',5,5' - テトラ[(m - ピリジル) - フェ ン-3-イル]ビフェニル(略称: BP4mPy)などのピリジン骨格を有する複素環化 合物が挙げられる。上述した中でも、キノキサリン骨格又はジベンゾキノキサリン骨格を 有する複素環化合物、ジアジン骨格を有する複素環化合物、ピリジン骨格を有する複素環 化合物は、信頼性が良好であり好ましい。

【 0 0 9 0 】

燐 光 性 化 合 物

発光層303に用いることができる燐光性化合物の一例を挙げる。例えば、440nm~ 520nmに発光のピークを有する燐光性化合物としては、トリス{2-[5-(2-メ チルフェニル) - 4 - (2,6-ジメチルフェニル) - 4H - 1,2,4 - トリアゾール - 3 - イル - N2]フェニル - C}イリジウム(III)(略称:[Ir(mppt z - dmp)<sub>3</sub>])、トリス(5 - メチル - 3,4 - ジフェニル - 4H - 1,2,4 - ト リアゾラト)イリジウム(III)(略称:[Ir(Mptz)<sub>3</sub>])、トリス[4 - ( 3 - ピフェニル) - 5 - イソプロピル - 3 - フェニル - 4H - 1,2,4 - トリアゾラト ]イリジウム(III)(略称:[Ir(iPrptz - 3b)<sub>3</sub>])のような4H - ト リアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス[3 - メチル - 1 - (2 - メ チルフェニル) - 5 - フェニル - 1H - 1,2,4 - トリアゾラト]イリジウム(III) )(略称:[Ir(Mptz1 - mp)<sub>3</sub>])、トリス(1 - メチル - 5 - フェニル - 3 - プロピル - 1H - 1,2,4 - トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウ ム錯体や、fac - トリス[1 - (2,6 - ジイソプロピルフェニル) - 2 - フェニル -1H - イミダゾール]イリジウム(III)(略称:[Ir(iPrpmi)<sub>3</sub>])、ト

(28)

30

40

50

10

リス[3 - (2,6 - ジメチルフェニル) - 7 - メチルイミダゾ[1,2 - f]フェナン トリジナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(dmpimpt-Me)<sub>3</sub>])のよ うなイミダゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ビス[2 - (4',6'-ジ フルオロフェニル)ピリジナト - N,C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)テトラキス(1 - ピ ラゾリル)ボラート(略称:FIr6)、ビス[2 - (4',6'-ジフルオロフェニル )ピリジナト - N,C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)ピコリナート(略称:FIrpic) 、ビス { 2 - [3',5'-ビス(トリフルオロメチル)フェニル]ピリジナト - N,C <sup>2'</sup>}イリジウム(III)ピコリナート(略称:[Ir(CF<sub>3</sub>ppy)<sub>2</sub>(pic) ])、ビス[2 - (4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト - N,C<sup>2'</sup>]イリジ ウム(III)アセチルアセトナート(略称:FIracac)のような電子吸引基を有 するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属イリジウム錯体が挙げられる。上述 した中でも、4H - トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光 効率が優れるため、特に好ましい。

【0091】

また、例えば、520nm~600nmに発光のピークを有する燐光性化合物としては、 トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir (mppm)<sub>3</sub>])、トリス(4 - t - ブチル - 6 - フェニルピリミジナト)イリジウム (III)(略称: [Ir(tBuppm)3])、(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppm) 2 (acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(6 - tert - ブチル - 4 - フェニ ルピリミジナト) イリジウム(III) (略称: [Ir (t B u p p m)), (a c a c ) ])、(アセチルアセトナト)ビス[4-(2-ノルボルニル)-6-フェニルピリミジ ナト]イリジウム(III)(endo-, exo-混合物)(略称: [Ir(nbpp) m),(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[5-メチル-6-(2-メチル フェニル) - 4 - フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(略称: [Ir(mpm ppm) ( a c a c ) ] )、(アセチルアセトナト)ビス( 4 , 6 - ジフェニルピリミ ジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dppm) ﹖(acac)])のような ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(3, 5 - ジメチル - 2 - フェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mpp r - Me) 2 (acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(5 - イソプロピル - 3 -メチル - 2 - フェニルピラジナト) イリジウム(III)(略称: [Ir(mppr-i Pr)。(acac)])のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ト リス(2-フェニルピリジナト-N,C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)(略称:[Ir(p py) 3 ])、ビス(2-フェニルピリジナト - N,C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)アセ チルアセトナート(略称: [Ir(ppy)<sub>2</sub>(acac)])、ビス(ベンゾ[h]キ ノリナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(bzq)<sub>2</sub>(a cac)])、トリス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)(略称:[Ir (bzq)<sub>3</sub>])、トリス(2-フェニルキノリナト - N, C<sup>2'</sup>)イリジウム(III ) (略称:[Ir (pq)<sub>3</sub>])、ビス(2 - フェニルキノリナト - N , C<sup>2 '</sup>) イリジ ウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(pq)<sub>2</sub>(acac)])のよう なピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、トリス(アセチルアセトナト)( モノフェナントロリン)テルビウム(III)(略称:「Tb(acac)ュ(Phen )))のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する 有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率が際だって優れるため、特に好ましい。 [0092]

また、例えば、600nm~700nmに発光のピークを有する燐光性化合物としては、 (ジイソブチリルメタナト)ビス[4,6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト] イリジウム(III)(略称:[Ir(5mdppm)<sub>2</sub>(dibm)])、ビス[4, 6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト](ジピバロイルメタナト)イリジウム( III)(略称:[Ir(5mdppm)<sub>2</sub>(dpm)])、ビス[4,6-ジ(ナフタ 10

20



レン-1-イル)ピリミジナト1(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称 : [Ir (d 1 n p m ) , (d p m ) ] )のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリ ジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)イ **リジウム(**III)(略称: [Ir(tppr), (acac)])、ビス(2,3,5 - トリフェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[ Ir ( t p p r ) っ ( d p m ) ] ) 、 ( アセチルアセトナト ) ビス [ 2 , 3 - ビス ( 4 -フルオロフェニル)キノキサリナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(Fdpq) 2(acac)])のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス( 1 - フェニルイソキノリナト - N , C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)(略称:[Ir(pi q ) <sub>3</sub> ] )、ビス ( 1 - フェニルイソキノリナト - N , C <sup>2 '</sup> ) イリジウム ( I I I ) ア セチルアセトナート(略称:[Ir(pi q) 。(acac)])のようなピリジン骨格 を有する有機金属イリジウム錯体の他、 2 , 3 , 7 , 8 , 1 2 , 1 3 , 1 7 , 1 8 - オク タエチル - 2 1 H , 2 3 H - ポルフィリン白金(II)(略称:PtOEP)のような白 金錯体や、トリス(1,3-ジフェニル-1,3-プロパンジオナト)(モノフェナント ロリン)ユーロピウム(III)(略称: [Eu(DBM)<sub>3</sub>(Phen)])、トリス [1-(2-テノイル)-3,3,-トリフルオロアセトナト](モノフェナントロリ ン) ユーロピウム ( I I I ) (略称: [ E u ( T T A ) <sub>3</sub> ( P h e n ) ] ) のような希土 類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム 錯体は、信頼性や発光効率が際だって優れるため、特に好ましい。また、ピラジン骨格を 有する有機金属イリジウム錯体は、色度の良い赤色発光が得られる。

[0093]

上述した第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含む構成の発光層を 適用することで、長寿命の発光素子を作製することができる。また、該発光層を適用する ことで、高輝度領域で高い発光効率を示す発光素子を作製することができる。 【0094】

また、発光層を複数設け、それぞれの層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、発光層を2つ有する発光素子において、第1の発光層の発光色と第2の発光層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。なお、補色とは、混合すると無彩色になる色同士の関係をいう。つまり、補色の関係にある色を発光する物質から得られた光を混合すると、白色発光を得ることができる。また、発光層を3つ以上有する発光素子の場合でも同様である。なお、複数の発光層を有する本発明の一態様の発光素子では、少なくとも1つの発光層に上述の構成(第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含む構成)が適用されていれば良く、全ての発光層に適用されていても良い。

【0095】

また、 EL層203は、発光層以外の層として、正孔注入性の高い物質、正孔輸送性の高い物質、正孔ブロック材料、電子輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、又はバイポーラ性の物質(電子輸送性及び正孔輸送性が高い物質)等を含む層をさらに有していても良い。 EL層203には公知の物質を用いることができ、低分子系化合物及び高分子系化合物のいずれを用いることもでき、無機化合物を含んでいても良い。

【 0 0 9 6 】

図1(B)に示す発光素子は、第1の電極201及び第2の電極205の間にEL層20 3を有し、該EL層203では、正孔注入層301、正孔輸送層302、発光層303、 電子輸送層304及び電子注入層305が、第1の電極201側からこの順に積層されて いる。

【 0 0 9 7 】

図1 (C)に示す発光素子は、第1の電極201及び第2の電極205の間にEL層20 3を有し、さらに、EL層203及び第2の電極205の間に、中間層207を有する。 【0098】 10

20

中間層207の具体的な構成例を、図1(D)に示す。中間層207は、電荷発生領域3 08を少なくとも有する。中間層207は、電荷発生領域308以外の層として、電子リ レー層307や、電子注入バッファー層306をさらに有していても良い。図1(D)で は、第1の電極201上にEL層203を有し、EL層203上に中間層207を有し、 中間層207上に第2の電極205を有する。また、図1(D)では、中間層207とし て、EL層203側から、電子注入バッファー層306、電子リレー層307、及び電荷 発生領域308が設けられている。

[0099]

第1の電極201と第2の電極205の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加す ると、電荷発生領域308において、正孔と電子が発生し、正孔は第2の電極205へ移 動し、電子は電子リレー層307へ移動する。電子リレー層307は電子輸送性が高く、 電荷発生領域308で生じた電子を電子注入バッファー層306に速やかに受け渡す層で ある。電子注入バッファー層306はEL層203の電子注入障壁を低減し、EL層20 3への電子注入効率を高める層である。従って、電荷発生領域308で発生した電子は、 電子リレー層307と電子注入バッファー層306を経て、EL層203のLUMO(L owest Unoccupied Molecular Orbital、最低空分子 軌道)準位に注入される。

また、電子リレー層307は、電荷発生領域308を構成する物質と電子注入バッファー 層306を構成する物質が界面で反応し、互いの機能が損なわれてしまう等の相互作用を <sup>20</sup> 防ぐことができる。

図1(E)(F)に示す発光素子のように、第1の電極201及び第2の電極205の間 に複数のEL層が積層されていても良い。この場合、積層されたEL層の間には、中間層 207を設けることが好ましい。例えば、図1(E)に示す発光素子は、第1のEL層2 03aと第2のEL層203bとの間に、中間層207を有する。また、図1(F)に示 す発光素子は、EL層をn層(nは2以上の自然数)有し、m番目のEL層203(m) と、(m+1)番目のEL層203(m+1)との間に、中間層207を有する。なお、 複数のEL層を有する本発明の一態様の発光素子では、少なくとも1つのEL層に含まれ る発光層に上述の構成(第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含む 構成)が適用されていれば良く、全てのEL層に含まれる発光層に適用されていても良い

0

【0102】

E L 層 2 0 3 (m) と E L 層 2 0 3 (m + 1)の間に設けられた中間層 2 0 7 における電子と正孔の挙動について説明する。第1の電極 2 0 1 と 第 2 の電極 2 0 5 の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加すると、中間層 2 0 7 において正孔と電子が発生し、正孔は第2の電極 2 0 5 側に設けられた E L 層 2 0 3 (m + 1)へ移動し、電子は第1の電極 2 0 1 側に設けられた E L 層 2 0 3 (m)へ移動する。E L 層 2 0 3 (m + 1)に注入された正孔は、第2の電極 2 0 5 側から注入された電子と再結合し、当該 E L 層 2 0 3 (m)に注入された電子は、第1の電極 2 0 1 側から注入された正孔と再結合し、当該 E L 層 2 0 3 (m)に含まれる発光物質が発光する。また、E L 層 2 0 3 (m)に注入された電子は、第1の電極 2 0 1 側から注入された正孔と再結合し、当該 E L 層 2 0 3 (m)に含まれる発光物質が発光する。よって、中間層 2 0 7 において発生した正孔と電子は、それぞれ異なる E L 層において発光に至る。

【0103】

なお、 E L 層同士を接して設けることで、両者の間に中間層と同じ構成が形成される場合 は、 E L 層同士を接して設けることができる。例えば、 E L 層の一方の面に電荷発生領域 が形成されている場合、その面に接して E L 層を設けることができる。 【 0 1 0 4 】

また、それぞれのEL層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望 の色の発光を得ることができる。例えば、2つのEL層を有する発光素子において、第1

10

40

のEL層の発光色と第2のEL層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素 子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。また、3つ以上のEL層を 有する発光素子の場合でも同様である。

(32)

[0105]

図 1 ( B ) 乃至( E ) は、互いに組み合わせて用いることができる。例えば、図 1 ( F ) の第 2 の電極 2 0 5 と E L 層 2 0 3 ( n ) の間に中間層 2 0 7 を設けることもできる。 【 0 1 0 6 】

以下に、それぞれの層に用いることができる材料を例示する。なお、各層は、単層に限ら れず、二層以上積層しても良い。

【 0 1 0 7 】

陽極

陽極として機能する電極(本実施の形態では第1の電極201)は、導電性を有する金属 、合金、導電性化合物等を1種又は複数種用いて形成することができる。特に、仕事関数 の大きい(4.0 e V 以上)材料を用いることが好ましい。例えば、インジウムスズ酸化 物(ITO:Indium Tin Oxide)、珪素もしくは酸化珪素を含有したイ ンジウムスズ酸化物、インジウム亜鉛酸化物、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した 酸化インジウム、グラフェン、金、白金、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン 、鉄、コバルト、銅、パラジウム、又は金属材料の窒化物(例えば、窒化チタン)等が挙 げられる。

【0108】

なお、 陽極が電荷発生領域と接する場合は、仕事関数の大きさを考慮せずに、様々な導電 性材料を用いることができ、例えば、アルミニウム、銀、アルミニウムを含む合金等も用 いることができる。

【 0 1 0 9 】

陰 極

陰極として機能する電極(本実施の形態では第2の電極205)は、導電性を有する金属 、合金、導電性化合物などを1種又は複数種用いて形成することができる。特に、仕事関 数が小さい(3.8 e V 以下)材料を用いることが好ましい。例えば、元素周期表の第1 族又は第2族に属する元素(例えば、リチウム、セシウム等のアルカリ金属、カルシウム 、ストロンチウム等のアルカリ土類金属、マグネシウム等)、これら元素を含む合金(例 えば、Mg-Ag、Al-Li)、ユーロピウム、イッテルビウム等の希土類金属、これ ら希土類金属を含む合金、アルミニウム、銀等を用いることができる。

[0110]

なお、陰極が電荷発生領域と接する場合は、仕事関数の大きさを考慮せずに、様々な導電 性材料を用いることができる。例えば、ITO、珪素又は酸化珪素を含有したインジウム スズ酸化物等も用いることができる。

【0111】

発光素子は、陽極又は陰極の一方が可視光を透過する導電膜であり、他方が可視光を反射 する導電膜である構成としても良いし、陽極及び陰極の両方が可視光を透過する導電膜で ある構成としても良い。

【0112】

可視光を透過する導電膜は、例えば、酸化インジウム、ITO、インジウム亜鉛酸化物、 酸化亜鉛、ガリウムを添加した酸化亜鉛などを用いて形成することができる。また、金、 白金、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、パラジウム、 もしくはチタン等の金属材料、又はこれら金属材料の窒化物(例えば、窒化チタン)等も 、透光性を有する程度に薄く形成することで用いることができる。また、グラフェン等を 用いても良い。

【0113】

可視光を反射する導電膜は、例えば、アルミニウム、金、白金、銀、ニッケル、タングス テン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、もしくはパラジウム等の金属材料、アル

10

30

ミニウムとチタンの合金、アルミニウムとニッケルの合金、アルミニウムとネオジムの合 金等のアルミニウムを含む合金(アルミニウム合金)、又は、銀と銅の合金等の銀を含む 合金を用いて形成することができる。銀と銅の合金は、耐熱性が高いため好ましい。また 、上記金属材料や合金に、ランタン、ネオジム、又はゲルマニウム等が添加されていても 良い。

[0114]

電極は、それぞれ、真空蒸着法やスパッタリング法を用いて形成すれば良い。また、銀ペ ースト等を用いる場合には、塗布法やインクジェット法を用いれば良い。

【 0 1 1 5 】

正孔注入層301

10

20

30

正孔注入層301は、正孔注入性の高い物質を含む層である。

【0116】

正孔注入性の高い物質としては、例えば、モリブデン酸化物、チタン酸化物、バナジウム酸化物、レニウム酸化物、ルテニウム酸化物、クロム酸化物、ジルコニウム酸化物、ハフ ニウム酸化物、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等の金 属酸化物等を用いることができる。

**[**0 1 1 7 **]** 

また、フタロシアニン(略称: H<sub>2</sub> P c )、銅( I I )フタロシアニン(略称: C u P c )等のフタロシアニン系の化合物を用いることができる。

**[**0 1 1 8 **]** 

また、低分子の有機化合物である4,4',4',4''-トリス(N,N-ジフェニルアミノ) トリフェニルアミン(略称:TDATA)、4,4',4''-トリス[N-(3-メ チルフェニル) - N - フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称:MTDATA)、4 ,4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル) - N - フェニルアミノ]ビフェニ ル(略称:DPAB)、4,4'-ビス(N-{4-[N'-(3-メチルフェニル) -N'-フェニルアミノ]フェニル} - N - フェニルアミノ)ビフェニル(略称:DNTP D)、1,3,5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノ)ビフェニル) - N - フェニルアミ ノ]ベンゼン(略称:DPA3B)、3-[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル ) - N - フェニルアミノ] - 9 - フェニルカルバゾール(略称:PC z P C A 1)、3, 6 - ビス[N-(9-フェニルカルバゾール-3-イル)) - N - フェニルアミノ] - 9 -フェニルカルバゾール(略称:PC z P C A 2)、3 - [N - (1 - ナフチル)) - N - ( 9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル)アミノ] - 9 - フェニルカルバゾール(略称:P C z P C N 1)等の芳香族アミン化合物を用いることができる。

**[**0 1 1 9 **]** 

また、ポリ(N - ビニルカルバゾール)(略称: P V K)、ポリ(4 - ビニルトリフェニ ルアミン)(略称: P V T P A)、ポリ[N - (4 - {N' - [4 - (4 - ジフェニルア ミノ)フェニル]フェニル - N' - フェニルアミノ}フェニル)メタクリルアミド](略 称: P T P D M A)、ポリ[N,N' - ビス(4 - プチルフェニル) - N,N' - ビス( フェニル)ベンジジン](略称: P o 1 y - T P D)等の高分子化合物、ポリ(3,4 -エチレンジオキシチオフェン) / ポリ(スチレンスルホン酸)(P E D O T / P S S)、 ポリアニリン / ポリ(スチレンスルホン酸)(P A n i / P S S)等の酸を添加した高分 子化合物を用いることができる。

また、正孔注入層301を、電荷発生領域としても良い。陽極と接する正孔注入層301 が電荷発生領域であると、仕事関数を考慮せずに様々な導電性材料を該陽極に用いること ができる。電荷発生領域を構成する材料については後述する。

【 0 1 2 1 】

正孔輸送層302

正孔輸送層302は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。正孔輸送性の高い物質とし ては、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば良く、特に、10<sup>-6</sup>cm<sup>2</sup>/Vs以

50

上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。 正孔輸送層302には、上述の一般式(G0)乃至(G3)のいずれかで表される有機化 合物を用いることができる。正孔輸送層302と、発光層303の両方に上述の一般式( G0)乃至(G3)のいずれかで表される有機化合物をそれぞれ適用することで、正孔注 入障壁を低減することができ、発光効率を高めるだけでなく、駆動電圧を低減することが できる。すなわち、このような構成とすることで、上述したように高輝度領域で高い発光 効率を保つことができるだけでなく、駆動電圧を低く抑えることができる。その結果、高 輝度でも電圧ロスによる電力効率の低下が少ない発光素子、すなわち、電力効率が高い( 10 消費電力の小さい)発光素子を得ることができる。特に、正孔注入障壁の観点からは、正 孔輸送層302と発光層303に同一の有機化合物を含むことが好ましい。 そのほかの正孔輸送性の高い物質としては、例えば、4,4.・ビス[N-(1-ナフチ ル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル(略称: N P B 又は - N P D )、 N , N '- ビ ス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-「1,1'-ビフェニル]-4,4 ' - ジアミン(略称:TPD)、4 - フェニル - 4 ' - (9 - フェニルフルオレン - 9 -イル)トリフェニルアミン(略称: BPAFLP)、 4 , 4 ' - ビス [ N - ( 9 , 9 - ジ メチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DFLDPB i)、 4 , 4 '-ビス [ N - (スピロ - 9 , 9 '-ビフルオレン - 2 - イル) - N フェ 20 ニルアミノ」ビフェニル(略称:BSPB)等の芳香族アミン化合物を用いることができ る。 また、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称:CBP)、9-[4-(1 0 - フェニル - 9 - アントリル)フェニル] - 9 H - カルバゾール(略称: C z P A)、 9 - フェニル - 3 - [4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル)フェニル] - 9 H - カル バゾール(略称:PCzPA)等のカルバゾール誘導体を用いることができる。 また、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-B u D N A )、 9 , 1 0 - ジ(2 - ナフチル)アントラセン(略称: D N A )、 9 , 1 0 30 ジフェニルアントラセン(略称: D P A n t h)等の芳香族炭化水素化合物を用いるこ とができる。 [0126]また、PVK、PVTPA、PTPDMA、Poly-TPD等の高分子化合物を用いる ことができる。 **[**0 1 2 7 **]** 電子輸送層304 電子輸送層304は、電子輸送性の高い物質を含む層である。 [0128] 電子輸送性の高い物質としては、正孔よりも電子の輸送性の高い有機化合物であれば良く 40 、特に、10<sup>-6</sup>cm<sup>2</sup>/Vs以上の電子移動度を有する物質であることが好ましい。 **[**0129**]** 電子輸送層304には、発光層303に含まれる第2の有機化合物(電子輸送性を有する 化合物)を適用することができる。 **[**0130**]** そのほか、電子輸送層304には、例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム( III)(略称:Alq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(I II)(略称:Almq<sub>3</sub>)等の金属錯体を用いることができる。 

また、バソフェナントロリン(略称: B P h e n )、バソキュプロイン(略称: B C P) 、 3 - ( 4 - t e r t - プチルフェニル) - 4 - ( 4 - エチルフェニル) - 5 - ( 4 - ビ 50 フェニリル) - 1,2,4 - トリアゾール(略称:p - EtTAZ)、4,4' - ビス( 5 - メチルベンゾオキサゾール - 2 - イル)スチルベン(略称:BzOs)等の複素芳香 族化合物を用いることができる。

【0132】

また、ポリ(2,5-ピリジンジイル)(略称:PPy)、ポリ[(9,9-ジヘキシル フルオレン-2,7-ジイル)-co-(ピリジン-3,5-ジイル)](略称:PF-Py)、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(2,2' -ビピリジン-6,6'-ジイル)](略称:PF-BPy)等の高分子化合物を用いる ことができる。

【0133】

#### 電子注入層305

電子注入層305は、電子注入性の高い物質を含む層である。

【0134】

電子注入性の高い物質としては、例えば、リチウム、セシウム、カルシウム、酸化リチウム、炭酸リチウム、炭酸セシウム、フッ化リチウム、フッ化セシウム、フッ化カルシウム 、フッ化エルビウム等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属又はこれら の化合物(酸化物、炭酸塩、ハロゲン化物など)を用いることができる。

【0135】

また、電子注入層305は、前述の電子輸送性の高い物質とドナー性物質とを含む構成としても良い。例えば、Alq中にマグネシウム(Mg)を含有させることで電子注入層3 2005を形成しても良い。電子輸送性の高い物質とドナー性物質を含む場合、電子輸送性の高い物質に対するドナー性物質の添加量の質量比は0.001以上0.1以下の比率が好ましい。

【0136】

ドナー性の物質としては、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム 、イッテルビウム、酸化リチウム、カルシウム酸化物、バリウム酸化物、酸化マグネシウ ム等のような、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、又はこれらの化合物(酸 化物)、ルイス塩基の他、テトラチアフルバレン(略称:TTF)、テトラチアナフタセ ン(略称:TTN)、ニッケロセン、デカメチルニッケロセン等の有機化合物を用いるこ とができる。

【0137】

電荷発生領域

正孔注入層を構成する電荷発生領域や、電荷発生領域308は、正孔輸送性の高い物質と アクセプター性物質(電子受容体)を含む領域である。アクセプター性物質は、正孔輸送 性の高い物質に対して質量比で0.1以上4.0以下の比率で添加されていることが好ま しい。

【0138】

また、電荷発生領域は、同一膜中に正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含有す る場合だけでなく、正孔輸送性の高い物質を含む層とアクセプター性物質を含む層とが積 層されていても良い。但し、電荷発生領域を陰極側に設ける場合には、正孔輸送性の高い 物質を含む層が陰極と接する構造となり、電荷発生領域を陽極側に設ける積層構造の場合 には、アクセプター性物質を含む層が陽極と接する構造となる。

【0139】

正孔輸送性の高い物質としては、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば良く、特に、10<sup>-6</sup> cm<sup>2</sup> / V s以上の正孔移動度を有する有機化合物であることが好ましい。

【0140】

具体的には、上述の一般式(G0)で表される化合物や、NPB、BPAFLP等の芳香 族アミン化合物、CBP、CzPA、PCzPA等のカルバゾール誘導体、t - BuDN A、DNA、DPAnth等の芳香族炭化水素化合物、PVK、PVTPA等の高分子化 30

10

合物など、正孔輸送層302に用いることができる物質として例示した正孔輸送性の高い 物質を用いることができる。

【0141】

アクセプター性物質としては、7,7,8,8-テトラシアノ-2,3,5,6-テトラ フルオロキノジメタン(略称:F<sub>4</sub>-TCNQ)、クロラニル等のハロゲン化合物、ピラ ジノ[2,3-f][1,10]フェナントロリン-2,3-ジカルボニトリル(略称: PPDN)、ジピラジノ[2,3-f:2',3'-h]キノキサリン-2,3,6,7 ,10,11-ヘキサカルボニトリル(略称:HAT-CN)等のシアノ化合物、遷移金 属酸化物、元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることがで きる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリ ブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高いため好まし い。特に、酸化モリブデンは、大気中で安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため、好 ましい。

【0142】

電子注入バッファー層306

電子リレー層 3 0 7

電子注入バッファー層306は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入バッファー層306は、電荷発生領域308からEL層203への電子の注入を容易にする。電 子注入性の高い物質としては、前述の材料を用いることができる。また、電子注入バッフ ァー層306は、前述の電子輸送性の高い物質とドナー性物質を含む構成としても良い。 【0143】

20

30

10

電子リレー層307では、電荷発生領域308においてアクセプター性物質が引き抜いた 電子を速やかに受け取る。

[0144]

電子リレー層307は、電子輸送性の高い物質を含む。該電子輸送性の高い物質としては フタロシアニン系の材料又は金属 - 酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体を用いるこ とが好ましい。

【0145】

該フタロシアニン系材料としては、具体的にはCuPc、SnPc(Phthalocy anine tin(II) complex)、ZnPc(Phthalocyani ne zinc complex)、CoPc(Cobalt(II)phthaloc yanine, form)、FePc(Phthalocyanine Iron )、PhO-VOPc(Vanadyl 2,9,16,23-tetraphenox y-29H,31H-phthalocyanine)等が挙げられる。

[0146]

該金属 - 酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体としては、金属 - 酸素の二重結合を有 する金属錯体を用いることが好ましい。金属 - 酸素の二重結合はアクセプター性を有する ため、電子の移動(授受)がより容易になる。

 また、該金属 - 酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体としては、フタロシアニン系材
 料が好ましい。特に、VOPc(Vanadyl phthalocyanine)、S nOPc(Phthalocyanine tin(IV) oxide comple x)、TiOPc(Phthalocyanine titanium oxide c omplex)は、分子構造的に金属 - 酸素の二重結合が他の分子に対して作用しやすく 、アクセプター性が高いため、好ましい。

【0148】

該フタロシアニン系材料としては、フェノキシ基を有するものが好ましく、具体的には P h O - V O P c のような、フェノキシ基を有するフタロシアニン誘導体が好ましい。フェ ノキシ基を有するフタロシアニン誘導体は、溶媒に可溶であるため、発光素子を形成する 上で扱いやすい、かつ、成膜に用いる装置のメンテナンスが容易であるという利点を有す
る。

[0149]

また、その他の電子輸送性の高い物質として、例えば、3,4,9,10-ペリレンテト ラカルボン酸二無水物(略称:PTCDA)、3,4,9,10 - ペリレンテトラカルボ キシリックビスベンゾイミダゾール(略称:PTCBI)、N,N'-ジオクチル-3, 4,9,10-ペリレンテトラカルボン酸ジイミド(略称: PTCDI-C8H)、N, N ' - ジヘキシル - 3 , 4 , 9 , 1 0 - ペリレンテトラカルボン酸ジイミド(略称: H e x PTC)等のペリレン誘導体や、ピラジノ[2,3-f][1,10]フェナントロ リン - 2 , 3 - ジカルボニトリル(略称: P P D N )、 2 , 3 , 6 , 7 , 1 0 , 1 1 - ヘ キサシアノ - 1 , 4 , 5 , 8 , 9 , 1 2 - ヘキサアザトリフェニレン(略称:HAT(C N)<sub>6</sub>)、2,3-ジフェニルピリド [2,3-b]ピラジン(略称:2PYPR)、 ,3.ビス(4.フルオロフェニル)ピリド「2,3.blピラジン(略称:F2PYP R)等の含窒素縮合芳香族化合物などを用いても良い。含窒素縮合芳香族化合物は安定で あるため、電子リレー層307を形成する為に用いる材料として好ましい。 

また、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(略称:TCNQ)、1,4,5,8 - ナフタレンテトラカルボン酸二無水物(略称:NTCDA)、パーフルオロペンタセン 、 銅 ヘ キ サ デ カ フ ル オ ロ フ タ ロ シ ア ニ ン ( 略 称 : F <sub>1 6</sub> C u P c )、 N , N ' - ビ ス ( 2 , 2 , 3 , 3 , 4 , 4 , 5 , 5 , 6 , 6 , 7 , 7 , 8 , 8 , 8 - ペンタデカフルオロオク チル)-1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド(略称:NTCDI-C , 4 ' - ジブチル - 5 , 5 ' ' - ビス(ジシアノメチレン) - 5 , 5 ' ' -8 F ) 、 3 ' ジヒドロ - 2 , 2 ' : 5 ' , 2 ' ' - テルチオフェン(略称:DCMT)、メタノフラー レン (例えば、 [6,6] - フェニル C<sub>61</sub> 酪酸メチルエステル) 等を用いることができ る。

 $\begin{bmatrix} 0 & 1 & 5 & 1 \end{bmatrix}$ 

電子リレー層307は、上述のドナー性物質をさらに含んでいても良い。電子リレー層3 07にドナー性物質を含ませることによって、電子の移動が容易となり、発光素子をより 低電圧で駆動することが可能になる。

[0152]

該電子輸送性の高い物質や該ドナー性物質のLUMO準位は、電荷発生領域308に含ま れるアクセプター性物質のLUMO準位と、電子輸送層304に含まれる電子輸送性の高 い物質のLUMO準位(又は電子リレー層307が(電子注入バッファー層306を介し て)接するEL層203のLUMO準位)の間となるようにする。LUMO準位は、 - 5 .0eV以上-3.0eV以下とするのが好ましい。なお、電子リレー層307にドナー 性物質を含ませる場合、電子輸送性の高い物質として、電荷発生領域308に含まれるア クセプター性物質のアクセプター準位より高いLUMO準位を有する物質を用いることが できる。

[0153]

なお、上述したEL層203及び中間層207を構成する層は、それぞれ、蒸着法(真空 40 蒸着法を含む)、転写法、印刷法、インクジェット法、塗布法等の方法で形成することが できる。

**[**0154]

本実施の形態で示した発光素子を用いて、パッシブマトリクス型の発光装置や、トランジ スタによって発光素子の駆動が制御されたアクティブマトリクス型の発光装置を作製する ことができる。また、該発光装置を電子機器又は照明装置等に適用することができる。 

本実施の形態は、他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

**[**0156**]** 

(実施の形態2)

本実施の形態では、本発明の一態様の発光素子について図2を用いて説明する。

10

図2(A)に示す発光素子は、第1の電極201及び第2の電極205の間にEL層20 3 を有する。 E L 層 2 0 3 は、発光層 2 1 3 を有する。 [0158] 図2(A)に示す発光素子は、発光層213に、第1の有機化合物221、第2の有機化 合物222、及び燐光性化合物223を含む。第1の有機化合物221は実施の形態1で 示した一般式(G0)で表される化合物であり、第1の有機化合物221の分子量は50 0以上2000以下であり、第2の有機化合物222は電子輸送性を有する化合物である **[**0159**]** 燐光性化合物223は、発光層213におけるゲスト材料である。本実施の形態では、第 1の有機化合物221及び第2の有機化合物222のうち、発光層213に含まれる割合 が多い方を、発光層213におけるホスト材料とする。 [0160] なお、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222のそれぞれの三重項励起エネ ルギーの準位(T,準位)は、燐光性化合物223のT,準位よりも高いことが好ましい 。 第 1 の 有 機 化 合 物 2 2 1 ( 又 は 第 2 の 有 機 化 合 物 2 2 2 ) の T <sub>1</sub> 準 位 が 燐 光 性 化 合 物 2 23のT 1 準位よりも低いと、発光に寄与する燐光性化合物 223の三重項励起エネルギ ーを第1の有機化合物221(又は第2の有機化合物222)が消光(クエンチ)してし まい、発光効率の低下を招くためである。 [0161]ホスト材料からゲスト材料へのエネルギー移動効率を高めるため、分子間の移動機構とし て知られているフェルスター機構(双極子 - 双極子相互作用)及びデクスター機構(電子 交換相互作用)を考慮すると、ホスト分子の発光スペクトル(一重項励起状態からのエネ ルギー移動を論じる場合は蛍光スペクトル、三重項励起状態からのエネルギー移動を論じ る場合は燐光スペクトル)とゲスト分子の吸収スペクトル(より詳細には、最も長波長(

(38)

[0162]

30 しかしながら、ゲスト材料として燐光性化合物を用いた場合、ホスト材料の蛍光スペクト ルを、ゲスト材料の最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯における吸収スペクトルと重 ねることは困難である。なぜならば、そのようにしてしまうと、ホスト材料の燐光スペク トルは蛍光スペクトルよりも長波長(低エネルギー)側に位置するため、ホスト材料のT 1 準位が 燐光性化合物の T 1 準位を下回ってしまい、上述したクエンチの問題が生じてし まうからである。一方、クエンチの問題を回避するため、ホスト材料のT1準位がゲスト 材料として用いた燐光性化合物のTィ準位を上回るように設計すると、今度はホスト材料 の蛍光スペクトルが短波長(高エネルギー)側にシフトするため、その蛍光スペクトルは ゲスト材料の最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯における吸収スペクトルと重ならな くなる。したがって、ホスト材料の蛍光スペクトルをゲスト材料の最も長波長(低エネル ギー)側の吸収帯における吸収スペクトルと重ね、ホスト材料の一重項励起状態からのエ ネルギー移動を最大限に高めることは、通常困難である。

低エネルギー)側の吸収帯におけるスペクトル)との重なりが大きくなることが好ましい

そこで、本実施の形態では、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222は励起 錯体を形成する組み合わせとする。

[0164]

励起錯体について、図2(B)(C)を用いて説明する。

【0165】

図2(B)は、励起錯体の概念を示す模式図であり、第1の有機化合物221(又は第2 の 有 機 化 合 物 2 2 2 ) の 蛍 光 ス ペ ク ト ル 、 第 1 の 有 機 化 合 物 2 2 1 ( 又 は 第 2 の 有 機 化 合 物 2 2 2 )の 燐 光 ス ペ ク ト ル 、 燐 光 性 化 合 物 2 2 3 の 吸 収 ス ペ ク ト ル 、 及 び 励 起 錯 体 の 発 10

光スペクトルを表す。

【0166】

例えば、発光層213において、第1の有機化合物221の蛍光スペクトル及び第2の有機化合物222の蛍光スペクトルは、より長波長側に位置する励起錯体の発光スペクトルに変換される。そして、励起錯体の発光スペクトルと燐光性化合物223(ゲスト材料)の吸収スペクトルとの重なりが大きくなるように、第1の有機化合物221と第2の有機化合物222を選択すれば、一重項励起状態からのエネルギー移動を最大限に高めることができる(図2(B))。

(39)

[0167]

なお、三重項励起状態に関しても、ホスト材料ではなく励起錯体からのエネルギー移動が 10 生じると考えられる。

【0168】

したがって、形成された励起錯体の発光波長は、第1の有機化合物221と、第2の有機 化合物222のそれぞれの発光波長(蛍光波長)に比べて、長波長側に存在することから 、第1の有機化合物221の蛍光スペクトルや第2の有機化合物222の蛍光スペクトル を、より長波長側に位置する発光スペクトルとすることができる。

【0169】

さらに、励起錯体は一重項励起エネルギーと三重項励起エネルギーの差が極めて小さいと 考えられる。換言すれば、励起錯体の一重項状態からの発光スペクトルと三重項状態から の発光スペクトルは、極めて近接することになる。したがって、上述したように励起錯体 の発光スペクトル(一般には、励起錯体の一重項状態からの発光スペクトル)を、燐光性 化合物223(ゲスト材料)の最も長波長側に位置する吸収帯に重ねるよう設計した場合 、励起錯体の三重項状態からの発光スペクトル(常温では観測されず、低温でも観測され ない場合が多い)も、燐光性化合物223(ゲスト材料)の最も長波長側に位置する吸収 帯に重なることになる。つまり、一重項励起状態からのエネルギー移動だけでなく、三重 項励起状態からのエネルギー移動の効率も高まり、結果的に、一重項・三重項の双方を効 率よく発光させることができる。

このように、本発明の一態様の発光素子は、発光層213において形成された励起錯体の 発光スペクトルと、燐光性化合物223(ゲスト材料)の吸収スペクトルとの重なりを利 用して、エネルギー移動をするために、エネルギー移動効率が高い。

【0171】

また、励起錯体は励起状態でのみ存在するため、エネルギーを吸収できる基底状態が存在 しない。したがって、燐光性化合物223(ゲスト材料)の一重項励起状態及び三重項励 起状態から励起錯体へのエネルギー移動により燐光性化合物223(ゲスト材料)が発光 する前に失活する(すなわち発光効率を損なう)という現象は、原理的に生じないと考え られる。

**[**0172**]** 

なお、上述した励起錯体は、励起状態における異種分子間の相互作用によって形成される。また、励起錯体は、比較的低いLUMO準位をもつ材料と、高いHOMO(Highest Occupied Molecular Orbital、最高被占分子軌道)準 位をもつ材料との間で形成しやすいことが一般に知られている。

【0173】

ここで、第1の有機化合物221、第2の有機化合物222、及び励起錯体のエネルギー 準位の概念について、図2(C)を用いて説明を行う。なお、図2(C)は、第1の有機 化合物221、第2の有機化合物222、及び励起錯体のエネルギー準位を模式的に示し た図である。

【0174】

第 1 の有機化合物 2 2 1 と、第 2 の有機化合物 2 2 2 の H O M O 準位及び L U M O 準位は、それぞれ異なる。具体的には、第 2 の有機化合物 2 2 2 の H O M O 準位 < 第 1 の有機化

20

20

30

40

合物221のHOMO準位<第2の有機化合物222のLUMO準位<第1の有機化合物 221のLUMO準位という順でエネルギー準位が異なる。そして、この2つの有機化合 物により励起錯体が形成された場合、励起錯体のLUMO準位は、第2の有機化合物22 2に由来し、HOMO準位は、第1の有機化合物221に由来する(図2(C)参照)。 【0175】

また、励起錯体の発光波長は、 H O M O 準位と L U M O 準位間のエネルギー差に依存する。大まかな傾向として、エネルギー差が大きいと発光波長は短くなり、エネルギー差が小 さいと発光波長は長くなる。

【0176】

したがって、励起錯体のエネルギー差は、第1の有機化合物221のエネルギー差、及び 10 第2の有機化合物222のエネルギー差よりも小さくなる。つまり、第1の有機化合物2 21と第2の有機化合物222のそれぞれの発光波長に比べて、励起錯体の発光波長は長 波長となる。

**[**0177**]** 

また、本発明の一態様における励起錯体の形成過程には、以下の 2 つの過程が考えられる 。

【0178】

1 つ目の励起錯体の形成過程は、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222が キャリアを持った状態(カチオン又はアニオン)から、励起錯体を形成する形成過程であ る。

【0179】

ー 般的には、電子及び正孔がホスト材料中で再結合した場合、励起状態のホスト材料から ゲスト材料に励起エネルギーが移動し、ゲスト材料が励起状態に至り、発光するが、ホス ト材料からゲスト材料に励起エネルギーが移動する前に、ホスト材料自体が発光する、又 は励起エネルギーが熱エネルギーとなることで、励起エネルギーの一部を失活してしまう

。 【0180】

しかし、本発明の一態様においては、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物22 2がキャリアを持った状態(カチオン又はアニオン)から励起錯体を形成するため、第1 の有機化合物221及び第2の有機化合物222の一重項励起子の形成を抑制することが できる。つまり、一重項励起子を形成することなく、直接励起錯体を形成する過程が存在 しうる。これにより、上記一重項励起エネルギーの失活も抑制することができる。したが って、寿命が長い発光素子を実現することができる。

**[**0 1 8 1 **]** 

例えば、第1の有機化合物221が、正孔輸送性を有する材料の中でも正孔(キャリア) を捕獲しやすい性質を有する(HOMO準位の高い)正孔トラップ性の化合物であり、第 2の有機化合物222が、電子輸送性を有する材料の中でも電子(キャリア)を捕獲しや すい性質を有する(LUMO準位の低い)電子トラップ性の化合物である場合には、第1 の有機化合物221のカチオンと第2の有機化合物222のアニオンから、直接励起錯体 が形成されることになる。このような過程で形成される励起錯体のことを特にエレクトロ プレックス(electroplex)と呼ぶこととする。

【0182】

このようにして第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222の一重項励起状態の 発生を抑制し、エレクトロプレックスから燐光性化合物223(ゲスト材料)にエネルギ ー移動を行うことにより、発光効率が高い発光素子が得られる。なお、この場合、第1の 有機化合物221及び第2の有機化合物222の三重項励起状態の発生も同様に抑制され 、直接励起錯体が形成されるため、励起錯体から燐光性化合物223(ゲスト材料)にエ ネルギー移動すると考えられる。

【0183】

2 つ目の励起錯体の形成過程は、第1の有機化合物221又は第2の有機化合物222の <sup>50</sup>

(40)

一方が一重項励起子を形成した後、基底状態の他方と相互作用して励起錯体を形成する素 過程である。エレクトロプレックスとは異なり、この場合は一旦、第1の有機化合物22 1又は第2の有機化合物222の一重項励起状態が生成してしまうが、これは速やかに励 起錯体に変換されるため、やはり一重項励起エネルギーの失活や、一重項励起状態からの 反応等を抑制することができる。これにより、第1の有機化合物221又は第2の有機化 合物222が励起エネルギーを失活することを抑制することができ、寿命が長い発光素子 を実現できる。なお、この場合、第1の有機化合物221又は第2の有機化合物222の 三重項励起状態も同様に、速やかに励起錯体に変換され、励起錯体から燐光性化合物22 3(ゲスト材料)にエネルギー移動すると考えられる。

[0184]

なお、第1の有機化合物221が正孔トラップ性の化合物であり、第2の有機化合物22 2が電子トラップ性の化合物であり、これら化合物のHOMO準位の差、及びLUMO準 位の差が大きい場合(具体的には差が0.3 eV以上)、正孔は選択的に第1の有機化合 物221に入り、電子は選択的に第2の有機化合物222に入る。この場合、一重項励起 子を経て励起錯体が形成される過程よりも、エレクトロプレックスが形成される過程の方 が優先されると考えられる。

**[**0 1 8 5 **]** 

ー般的には、ホスト材料の一重項励起状態あるいは三重項励起状態から、燐光性化合物へのエネルギー移動が考慮されている。一方、本発明の一態様では、ホスト材料と他の材料との励起錯体をまず形成させ、その励起錯体からのエネルギー移動を用いている点で従来と大きく異なる。そして、この相違点により、従来にない高い発光効率が得られているのである。

【0186】

なお、一般に、励起錯体を発光素子の発光層に用いると、発光色を制御できるなどの利用 価値はあるものの、発光効率は大きく低下するのが常である。したがって、励起錯体を用 いた発光素子は、高効率な発光素子を得るには適さないと従来は考えられてきた。しかし ながら、本発明の一態様で示すように、励起錯体をエネルギー移動の媒体に用いることで 、逆に極限まで発光効率を高めることができる。これは、従来の固定概念とは相反する技 術思想である。

【0187】

なお、励起錯体の発光スペクトルと燐光性化合物223(ゲスト材料)の吸収スペクトル を十分に重ねるためには、発光スペクトルのピークのエネルギー値と、吸収スペクトルの 最も低エネルギー側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.3eV以内であること が好ましい。より好ましくは0.2eV以内であり、最も好ましいのは0.1eV以内で ある。

また、本発明の一態様の発光素子において、励起錯体の励起エネルギーは燐光性化合物2 23(ゲスト材料)に十分にエネルギー移動し、励起錯体からの発光は実質的に観察され ないことが好ましい。したがって、励起錯体を介して燐光性化合物223(ゲスト材料) にエネルギーを移動して、燐光性化合物223が、燐光を発することが好ましい。 【0189】

また、本発明の一態様の発光素子において、ホスト材料に燐光性化合物を用いると、該ホ スト材料自体が発光しやすくなり、ゲスト材料にエネルギー移動されにくくなる。この場 合、該ホスト材料に用いた燐光性化合物が効率よく発光すればよいが、ホスト材料は濃度 消光の問題が発生するため、高い発光効率を達成するのは困難である。したがって、第1 の有機化合物221及び第2の有機化合物222の少なくとも一方が蛍光性化合物(すな わち、一重項励起状態から発光や熱失活が起こりやすい化合物)である場合が有効となる 。したがって、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222の少なくとも一方が 蛍光性化合物であることが好ましい。 【0190】

30

50

40

10

以上のように、本実施の形態で示した発光素子は、励起錯体の発光スペクトルと燐光性化 合物(ゲスト材料)の吸収スペクトルとの重なりを利用したエネルギー移動により、エネ ルギー移動効率を高めることができるため、発光効率の高い発光素子を実現することがで きる。

**[**0191**]** 

なお、本実施の形態に示す構成は、他の実施の形態に示す構成と適宜組み合わせて用いる ことができる。

【0192】

(実施の形態3)

本実施の形態では、本発明の一態様の発光装置について図 3 を用いて説明する。図 3 (A <sup>10</sup>)は、本発明の一態様の発光装置を示す平面図であり、図 3 (B)は、図 3 (A)を一点 鎖線 A - B で切断した断面図である。

【0193】

本実施の形態の発光装置は、支持基板401、封止基板405及び封止材407に囲まれ た空間415内に、発光素子403(第1の電極421、EL層423及び第2の電極4 25)を備える。発光素子403は、ボトムエミッション構造であり、具体的には、支持 基板401上に可視光を透過する第1の電極421を有し、第1の電極421上にEL層 423を有し、EL層423上に可視光を反射する第2の電極425を有する。

【0194】

本実施の形態の発光素子403には、本発明の一態様の発光素子が適用されている。本発 20 明の一態様の発光素子は、寿命が長いため、信頼性の高い発光装置を実現できる。また、 本発明の一態様の発光素子は、高輝度領域で高い発光効率を示すため、発光効率の高い発 光装置を実現できる。

【0195】

第1の端子409aは、補助配線417及び第1の電極421と電気的に接続する。第1 の電極421上には、補助配線417と重なる領域に、絶縁層419が設けられている。 第1の端子409aと第2の電極425は、絶縁層419によって電気的に絶縁されてい る。第2の端子409bは、第2の電極425と電気的に接続する。なお、本実施の形態 では、補助配線417上に第1の電極421が形成されている構成を示すが、第1の電極 421上に補助配線417を形成しても良い。

【0196】

また、 有機 EL素子は、 屈折率が大気より高い領域で発光するため、 光を大気中に取り出 すときに有機 EL素子内、 又は有機 EL素子と大気との境界面で全反射が生じる条件があ り、 有機 EL素子の光取り出し効率は100%より小さいという問題がある。

【0197】

したがって、例えば、支持基板401と大気との界面に光取り出し構造411aを有する ことが好ましい。支持基板401の屈折率は大気の屈折率よりも大きい。よって、大気と 支持基板401の界面に光取り出し構造411aを設けることで、全反射の影響で大気に 取り出せない光を低減し、発光装置の光の取り出し効率を向上させることができる。

【0198】

また、 発 光 素 子 4 0 3 と 支 持 基 板 4 0 1 と の 界 面 に 光 取 り 出 し 構 造 4 1 1 b を 有 す る こ と が 好 ま し い 。

【0199】

しかし、第1の電極421が凹凸を有すると、第1の電極421上に形成されるEL層4 23においてリーク電流が生じる恐れがある。したがって、本実施の形態では、EL層4 23の屈折率以上の屈折率を有する平坦化層413を、光取り出し構造411bと接して 設ける。これによって、第1の電極421を平坦な膜とすることができ、EL層423に おける第1の電極421の凹凸に起因するリーク電流の発生を抑制することができる。ま た、平坦化層413と支持基板401との界面に、光取り出し構造411bを有するため 、全反射の影響で大気に取り出せない光を低減し、発光装置の光の取り出し効率を向上さ

せることができる。

【 0 2 0 0 】

なお、図3(B)において、支持基板401、光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bを異なる要素として示したが、本発明はこれに限られない。これらのうち二つ 又は全てが一体に形成されていても良い。また、光取り出し構造411bを設けることで 第1の電極421に凹凸が生じない(例えば、光取り出し構造411bが凹凸を有してい ない等)場合等は、平坦化層413を設けなくても良い。

 $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 0 & 1 \end{bmatrix}$ 

なお、図3(A)に示す発光装置の形状は八角形であるが、本発明はこれに限られない。 発光装置は、その他の多角形や、曲線部を有する形状としても良い。特に、発光装置の形 状としては、三角形、四角形、正六角形などが好ましい。なぜなら、限られた面積に複数 の発光装置を隙間無く設けることができるためである。また、限られた基板面積を有効に 利用して発光装置を形成できるためである。また、発光装置が備える発光素子は一つに限 られず、複数の発光素子を有していても良い。

[0202]

光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bが有する凹凸の形状について、規則 性の有無は問わない。凹凸の形状に周期性があると、凹凸の大きさによっては、凹凸が回 折格子のような働きをすることで、干渉効果が強くなり、特定の波長の光が大気に取り出 されやすくなることがある。したがって、凹凸の形状は周期性をもたないことが好ましい

[0203]

凹凸の底面形状は、特に限定されず、例えば、三角形、四角形等の多角形や、円形等とす ることができる。凹凸の底面形状が規則性を有する場合は、隣り合う部分において隙間が 生じないように設けられていることが好ましい。例えば、好ましい底面形状として、正六 角形が挙げられる。

[0204]

凹凸の形状は、特に限定されず、例えば、半球状や、円錐、角錐(三角錐、四角錐等)、 傘状などの頂点を有する形状とすることができる。

【 0 2 0 5 】

凹凸の大きさ、高さは、特に、1µm以上であると、光の干渉による影響を抑制すること <sup>30</sup>ができるため、好ましい。

【 0 2 0 6 】

光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bは、支持基板401に直接作製する ことができる。その方法としては、例えば、エッチング法、砥粒加工法(サンドブラスト 法)、マイクロブラスト加工法、フロスト加工法、液滴吐出法、印刷法(スクリーン印刷 やオフセット印刷などパターンが形成される方法)、スピンコート法等の塗布法、ディッ ピング法、ディスペンサ法、インプリント法、ナノインプリント法等を適宜用いることが できる。

[0207]

光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bの材料としては、例えば、樹脂を用 40 いることができる。また、光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bとして、 半球レンズ、マイクロレンズアレイや、凹凸構造が施されたフィルム、光拡散フィルム等 を用いることもできる。例えば、支持基板401上に上記レンズやフィルムを、支持基板 401又は該レンズもしくはフィルムと同程度の屈折率を有する接着剤等を用いて接着す ることで、光取り出し構造411a及び光取り出し構造411bを形成することができる

【0208】

平坦化層413は、光取り出し構造411bと接する面よりも、第1の電極421と接す る面のほうが平坦である。したがって、第1の電極421を平坦な膜とすることができる 。その結果、第1の電極421の凹凸に起因するEL層423のリーク電流を抑制するこ

20

10

とができる。平坦化層413の材料としては、高屈折率のガラス、樹脂等を用いることが できる。平坦化層413は、透光性を有する。 [0209]本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることができる。 [0210](実施の形態4) 本実施の形態では、本発明の一態様の発光装置について図4を用いて説明する。図4(A )は、本発明の一態様の発光装置を示す平面図であり、図4(B)は、図4(A)を一点 鎖線 C - D で 切 断 し た 断 面 図 で あ る 。 10 本 実 施 の 形 態 に 係 る ア ク テ ィ ブ マ ト リ ク ス 型 の 発 光 装 置 は 、 支 持 基 板 5 0 1 上 に 、 発 光 部 5 5 1 、 駆 動 回 路 部 5 5 2 (ゲート 側 駆 動 回 路 部 ) 、 駆 動 回 路 部 5 5 3 (ソース 側 駆 動 回 路部)及び封止材 5 0 7 を有する。発光部 5 5 1 及び駆動回路部 5 5 2 、 5 5 3 は、支持 基板501、封止基板505及び封止材507で形成された空間515に封止されている  $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 1 & 2 \end{bmatrix}$ 図4(B)に示す発光部551は、スイッチング用のトランジスタ541aと、電流制御 用のトランジスタ541bと、トランジスタ541bの配線(ソース電極又はドレイン電 極)に電気的に接続された第2の電極525とを含む複数の発光ユニットにより形成され ている。 発光素子503は、トップエミッション構造であり、可視光を透過する第1の電極521 と、EL層523と、可視光を反射する第2の電極525とで構成されている。また、第 2の電極525の端部を覆って隔壁519が形成されている。 本実施の形態の発光素子503には、本発明の一態様の発光素子が適用されている。本発 明の一態様の発光素子は、寿命が長いため、信頼性の高い発光装置を実現できる。また、 本発明の一態様の発光素子は、高輝度領域で高い発光効率を示すため、発光効率の高い発 光装置を実現できる。 30  $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 1 & 5 \end{bmatrix}$ 支 持 基 板 5 0 1 上 に は 、 駆 動 回 路 部 5 5 2 、 5 5 3 に 外 部 か ら の 信 号 ( ビ デ オ 信 号 、 ク ロ ック信号、スタート信号、又はリセット信号等)や電位を伝達する外部入力端子を接続す るための引き出し配線517が設けられる。ここでは、外部入力端子としてFPC509 (Flexible Printed Circuit)を設ける例を示している。なお FPC509にはプリント配線基板(PWB)が取り付けられていてもよい。本明細書 における発光装置は、発光装置本体だけでなく、発光装置本体にFPC又はPWBが取り 付けられた状態のものも範疇に含むものとする。 [0216]駆動 回 路 部 5 5 2 、 5 5 3 は 、 ト ラ ン ジ ス タ を 複 数 有 す る 。 図 4 ( B ) で は 、 駆 動 回 路 部 40 5 5 2 が、 n チャネル型のトランジスタ 5 4 2 及び p チャネル型のトランジスタ 5 4 3 を 組み合わせたCMOS回路を有する例を示している。駆動回路部の回路は、種々のCMO S回路、PMOS回路又はNMOS回路で形成することができる。また、本実施の形態で は、 発 光 部 が 形 成 さ れ た 基 板 上 に 駆 動 回 路 が 形 成 さ れ た ド ラ イ バ ー 一 体 型 を 示 す が 、 本 発 明はこの構成に限定されるものではなく、発光部が形成された基板とは別の基板に駆動回 路を形成することもできる。 [0217] 工程数の増加を防ぐため、引き出し配線517は、発光部や駆動回路部に用いる電極や配 線と同一の材料、同一の工程で作製することが好ましい。

(44)

本実施の形態では、引き出し配線517を、発光部551及び駆動回路部552に含まれ 50

るトランジスタのソース電極及びドレイン電極と同一の材料、同一の工程で作製した例を 示す。 【0219】

図4(B)において、封止材507は、引き出し配線517上の第1の絶縁層511と接 している。封止材507は金属との密着性が低い場合がある。したがって、封止材507 は、引き出し配線517上に設けられた無機絶縁膜と接することが好ましい。このような 構成とすることで、封止性及び密着性が高く、信頼性の高い発光装置を実現することがで きる。無機絶縁膜としては、金属や半導体の酸化物膜、金属や半導体の窒化物膜、金属や 半導体の酸窒化物膜が挙げられ、具体的には、酸化シリコン膜、窒化シリコン膜、酸化窒 化シリコン膜、窒化酸化シリコン膜、酸化アルミニウム膜、酸化チタン膜等が挙げられる

[0220]

また、第1の絶縁層511は、トランジスタを構成する半導体への不純物の拡散を抑制す る効果を奏する。また、第2の絶縁層513は、トランジスタ起因の表面凹凸を低減する ために平坦化機能を有する絶縁膜を選択することが好適である。

本発明の一態様の発光装置に用いるトランジスタの構造は特に限定されない。トップゲー ト型のトランジスタを用いても良いし、逆スタガ型などのボトムゲート型のトランジスタ を用いても良い。また、チャネルエッチ型やチャネル保護型としても良い。また、トラン ジスタに用いる材料についても特に限定されない。

半導体層は、シリコンや酸化物半導体を用いて形成することができる。シリコンとしては、単結晶シリコンや多結晶シリコンなどがあり、酸化物半導体としては、In-Ga-Zn系金属酸化物などを、適宜用いることができる。半導体層として、In-Ga-Zn系 金属酸化物である酸化物半導体を用い、オフ電流の低いトランジスタとすることで、発光 素子のオフ時のリーク電流が抑制できるため、好ましい。

封止基板 5 0 5 には、発光素子 5 0 3 (の発光領域)と重なる位置に、着色層であるカラ ーフィルタ 5 3 3 が設けられている。カラーフィルタ 5 3 3 は、発光素子 5 0 3 からの発 光色を調色する目的で設けられる。例えば、白色発光の発光素子を用いてフルカラーの表 示装置とする場合には、異なる色のカラーフィルタを設けた複数の発光ユニットを用いる 。その場合、赤色 (R)、緑色 (G)、青色 (B)の3 色を用いても良いし、これに黄色 (Y)を加えた 4 色とすることもできる。

 $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 2 & 4 \end{bmatrix}$ 

また、隣接するカラーフィルタ533の間(隔壁519と重なる位置)にはブラックマト リクス531が設けられている。ブラックマトリクス531は隣接する発光ユニットの発 光素子503からの光を遮光し、隣接する発光ユニット間における混色を抑制する。ここ で、カラーフィルタ533の端部を、ブラックマトリクス531と重なるように設けるこ とにより、光漏れを抑制することができる。ブラックマトリクス531は、発光素子50 3からの発光を遮光する材料を用いることができ、金属や、樹脂などの材料を用いて形成 することができる。なお、ブラックマトリクス531は、駆動回路部552などの発光部 551以外の領域に設けても良い。

また、カラーフィルタ533及びブラックマトリクス531を覆うオーバーコート層53 5が形成されている。オーバーコート層535は、発光素子503からの発光を透過する 材料から構成され、例えば無機絶縁膜や有機絶縁膜を用いることができる。なお、オーバ ーコート層535は不要ならば設けなくても良い。

【0226】

なお、本実施の形態では、カラーフィルタ方式を用いた発光装置を例に説明したが、本発 明の構成はこれに限られない。例えば、塗り分け方式や、色変換方式を適用しても良い。 10

20

40

【0227】

本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることができる。

【 0 2 2 8 】

(実施の形態5)

本実施の形態では、本発明の一態様を適用した発光装置を用いた電子機器及び照明装置の 一例について、図5及び図6を用いて説明する。

(46)

【 0 2 2 9 】

本実施の形態の電子機器は、表示部に本発明の一態様の発光装置を備える。また、本実施の形態の照明装置は、発光部(照明部)に本発明の一態様の発光装置を備える。本発明の 一態様の発光装置を適用することで、信頼性の高い電子機器及び照明装置をそれぞれ提供 できる。また、本発明の一態様の発光装置を適用することで、発光効率の高い電子機器及 び照明装置をそれぞれ提供できる。

【0230】

発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置(テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう)、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機(携帯電話、携帯電話装置ともいう)、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器及び照明装置の具体例を図5及び図6に示す。

【0231】

図 5 (A)は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置 7 1 0 0 は、筐 <sup>20</sup> 体 7 1 0 1 に表示部 7 1 0 2 が組み込まれている。表示部 7 1 0 2 では、映像を表示する ことが可能である。本発明の一態様を適用した発光装置は、表示部 7 1 0 2 に用いること ができる。また、ここでは、スタンド 7 1 0 3 により筐体 7 1 0 1 を支持した構成を示し ている。

【0232】

テレビジョン装置7100の操作は、筐体7101が備える操作スイッチや、別体のリモコン操作機7111により行うことができる。リモコン操作機7111が備える操作キーにより、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部7102に表示される映像を操作することができる。また、リモコン操作機7111に、当該リモコン操作機7111 から出力する情報を表示する表示部を設ける構成としてもよい。

【0233】

なお、テレビジョン装置7100は、受信機やモデムなどを備えた構成とする。受信機に より一般のテレビ放送の受信を行うことができ、さらにモデムを介して有線又は無線によ る通信ネットワークに接続することにより、一方向(送信者から受信者)又は双方向(送 信者と受信者間、あるいは受信者間同士など)の情報通信を行うことも可能である。 【0234】

図5(B)は、コンピュータの一例を示している。コンピュータ7200は、本体720 1、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポ インティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、本発明の一態様の発光 装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0235】

図5(C)は、携帯型ゲーム機の一例を示している。携帯型ゲーム機7300は、筐体7 301 a及び筐体7301 bの2つの筐体で構成されており、連結部7302により、開 閉可能に連結されている。筐体7301 aには表示部7303 aが組み込まれ、筐体73 01 bには表示部7303 bが組み込まれている。また、図5(C)に示す携帯型ゲーム 機は、スピーカ部7304、記録媒体挿入部7305、操作キー7306、接続端子73 07、センサ7308(力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液 、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、 湿度、傾度、振動、におい又は赤外線を測定する機能を含むもの)、LEDランプ、マイ クロフォン等を備えている。もちろん、携帯型ゲーム機の構成は上述のものに限定されず 10

。図5(C)に示す携帯型ゲーム機は、記録媒体に記録されているプログラム又はデータ を読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型ゲーム機と無線通信を行って情報を共 有する機能を有する。なお、図5(C)に示す携帯型ゲーム機が有する機能はこれに限定 されず、様々な機能を有することができる。 図5(D)は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に 組 み 込 ま れ た 表 示 部 7 4 0 2 の 他 、 操 作 ボ タ ン 7 4 0 3 、 外 部 接 続 ポ ー ト 7 4 0 4 、 ス ピ ーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、本発明 の一態様の発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。 図 5 ( D )に示す携帯電話機 7 4 0 0 は、表示部 7 4 0 2 を指などで触れることで、情報 を入力することができる。また、電話を掛ける、或いはメールを作成するなどの操作は、 表示部7402を指などで触れることにより行うことができる。 表示部7402の画面は主として3つのモードがある。第1は、画像の表示を主とする表 示モードであり、第2は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第3は表示 モードと入力モードの2つのモードが混合した表示+入力モードである。 【0239】 例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部7402を文字の入力を 主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。 [0240] また、携帯電話機7400内部に、ジャイロセンサ、加速度センサ等の傾きを検出するセ ンサを有する検出装置を設けることで、携帯電話機7400の向き(縦か横か)を判断し て、表示部7402の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。  $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 4 & 1 \end{bmatrix}$ また、画面モードの切り替えは、表示部7402を触れること、又は筐体7401の操作 ボタン7403の操作により行われる。また、表示部7402に表示される画像の種類に よって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画の データであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。 また、入力モードにおいて、表示部7402の光センサで検出される信号を検知し、表示 部7402のタッチ操作による入力が一定期間ない場合には、画面のモードを入力モード から表示モードに切り替えるように制御してもよい。 表示部7402は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部74 02に掌や指で触れ、掌紋、指紋等を撮像することで、本人認証を行うことができる。ま た 、 表 示 部 に 近 赤 外 光 を 発 光 す る バ ッ ク ラ イ ト 又 は 近 赤 外 光 を 発 光 す る セ ン シ ン グ 用 光 源 を用いれば、指静脈、掌静脈などを撮像することもできる。 [0244] 図5(E)は、2つ折り可能なタブレット型端末(開いた状態)の一例を示している。タ ブレット型 端 末 7 5 0 0 は 、 筐 体 7 5 0 1 a 、 筐 体 7 5 0 1 b 、 表 示 部 7 5 0 2 a 、 表 示 部 7 5 0 2 b を有する。 筐体 7 5 0 1 a と筐体 7 5 0 1 b は、 軸部 7 5 0 3により接続さ れており、該軸部7503を軸として開閉動作を行うことができる。また、筐体7501 aは、電源7504、操作キー7505、スピーカ7506等を備えている。なお、タブ レット型 端末 7 5 0 0 は、 本 発 明 の 一 態 様 の 発 光 装 置 を 表 示 部 7 5 0 2 a 、 表 示 部 7 5 0 2 bの両方、又は一方に用いることにより作製される。  $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 4 & 5 \end{bmatrix}$ 表示部7502aや表示部7502bは、少なくとも一部をタッチパネルの領域とするこ

(47)

、 少 な く と も 表 示 部 7 3 0 3 a 、 表 示 部 7 3 0 3 b の 両 方 、 又 は 一 方 に 本 発 明 の 一 態 様 の 発 光 装 置 を 用 い て い れ ば よ く 、 そ の 他 付 属 設 備 が 適 宜 設 け ら れ た 構 成 と す る こ と が で き る

10

20

30

40

10

とができ、表示された操作キーにふれることでデータ入力をすることができる。例えば、 表示部7502aの全面にキーボードボタンを表示させてタッチパネルとし、表示部75 02bを表示画面として用いることができる。

【0246】

図 6 (A) は卓上照明器具であり、照明部 7 6 0 1、傘 7 6 0 2、可変アーム 7 6 0 3、 支柱 7 6 0 4、台 7 6 0 5、電源 7 6 0 6を含む。なお、卓上照明器具は、本発明の一態 様の発光装置を照明部 7 6 0 1 に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井 固定型の照明器具又は壁掛け型の照明器具なども含まれる。

【0247】

- 図6(B)は、本発明の一態様の発光装置を、室内の照明器具7701に用いた例である。本発明の一態様の発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置に用いることができる。その他、ロール型の照明器具7702として用いることもできる。なお、図6(B)に示すように、室内の照明器具7701を備えた部屋で、図6(A)で説明した 卓上照明器具7703を併用してもよい。
- 【実施例1】

[0248]

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図7を用いて説明する。本実施例で用 いる材料の化学式を以下に示す。

【 0 2 4 9 】





**PCBBiF** 

[0250]

以下に、本実施例の発光素子1、比較発光素子2、及び比較発光素子3の作製方法を示す

**[**0251**]** 

(発光素子1)

まず、ガラス基板1100上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物(ITSO)をスパ ッタリング法にて成膜し、第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nm とし、電極面積は2mm×2mmとした。ここで、第1の電極1101は、発光素子の陽 極として機能する電極である。

次に、ガラス基板1100上に発光素子を形成するための前処理として、基板表面を水で 洗浄し、200 で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。 【0253】

その後、10<sup>-4</sup> Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着 装置内の加熱室において、170 で30分間の真空焼成を行った後、ガラス基板110 0を30分程度放冷した。

[0254]

次に、第1の電極1101が形成された面が下方となるように、第1の電極1101が形 成されたガラス基板1100を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、10 <sup>-4</sup> Pa程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により 、4,4',4',-(1,3,5-ベンゼントリイル)トリ(ジベンゾチオフェン)( 略称:DBT3P-II)と酸化モリブデン(VI)を共蒸着することで、正孔注入層1 111を形成した。その膜厚は、40nmとし、DBT3P-IIと酸化モリブデンの比 率は、重量比で4:2(=DBT3P-II:酸化モリブデン)となるように調節した。 なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法であ る。

[0255]

次に、正孔注入層1111上に、4-フェニル-4^-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称:BPAFLP)を20nmの膜厚となるように成膜し <sup>20</sup> 、正孔輸送層1112を形成した。

【 0 2 5 6 】

さらに、2 - [3'-(ジベンゾチオフェン - 4 - イル)ビフェニル - 3 - イル]ジベン ゾ[f、h]キノキサリン(略称:2mDBTBPDBq - II)、N - (1,1'-ビ フェニル - 4 - イル) - N - [4 - (9 - フェニル - 9H - カルバゾール - 3 - イル)フ ェニル] - 9,9 - ジメチル - 9H - フルオレン - 2 - アミン(略称:PCBBiF)、 及び(アセチルアセトナト)ビス(4,6 - ジフェニルピリミジナト)イリジウム(II I)(略称:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])を共蒸着し、正孔輸送層1112上 に発光層1113を形成した。ここで、2mDBTBPDBq - II、PCBBiF、及 び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2m DBTBPDBq - II:PCBBiF:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])となる ように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

[0257]

次に、発光層1113上に2mDBTBPDB q - IIを膜厚15nmとなるように成膜 し、さらに、バソフェナントロリン(略称:BPhen)を膜厚15nmとなるように成 膜することで、電子輸送層1114を形成した。

【0258】

その後、電子輸送層1114上に、フッ化リチウム(LiF)を1nmの膜厚で蒸着し、 電子注入層1115を形成した。

[0259]

40

30

10

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜 厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子1を作製した。

[0260]

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0261】

(比較発光素子2)

比較発光素子 2 の発光層 1 1 1 3 は、 2 m D B T B P D B q - I I 、 4 、 4 ' - ジ(1 -ナフチル) - 4 ' ' - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル)トリフェニルア ミン(略称: P C B N B B )、及び[I r (d p p m) <sub>2</sub> (a c a c )]を共蒸着するこ とで形成した。ここで、 2 m D B T B P D B q - I I 、 P C B N B B 及び[I r (d p p

(50)

m)<sub>2</sub>(a c a c )]の重量比は、0.8:0.2:0.05(= 2 m D B T B P D B q - I I : P C B N B B : [ I r (d p p m)<sub>2</sub>(a c a c )])となるように調節した。 また、発光層1113の膜厚は40 n m とした。発光層1113以外は発光素子1と同様 に作製した。

- 【 0 2 6 2 】
- (比較発光素子3)

比較発光素子3の発光層1113は、2mDBTBPDBq-II、N-[4-(9-フ ェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9-ジメチル-N-[4-( 1-ナフチル)フェニル]-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBNBF)、及 び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDB TBPDBq-II、PCBNBF及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は 、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBNBF:[Ir( dppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は4 0nmとした。発光層1113以外は発光素子1と同様に作製した。

【0263】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表1に示す。

【0264】

【表1】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発光層	電子輸送層	電子 注入層	第2の 電極
発素 1 比発素 比発素 比発素	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm 2mDBTBPDBq-II:PCBNBB :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm 2mDBTBPDBq-II:PCBNBF :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBT BPDBq-II 15nm 15nm	n LiF 1 1nm	Al 200nm

【0265】

発光素子1、比較発光素子2、及び比較発光素子3を、窒素雰囲気のグローブボックス内 において、各発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行った 後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温(25 に保 たれた雰囲気)で行った。

【0266】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図8に示す。図8において、横軸は輝度(c d / m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(c d / A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図9に示す。 図9において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(c d / m<sup>2</sup>)を表す。また、輝度 - 外部 量子効率特性を図10に示す。図10において、横軸は、輝度(c d / m<sup>2</sup>)を、縦軸は 、外部量子効率(%)を表す。また、各発光素子における輝度1000cd / m<sup>2</sup>付近の ときの電圧(V)、電流密度(m A / c m<sup>2</sup>)、CIE色度座標(x、y)、電流効率( c d / A)、パワー効率(1 m / W)、外部量子効率(%)を表2に示す。 【0267】 10



【表2】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部 量子効率(%)
発光素子1	3.0	1.7	0.55	0.45	1200	67	70	26
比較発光素子2	3.0	1.4	0.55	0.44	900	63	66	25
比較発光素子3	3.0	1.5	0.55	0.45	1000	66	69	25

[0268]

表 2 に示す通り、 1 2 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子 1 の C I E 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 5 , 0 . 4 5 ) であった。 9 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の比較発光素子 2 の C I E 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 5 , 0 . 4 4 ) であった。 1 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> の輝度の時の比較発光素子 3 の C I E 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 5 , 0 . 4 5 ) で あった。本実施例で示す発光素子は、 [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] に由来する橙 色発光が得られたことがわかった。

【 0 2 6 9 】

図 8 乃 至 図 1 0 、 及 び 表 2 か ら 、 発 光 素 子 1 、 比 較 発 光 素 子 2 、 及 び 比 較 発 光 素 子 3 は 、 い ず れ も 駆 動 電 圧 が 低 く 、 電 流 効 率 、 パ ワ ー 効 率 、 外 部 量 子 効 率 が そ れ ぞ れ 高 い 発 光 素 子 20 で あ る こ と が わ か っ た 。

【 0 2 7 0 】

特に、発光素子1は、比較発光素子2及び比較発光素子3に比べて、高輝度領域での電流 効率及び外部量子効率が、高いことがわかった(図8や図10の輝度が1000~100 00cd/m<sup>2</sup>の時の電流効率又は外部量子効率を参照)。発光素子1は、カルバゾール 骨格を含む置換基、フルオレニル基、及びビフェニル基を有するPCBBiFを発光層に 含む。比較発光素子2はカルバゾール骨格を含む置換基と、2つのナフチル基を有するP CBNBBを発光層に含む。比較発光素子3は、カルバゾール骨格を含む置換基、フルオ レニル基、及びナフチル基を有するPCBNBFを発光層に含む。すなわち、発光素子1 と、比較発光素子2又は比較発光素子3との大きな違いは、発光層に含まれる第3級アミ ンがナフチル基を含むか否かである。本発明の一態様である発光素子1で用いた第3級ア ミンは、ビフェニルアミン骨格及びフルオレニルアミン骨格を有するため、高い正孔輸送 性と高い電子ブロック性を有する上に、ナフタレン骨格を含むアミン等に比べて三重項励 起エネルギーが高いため、励起子ブロック性にも優れる。そのため、高輝度領域でも、電 子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができ、高い発光効率を示す発光素子を実現できる。

次に、発光素子1、比較発光素子2、及び比較発光素子3の信頼性試験を行った。信頼性 試験の結果を図11(A)(B)に示す。図11(A)(B)において、縦軸は初期輝度 を100%とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信 頼性試験は、室温で行い、初期輝度を5000cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件 で本実施例の発光素子を駆動した。図11(A)(B)から、発光素子1の460時間後 の輝度は初期輝度の95%を保っており、比較発光素子2の460時間後の輝度は初期輝 度の92%を保っており、比較発光素子3の370時間後の輝度は初期輝度の94%を保 っていた。この信頼性試験の結果から、発光素子1は、比較発光素子2及び比較発光素子 3に比べて長寿命であることが明らかとなった。

上述の通り、本発明の一態様である発光素子1は、高輝度領域でも、電子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができるため、発光物質が発光する遷移(輻射失活)以外の失活経路( 無輻射失活)が少ない。そのため、素子の輝度劣化を軽減することができる。また、その ような劣化の少ない発光素子が、再現性よく安定して得られやすい。 10

30

[0273]

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高輝度領域で高い発光効率を示す 発光素子を得られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで寿命の長い 発光素子を得られることがわかった。

【 実 施 例 2 】

【0274】

本 実 施 例 で は 、 本 発 明 の 一 態 様 の 発 光 素 子 に つ い て 図 7 を 用 い て 説 明 す る 。 本 実 施 例 で 用 い る 材 料 の 化 学 式 を 以 下 に 示 す 。 な お 、 既 に 示 し た 材 料 に つ い て は 省 略 す る 。

[ 0 2 7 5 ]

【化25】



[lr(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]

[0276]

以下に、本実施例の発光素子4及び比較発光素子5の作製方法を示す。

【 0 2 7 7 】

(発光素子4)

まず、発光素子1と同様に、ガラス基板1100上に第1の電極1101及び正孔注入層 1111を作製した。

【0278】

次に、正孔注入層1111上に、PCBBiFを20nmの膜厚となるように成膜し、正 孔輸送層1112を形成した。

【0279】

さらに、2mDBTBPDBq - II、PCBBiF、及び(アセチルアセトナト)ビス (6 - t e r t - ブチル - 4 - フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[ Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1 113を形成した。ここでは、2mDBTBPDBq - II、PCBBiF、及び[Ir (tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(= 2mDB TBPDBq - II:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となる ように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05( = 2mDBTBPDBq - II:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)] )となるように調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。

【0280】

次に、 発光層 1 1 1 3 上に 2 m D B T B P D B q - I I を膜厚 5 n m となるように成膜し、さらに、 B P h e n を膜厚 1 5 n m となるように成膜することで、 電子輸送層 1 1 1 4 を形成した。

 $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 8 & 1 \end{bmatrix}$ 

さらに、電子輸送層1114上に、LiFを1 n m の 膜厚で蒸着し、電子注入層1115 を形成した。

[0282]

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜 厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子4を作製した。 【0283】 30

10

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【0284】

(比較発光素子5)

比較発光素子 5 の正孔輸送層 1 1 1 2 は、 P C B N B B を膜厚 2 0 n m となるように成膜 することで形成した。また、発光層 1 1 1 3 は、 2 m D B T B P D B q - I I、 P C B N B B、及び [ I r ( t B u p p m ) 2 ( a c a c ) ] を共蒸着することで形成した。ここ で、 2 m D B T B P D B q - I I、 P C B N B B 及び [ I r ( t B u p p m ) 2 ( a c a c ) ] の重量比が、 0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B N B B : [ I r ( t B u p p m ) 2 ( a c a c ) ] ) となるように調整して成膜した厚さ 2 0 n m の層と、該重量比が、 0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B N B B : [ I r ( t B u p p m ) 2 ( a c a c ) ] ) となるように調節して成 膜した厚さ 2 0 n m の層とを積層した。正孔輸送層 1 1 1 2 及び発光層 1 1 1 3 以外は発 光素子 4 と同様に作製した。

【0285】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表3に示す。

【0286】

【表3】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発う	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極	
發来				2mDBTBPDBq-II:PCB	BiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]				
素子	PCBBiF		(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)					
4	ITSO	:MoOx		20nm	20nm	2mDBT	BPhen	LiF	AI
比較	110nm	(=4:2) 20nm		2mDBTBPDBq-II:PCBN	NBB:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]	5nm	15nm	1nm	200nm
発光     素子		201111	PCBNBB 20nm	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
5				20nm	20nm				

【 0 2 8 7 】

発光素子4及び比較発光素子5を、窒素雰囲気のグローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温(25 に保たれた雰囲気)で行った。

【0288】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図12に示す。図12において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図13に 示す。図13において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝 度 - パワー効率特性を図14に示す。図14において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、 縦軸は、パワー効率(1m/W)を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図15に示す 。図15において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は、外部量子効率(%)を表す 。また、発光素子4及び比較発光素子5における輝度900cd/m<sup>2</sup>のときの電圧(V )、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標(×、y)、電流効率(cd/A)、パ ワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表4に示す。 【0289】

10



【表4】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (Im/W)	外部 量子効率(%)
発光素子4	2.6	0.82	0.41	0.59	900	106	128	27
比較発光素子5	2.7	0.94	0.40	0.59	900	92	108	24

(55)

【0290】

表 4 に示す通り、 9 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子 4 の C I E 色度座標は(x , y ) = (0 . 4 1 , 0 . 5 9)であり、比較発光素子 5 の C I E 色度座標は(x , y) = ( 0 . 4 0 , 0 . 5 9)であった。発光素子 4 及び比較発光素子 5 は、 [ I r (t B u p p m)<sub>2</sub> (a c a c )]に由来する緑色発光が得られたことがわかった。

【0291】

図 1 2 乃至図 1 5、及び表 4 から、発光素子 4 及び比較発光素子 5 は、どちらも駆動電圧 が極めて低いことがわかった。さらに、発光素子 4 は、比較発光素子 5 に比べて、電流効 率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高いことがわかった(図 1 2、図 1 4、又は図 1 5 の輝度が 1 0 0 0 ~ 1 0 0 0 0 c d / m<sup>2</sup>の時の電流効率、パワー効率、又は外部量 子効率を参照)。

【0292】

発光素子4は、カルバゾール骨格を含む置換基、フルオレニル基、及びビフェニル基を有 するPCBBiFを発光層及び正孔輸送層に含む。比較発光素子5はカルバゾール骨格を 含む置換基と、2つのナフチル基を有するPCBNBBを発光層及び正孔輸送層に含む。 すなわち、発光素子4と、比較発光素子5との大きな違いは、発光層に含まれる第3級ア ミンがナフチル基を含むか否かである。本発明の一態様である発光素子4で用いた第3級 アミンは、ビフェニルアミン骨格及びフルオレニルアミン骨格を有するため、高い正孔輸 送性と高い電子ブロック性を有する上に、ナフタレン骨格を含むアミン等に比べて三重項 励起エネルギーが高いため、励起子ブロック性にも優れる。そのため、高輝度領域でも、 電子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができ、高い発光効率を示す発光素子を実現できる 。この違いは、本実施例に示すように、発光層に含まれる第3級アミンと同一の化合物を 正孔輸送層に用いたときに、より大きくなる。つまり、発光素子4や比較発光素子5のよ うに、発光層に含まれる第3級アミンと同一の化合物を正孔輸送層に用いることで、駆動 電圧はいずれの素子でも低減されるが、本発明の一態様を適用しなければ(上述の一般式 (G0)で示される第3級アミンを用いなければ)、比較発光素子5のように発光効率が 低下してしまうのである。

【0293】

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高輝度領域で高い発光効率を示す 発光素子を得られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで駆動電圧の 低い発光素子を得られることがわかった。特に、発光層に用いる第1の有機化合物(実施 の形態1で示した一般式(G0)で表される化合物)を正孔輸送層にも用いることで、発 光効率の高い発光素子を得られることがわかった。

【0294】

次に、発光素子4及び比較発光素子5の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図16 に示す。図16において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し 、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を5000 cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図16から 、発光素子4の160時間後の輝度は初期輝度の93%を保っており、比較発光素子5の 360時間後の輝度は初期輝度の89%を保っていた。 【実施例3】

【0295】

40

30

20

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図7を用いて説明する。本実施例で用いる材料の化学式を以下に示す。なお、既に示した材料については省略する。

【 0 2 9 6 】 【 化 2 6 】

PCBBiSF

[0297]

以下に、本実施例の発光素子6及び発光素子7の作製方法を示す。 [0298](発光素子6) まず、発光素子1と同様に、ガラス基板1100上に第1の電極1101及び正孔注入層 1111を作製した。 [0299] 次に、正孔注入層1111上に、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9^-スピロビ[9 H - フルオレン] - 2 - アミン(略称: P C B B i S F )を20 n mの膜厚となるように 成膜し、正孔輸送層1112を形成した。 さらに、2mDBTBPDBq-II、PCBBiSF、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(a c a c ) ])を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは 、 2 m D B T B P D B q - I I 、 P C B B i S F 、 及び [ I r ( d p p m ) 🤈 ( a c a c ) ] の重量比が、 0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i S F : [ I r ( d p p m ) , ( a c a c ) ] )となるように調整して成膜した厚さ20 n m の 層 と、 該 重 量 比 が 、 0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i S F : [ I r ( d p p m ) , ( a c a c ) ] )となるように調節して成膜した 厚さ20nmの層とを積層した。  $\begin{bmatrix} 0 & 3 & 0 & 1 \end{bmatrix}$ し、さらに、BPhenを膜厚20nmとなるように成膜することで、電子輸送層111 4を形成した。 [0302] さらに、電子輸送層1114上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115 を形成した。 最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200 nmの膜 厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子6を作製した。 【0304】

20

10

30

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【 0 3 0 5 】

(発光素子7)

発光素子 7 の正孔輸送層 1 1 1 2 は、 B P A F L P を膜厚 2 0 n m となるように成膜する ことで形成した。正孔輸送層 1 1 1 2 以外は発光素子 6 と同様に作製した。

【0306】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表5に示す。

【0307】

【表5】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発光層電子輔		送層	電子 注入層	第2の 電極	
発光 素子 6	ITSO	DBT3P-II :MoOx	PCBBiSF 20nm	2mDBTE :PCB [Ir(dppm	2mDBT BPhen		LiF	AI	
発光 素子	110nm	(=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	(=0.7:0.3:0.05) (=0.8:0.2:0.05		20nm	20nm	1nm	200nm
7				20nm	20nm				

[0308]

発光素子6及び発光素子7を、窒素雰囲気のグローブボックス内において、発光素子が大 気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行った後、これらの発光素子の動 作特性について測定を行った。なお、測定は室温(25 に保たれた雰囲気)で行った。 【0309】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図17に示す。図17において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図18に 示す。図18において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝 度 - パワー効率特性を図19に示す。図19において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、 縦軸は、パワー効率(1m/W)を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図20に示す 。図20において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は、外部量子効率(%)を表す 。また、発光素子6及び発光素子7における輝度1000cd/m<sup>2</sup>付近のときの電圧( V)、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標(×、y)、電流効率(cd/A)、 パワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表6に示す。 【0310】

【表6】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (Im/W)	外部 量子効率(%)
発光素子6	2.8	1.1	0.56	0.44	900	85	96	31
発光素子7	3.0	1.1	0.55	0.44	1000	87	92	31

【0311】

表 6 に示す通り、 9 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子 6 の C I E 色度座標は( x , y ) = ( 0 . 5 6 , 0 . 4 4 )であり、 1 0 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子 7 の C I E 色度座標は( x , y ) = ( 0 . 5 5 , 0 . 4 4 )であった。 発光素子 6 及び発光素子 7 は、 [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] に由来する橙色発光が得られたことがわかった 20

 $\begin{bmatrix} 0 & 3 & 1 & 2 \end{bmatrix}$ 図 1 7 乃 至 図 2 0 、 及 び 表 6 か ら 、 発 光 素 子 6 及 び 発 光 素 子 7 は 、 ど ち ら も 駆 動 電 圧 が 低 く、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い発光素子であることがわかった 。 本 発 明 の 一 態 様 で あ る 発 光 素 子 6 及 び 発 光 素 子 7 に お い て 発 光 層 に 用 い た 第 3 級 ア ミ ン は、ビフェニルアミン骨格及びスピロフルオレニルアミン骨格を有するため、高い正孔輸 送性と高い電子ブロック性を有する上に、励起子ブロック性にも優れる。そのため、高輝 度領域でも、電子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができ、高い発光効率を示す発光素子 を実現できる。さらに、本発明の一態様では、発光素子6のように、発光層に含まれる第 3級アミンと同一の化合物を正孔輸送層に用いることで、高い発光効率を保ちながら(発 10 光効率を低下させることなく)、駆動電圧を低減させることができる。 【実施例4】 本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図7を用いて説明する。なお、本実施 例で用いる材料は既に化学式を示した材料である。  $\begin{bmatrix} 0 & 3 & 1 & 4 \end{bmatrix}$ 以下に、本実施例の発光素子8及び比較発光素子9の作製方法を示す。 [0315] (発光素子8) まず、発光素子1と同様に、ガラス基板1100上に第1の電極1101、正孔注入層1 20 111、及び正孔輸送層1112を作製した。ただし、正孔注入層1111の膜厚は20 nmとした。  $\begin{bmatrix} 0 & 3 & 1 & 6 \end{bmatrix}$ 次に、2mDBTBPDBq-II、PCBBiF、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(aca c)]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは、2m DBTBPDBq-II、PCBBiF、及び[Ir(dppm), (acac)]の重 量比が、0.7:0.3:0.05(= 2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i F : [ Ir(dppm),(acac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と 、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDB - II:PCBBi F:[Ir(dppm)。(acac)])となるように調節して成膜した厚さ20nm 30 の層とを積層した。 [0317] 次に、発光層1113上に2mDBTBPDB - IIを膜厚20nmとなるように成膜 し、さらに、BPhenを膜厚20nmとなるように成膜することで、電子輸送層111 4を形成した。 [0318] その後、電子輸送層1114上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115 を形成した。 [0319] 最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜 40 厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子8を作製した。 [0320] なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。 (比較発光素子9) 比較 発 光 素 子 9 の 発 光 層 1 1 1 3 は 、 2 m D B T B P D B q ‐ I I 及 び [ I r ( d p p m ) , ( a c a c ) ]を共蒸着することで形成した。ここで、 2 m D B T B P D B q - I I 及び [ I r (dppm) <sub>2</sub> (acac) ] の重量比は、1:0.05(=2mDBTBP D B q - I I : [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] )となるように調節した。また、発

光層1113の膜厚は40nmとした。また、比較発光素子9の電子輸送層1114は、
2mDBTBPDBq-IIを膜厚10nmとなるように成膜し、さらに、BPhenを <sup>50</sup>

(58)

膜厚 1 5 n m となるように成膜した。発光層 1 1 1 3 及び電子輸送層 1 1 1 4 以外は発光 素子 8 と同様に作製した。

【 0 3 2 2 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表7に示す。

【0323】

【表7】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極	
発光 素子 8	ITSO	DBT3P-II :MoOx	BPAFLP	2mDBTBPDBq-II:PC (=0.7:0.3:0.05) 20nm	BBiF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	2mDBT BPDBq-II 20nm	BPhen 20nm	LiF	AI
比較 発光 素子9	110nm	(=4:2) 20nm	20nm	2mDBTBPDBq- (=1: 4	II:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] 0.05) 0nm	2mDBT BPDBq-II 10nm	BPhen 15nm	1nm	200nm

【0324】

発光素子 8 及び比較発光素子 9 を、窒素雰囲気のグローブボックス内において、各発光素 子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行った後、これらの発光素 子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温(25 に保たれた雰囲気)で行 った。

【0325】

本実施例の発光素子の電圧 - 電流特性を図27に示す。図27において、横軸は電圧(V )、縦軸は電流(mA)を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図28に示す。図28 において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は、外部量子効率(%)を表す。また、 本実施例の発光素子の発光スペクトルを図29に示す。また、各発光素子における輝度1 000cd/m<sup>2</sup>付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標 (x、y)、電流効率(cd/A)、パワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表 8に示す。

[ 0 3 2 6 ]

## 【表8】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (Im/W)	外部 量子効率(%)
発光素子8	2.8	1.1	0.56	0.44	960	85	95	31
比較発光素子9	3.3	2.1	0.56	0.44	1100	53	50	21

[0327]

表 8 に示す通り、 9 6 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子 8 の C I E 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 6 , 0 . 4 4 ) であった。 1 1 0 0 c d / m<sup>2</sup>の輝度の時の比較発光素子 9 の C I E 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 6 , 0 . 4 4 ) であった。本実施例で示す発光 素子は、 [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] に由来する橙色発光が得られたことがわか った。

[0328]

発光素子 8 は、 1 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> 付近における外部量子効率が 3 1 % (電流効率で 8 5 c d / A に相当する)と極めて高く、エキサイプレックスからのエネルギー移動がない比 較発光素子 9 よりも高い値を示した。

【 0 3 2 9 】

また、 発 光 素 子 8 は、 1 0 0 0 c d / m <sup>2</sup> 付 近 に お け る 電 圧 が 2 . 8 V と 極 め て 低 く、 比 較 発 光 素 子 9 よ り も 低 い 値 を 示 し た 。 10

20



【0330】

次に、発光素子8及び比較発光素子9の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図30 に示す。図30において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し 、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を5000 cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図30から 、発光素子8の3400時間後の輝度は初期輝度の89%を保っており、比較発光素子9 の230時間後の輝度は初期輝度の89%未満であった。この信頼性試験の結果から、発 光素子8は、比較発光素子9に比べて長寿命であることが明らかとなった。

(60)

[0331]

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高い発光効率を示す発光素子を得 <sup>10</sup> られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで寿命の長い発光素子を得 られることがわかった。

【 実 施 例 5 】

【0332】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図 7 を用いて説明する。本実施例で用 いる材料の化学式を以下に示す。なお、既に示した材料については省略する。

【0333】

【化27】



PCASF

【0334】

以下に、本実施例の発光素子10、発光素子11、及び比較発光素子12の作製方法を示 す。なお、本実施例の各発光素子における発光層以外の構成及び作製方法は、発光素子8 と同様であるため説明を省略し、以下では、本実施例の各発光素子における発光層の構成 及び作製方法について説明する。

【 0 3 3 5 】

(発光素子10)

発光素子10では、2mDBTBPDBq - II、N-(4-ビフェニル)-N-(9, 9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-9-フェニル-9H-カルバゾール-3 -アミン(略称:PCBiF)、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、

30

20

正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは、2mDBTBPDBq-II、PCBiF、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0.7:0. 3:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBiF:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(a cac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8: 0.2:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBiF:[Ir(dppm)<sub>2</sub> (acac)])となるように調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。 【0336】

(61)

(発光素子11)

発光素子11では、2mDBTBPDBq-II、N-(4-ビフェニル)-N-(9, 9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-イル)-9-フェニル-9H-カルバゾール -3-アミン(略称:PCBiSF)、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸 着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは、2mDBTBPD Bq-II、PCBiSF、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0. 7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBiSF:[Ir(dpp m)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重量比が 、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBiSF:[Ir( dppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層 した。

[0337]

(比較発光素子12)

比較 発 光 素 子 1 2 で は、 2 m D B T B P D B q - I I、 2 - [ N -( 9 - フ ェ ニ ル カ ル バ ゾール - 3 - イ ル ) - N - フ ェ ニ ル ア ミ ノ ] - ス ピ ロ - 9 , 9 ' - ビ フ ル オ レ ン (略称: P C A S F )、 及 び [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] を 共 蒸 着 し、 正 孔 輸 送 層 1 1 1 2 上 に 発 光 層 1 1 1 3 を 形 成 し た 。 こ こ で は 、 2 m D B T B P D B q - I I 、 P C A S F 、 及 び [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] の 重 量 比 が 、 0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C A S F : [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) と な るよう に 調 整 し て 成 膜 し た 厚 さ 2 0 n m の 層 と 、 該 重 量 比 が、 0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C A S F : [ I r ( d p p m ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) と な る よ う に 調 節 し て 成 膜 し た 厚 さ 2 0 n m の 層 と を 積 層 し た 。

【 0 3 3 8 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表9に示す。

【 0 3 3 9 】

【表9】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極	
発光				2mDBTBPDBq-II:P0	CBiF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]				
素子				(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
10				20nm	20nm				
発光	1700	DBT3P-II		2mDBTBPDBq-II:PC	BiSF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]	2mDBT	DDI	1.00	
素子	110nm	:MoUx (=4·2)	20nm	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	BPDBq-II	20nm		AI 200nm
11		20nm	201111	20nm	20nm	20nm	201111		2001111
比較				2mDBTBPDBq-II:PC	CASF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]	]			
発光				(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
素子12				20nm	20nm				

[0340]

発光素子10、発光素子11、及び比較発光素子12を、窒素雰囲気のグローブボックス 内において、各発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行っ た後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温(25 に 保たれた雰囲気)で行った。

【0341】

20

10

30

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図31に示す。図31において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図32に 示す。図32において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝 度 - 外部量子効率特性を図33に示す。図33において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を 、縦軸は、外部量子効率(%)を表す。また、各発光素子における輝度1000cd/m <sup>2</sup> 付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標(x、y)、電 流効率(cd/A)、パワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表10に示す。 【0342】 【表10】

10

20

30

40

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部 量子効率(%)
発光素子10	3.2	1.4	0.57	0.43	960	70	69	29
発光素子11	3.3	1.5	0.57	0.43	1000	70	67	29
比較発光素子12	3.3	1.4	0.57	0.43	930	65	62	27

【 0 3 4 3 】

表10に示す通り、1000cd/m<sup>2</sup> 付近の輝度の時の各発光素子のCIE色度座標は (x,y)=(0.57,0.43)であった。本実施例で示す発光素子は、[Ir(d ppm)<sub>2</sub>(acac)]に由来する橙色発光が得られたことがわかった。 【0344】

図32及び表10から、発光素子10、発光素子11、及び比較発光素子12の駆動電圧

が同程度であることがわかった。また、図31、図33、及び表10から、発光素子10 及び発光素子11は、比較発光素子12に比べて電流効率、パワー効率、外部量子効率が それぞれ高いことがわかった。

【0345】

次に、発光素子10、発光素子11、及び比較発光素子12の信頼性試験を行った。信頼 性試験の結果を図34に示す。図34において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規 格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い 、初期輝度を5000cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を 駆動した。図34から、発光素子10の660時間後の輝度は初期輝度の94%を保って おり、発光素子11の660時間後の輝度は初期輝度の93%を保っており、比較発光素 子12の660時間後の輝度は初期輝度の87%未満であった。この信頼性試験の結果か ら、発光素子10及び発光素子11は、比較発光素子12に比べて長寿命であることが明 らかとなった。

【0346】

発光素子11は、カルバゾール骨格を含む置換基、スピロフルオレニル基、及びビフェニ ル基を有するPCBiSFを発光層に含む。比較発光素子12は、カルバゾール骨格を含 む置換基、スピロフルオレニル基、及びフェニル基を有するPCASFを発光層に含む。 すなわち、発光素子11と、比較発光素子12との違いは、発光層に含まれる第3級アミ ンの置換基がビフェニル基かフェニル基かだけである。本発明の一態様である発光素子1 1で用いた第3級アミンは、反応性の高いフェニルアミン骨格のフェニル基の4位をフェ ニル基でキャップすることで、p-ビフェニルアミン骨格を形成しているため、信頼性の 高い発光素子を実現できる。

【0347】

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高い発光効率を示す発光素子を得 られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで、寿命の長い発光素子を 得られることがわかった。 【実施例6】

【0348】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図7を用いて説明する。なお、本実施 例で用いる材料は既に化学式を示した材料である。

【 0 3 4 9 】

以下に、本実施例の発光素子13、発光素子14、発光素子15、及び比較発光素子16 の作製方法を示す。なお、本実施例の各発光素子における発光層及び電子輸送層以外の構 成及び作製方法は、発光素子8と同様であるため説明を省略し、以下では、本実施例の各 発光素子における発光層及び電子輸送層の構成及び作製方法について説明する。

【 0 3 5 0 】

(発光素子13)

発光素子13では、2mDBTBPDBq-II、PCBBiF、及び[Ir(tBup pm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した 。ここでは、2mDBTBPDBq-II、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm) 2(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-I I:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成 膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBP DBq-II:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように 調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。

【0351】

(発光素子14)

発光素子14では、2mDBTBPDBq-II、PCBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。 ここでは、2mDBTBPDBq-II、PCBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>( acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-II: PCBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜した 厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDBq -II:PCBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節して 成膜した厚さ20nmの層とを積層した。

【0352】

(発光素子15)

発光素子15では、2mDBTBPDBq-II、PCBiSF、及び[Ir(tBup pm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した 。ここでは、2mDBTBPDBq-II、PCBiSF、及び[Ir(tBuppm) 2(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-I I:PCBiSF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成 膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBP DBq-II:PCBiSF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように 調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。

【0353】

(比較発光素子16)

比較発光素子16では、2mDBTBPDBq-III、PCASF、及び[Ir(tBu ppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成し た。ここでは、2mDBTBPDBq-II、PCASF、及び[Ir(tBuppm) 2(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-I I:PCASF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜 した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPD Bq-II:PCASF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節 して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。 【0354】 10

20



そして、本実施例の発光素子13、発光素子14、発光素子15、及び比較発光素子16 では、発光層1113上に2mDBTBPDBq-IIを膜厚10nmとなるように成膜 し、さらに、BPhenを膜厚15nmとなるように成膜することで、電子輸送層111 4を形成した。

【 0 3 5 5 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表11に示す。

[0356]

【表11】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極	
光子 3 光子   発素 13 光子   発素 14 光子   比発素 15 較光   比発子 16	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	2mDBTBPDBq-II:PCE (=0.7:0.3:0.05) 20nm 2mDBTBPDBq-II:PC (=0.7:0.3:0.05) 20nm 2mDBTBPDBq-II:PCE (=0.7:0.3:0.05) 20nm 2mDBTBPDBq-II:PC/ (=0.7:0.3:0.05) 20nm	BiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm BiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm BiSF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm ASF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	2mDBT BPDBq-II 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【 0 3 5 7 】

発光素子13、発光素子14、発光素子15、及び比較発光素子16を、窒素雰囲気のグ ローブボックス内において、各発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止 する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は 室温(25 に保たれた雰囲気)で行った。

【 0 3 5 8 】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図35に示す。図35において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図36に 示す。図36において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝 度 - 外部量子効率特性を図37に示す。図37において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を 、縦軸は、外部量子効率(%)を表す。また、各発光素子における輝度1000cd/m <sup>2</sup>付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標(×、y)、電 流効率(cd/A)、パワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表12に示す。 【0359】

【表12】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m²)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (Im/W)	外部 量子効率(%)
発光素子13	2.8	0.80	0.41	0.58	860	107	120	28
発光素子14	2.9	0.89	0.41	0.58	970	109	118	29
発光素子15	2.9	0.95	0.42	0.57	1000	109	119	29
比較発光素子16	3.0	0.10	0.42	0.57	1100	109	114	29

[0360]

表12に示す通り、860cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子13のCIE色度座標は(x 50

10

, y) = (0.41,0.58)であった。970cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子14 のCIE色度座標は(x,y) = (0.41,0.58)であった。1000cd/m<sup>2</sup> の輝度の時の発光素子15のCIE色度座標は(x,y) = (0.42,0.57)であ った。1100cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の比較発光素子16のCIE色度座標は(x,y) = (0.42,0.57)であった。本実施例で示す発光素子は、[Ir(tBuppm))<sub>2</sub>(acac)]に由来する黄緑色発光が得られたことがわかった。 【0361】

図 3 5 乃 至 図 3 7 、 及 び 表 1 2 か ら 、 発 光 素 子 1 3 、 発 光 素 子 1 4 、 発 光 素 子 1 5 、 及 び 比 較 発 光 素 子 1 6 は 、 い ず れ も 駆 動 電 圧 が 低 く 、 電 流 効 率 、 パ ワ ー 効 率 、 外 部 量 子 効 率 が それ ぞ れ 高 い 発 光 素 子 で あ る こ と が わ か っ た 。

【0362】

次に、発光素子13、発光素子14、発光素子15、及び比較発光素子16の信頼性試験 を行った。信頼性試験の結果を図38に示す。図38において、縦軸は初期輝度を100 %とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験 は、室温で行い、初期輝度を50000cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件で本実施 例の発光素子を駆動した。図38から、発光素子13の520時間後の輝度は初期輝度の 90%を保っており、発光素子14の600時間後の輝度は初期輝度の84%を保ってお り、発光素子15の520時間後の輝度は初期輝度の85%を保っており、比較発光素子 16の600時間後の輝度は初期輝度の75%未満であった。この信頼性試験の結果から 、発光素子13、発光素子14、及び発光素子15は、比較発光素子16に比べて長寿命 であることが明らかとなった。

【 0 3 6 3 】

前述の通り、発光素子15の520時間後の輝度は初期輝度の85%を保っていたが、比較発光素子16の520時間後の輝度は、初期輝度の77%未満であった。ここで、発光素子15は、カルバゾール骨格を含む置換基、スピロフルオレニル基、及びビフェニル基を有するPCBiSFを発光層に含む。比較発光素子16は、カルバゾール骨格を含む置換基、スピロフルオレニル基、及びフェニル基を有するPCASFを発光層に含む。すなわち、発光素子15と、比較発光素子16との違いは、発光層に含まれる第3級アミンの置換基がビフェニル基かフェニル基かだけである。本発明の一態様である発光素子15で用いた第3級アミンは、反応性の高いフェニルアミン骨格のフェニル基の4位をフェニル基でキャップすることで、p-ビフェニルアミン骨格を形成しているため、信頼性の高い発光素子を実現できる。

【0364】

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高い発光効率を示す発光素子を得 られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで、寿命の長い発光素子を 得られることがわかった。

【実施例7】

[0365]

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について図 7 を用いて説明する。本実施例で用 いる材料の化学式を以下に示す。なお、既に示した材料については省略する。

【0366】

10

20

【化28】



4,6mCzP2Pm

[0367] 以下に、本実施例の発光素子17の作製方法を示す。 [0368] (発光素子17) まず、発光素子8と同様に、ガラス基板1100上に第1の電極1101、正孔注入層1 111、及び正孔輸送層1112を作製した。 [0369] 次に、4,6-ビス「3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ピリミジン(略 称:4,6mCzP2Pm)、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac )]を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは、4,6 mCzP2Pm、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)。(acac)]の重量比 が、0.7:0.3:0.05(=4,6mCzP2Pm:PCBBiF:「Ir(tB uppm),(acac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重 量比が、 0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 4 , 6 m C z P 2 P m : P C B B i F : [ I r ( t B u p p m ) , ( a c a c ) ] )となるように調節して成膜した厚さ20n m の層とを 積層した。 [0370] 次に、発光層1113上に4,6mCzP2Pmを膜厚15nmとなるように成膜し、さ らに、BPhenを膜厚10nmとなるように成膜することで、電子輸送層1114を形 成した。 【0371】 その後、電子輸送層1114上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115 を形成した。 最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜 厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子17を作製した。 [0373] なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。 以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表13に示す。 【0375】

20

30

40

【表13】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔 輸送層	発う	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極
発光 素子 17	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2)	BPAFLP 20nm	4,6mCzP2Pm:PCBBi				
				(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	4,6mCzP2Pm 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm
		20nm		20nm	20nm			

【0376】

発光素子17を、窒素雰囲気のグローブボックス内において、発光素子が大気に曝されな 10 いようにガラス基板により封止する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性につい て測定を行った。なお、測定は室温(25 に保たれた雰囲気)で行った。 【0377】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図39に示す。図39において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図40に 示す。図40において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝 度 - 外部量子効率特性を図41に示す。図41において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を 、縦軸は、外部量子効率(%)を表す。また、発光素子17における輝度760cd/m <sup>2</sup>のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)、CIE色度座標(×、y)、電流効 率(cd/A)、パワー効率(1m/W)、外部量子効率(%)を表14に示す。 【0378】

【表14】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (Im/W)	外部 量子効率(%)
発光素子17	2.8	0.67	0.41	0.58	113	127	30

【 0 3 7 9 】

表14に示す通り、760cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子17のCIE色度座標は(× ,y)=(0.41,0.58)であった。1本実施例で示す発光素子は、[Ir(tB uppm)<sub>2</sub>(acac)]に由来する橙色発光が得られたことがわかった。 【0380】

図 3 9 乃 至 図 4 1 、 及 び 表 1 4 か ら 、 発 光 素 子 1 7 は 、 駆 動 電 圧 が 低 く 、 電 流 効 率 、 パ ワ ー 効 率 、 外 部 量 子 効 率 が そ れ ぞ れ 高 い 発 光 素 子 で あ る こ と が わ か っ た 。

【0381】

次に、発光素子17の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図42に示す。図42に おいて、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆 動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を5000cd/m<sup>2</sup>に設定 し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図42から、発光素子17の 180時間後の輝度は初期輝度の90%を保っていた。

【 0 3 8 2 】

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高い発光効率を示す発光素子を得 られることがわかった。また、本発明の一態様を適用することで寿命の長い発光素子を得 られることがわかった。

【0383】

(参考例1)

実施例1、実施例2及び実施例4で用いた下記構造式(128)に示されるN-(1,1 '-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イ ル)フェニル]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBBi F)の合成方法について説明する。 20

40

[0384]【化29】



(68)

[0385]

< ステップ1:N-(1,1 ' - ビフェニル-4 - イル)-9,9- ジメチル-N-フェ ニル - 9 H - フルオレン - 2 - アミンの合成 > ステップ1の合成スキームを(×-1)に示す。 [0386] 【化30】



(x-1)

[0387]

1 L 三 ロ フ ラ ス コ に 、 N - ( 1 , 1 ' - ビ フ ェ ニ ル - 4 - イ ル ) - 9 , 9 - ジ メ チ ル - 9 H - フルオレン - 2 - アミン45g(0.13mol)と、ナトリウムtert - ブトキ シド36g(0.38mol)と、ブロモベンゼン21g(0.13mol)と、トルエ ン500mLを入れた。この混合物を減圧しながら撹拌することで脱気し、脱気後、フラ スコ内を窒素置換した。その後、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)0. 8 g ( 1 . 4 m m o l ) と、トリ ( t e r t - ブチル ) ホスフィン ( 1 0 w t % ヘキサン 溶液)12mL(5.9mmol)を加えた。

[0388]

この混合物を窒素気流下、90 で2時間撹拌した。その後、混合物を室温まで冷やして から、吸引濾過により固体を濾別した。得られた濾液を濃縮し、褐色液体約200mLを 得た。この褐色液体をトルエンと混合してから、得られた溶液をセライト(和光純薬工業 株式会社、カタログ番号:531-16855、以下に記すセライトについても同様であ るが繰り返しの記載は省略する)、アルミナ、フロリジール(和光純薬工業株式会社、カ タログ番号:540-00135、以下に記すフロリジールについても同様であるが繰り 返しの記載は省略する)を用いて精製した。得られた濾液を濃縮して淡黄色液体を得た。

10

30

この淡黄色液体をヘキサンにて再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末を収量52g、収率95%で得た。 【0389】 <ステップ2:N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(4-ブロモフェニル) -9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミンの合成> ステップ2の合成スキームを(x-2)に示す。 【0390】 【化31】



【0391】

1 Lマイヤーフラスコに、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-9,9-ジメチル -N-フェニル-9H-フルオレン-2-アミン45g(0.10mol)を入れ、トル エン225mLを加えて加熱しながら撹拌して溶解した。この溶液を室温まで放冷した後 、酢酸エチル225mLを加えて、N-ブロモこはく酸イミド(略称:NBS)18g( 0.10mol)を加えて、2.5時間室温にて撹拌した。撹拌終了後、この混合物を飽 和炭酸水素ナトリウム水溶液で3回、飽和食塩水で1回洗浄した。得られた有機層に硫酸 マグネシウムを加えて2時間静置し、乾燥した。この混合物を自然濾過して硫酸マグネシ ウムを除去し、得られた濾液を濃縮したところ、黄色液体を得た。この黄色液体をトルエ ンと混合し、この溶液をセライト、アルミナ、フロリジールを用いて精製した。得られた 溶液を濃縮して淡黄色固体を得た。この淡黄色固体をトルエン/エタノールにて再結晶し たところ、目的物の白色粉末を収量47g、収率89%で得た。

< ステップ3: PCBBiFの合成 >
ステップ3の合成スキームを(x - 3)に示す。
【0393】

20

10

【化32】



PCBBiF

【0394】

1 L 三 ロ フ ラ ス コ に N - (1,1' - ビ フ ェ ニ ル - 4 - イ ル) - N - (4 - ブ ロ モ フ ェ ニ ル) - 9,9 - ジ メ チ ル - 9 H - フ ル オ レ ン - 2 - ア ミ ン 4 1 g (80 m m o 1)、9 -フ ェ ニ ル - 9 H - カ ル バ ゾ ー ル - 3 - ボ ロ ン 酸 2 5 g (88 m m o 1)を入れ、トル エ ン 2 4 0 m L と エ タ ノ ー ル 8 0 m L と 炭酸カ リ ウ ム 水 溶液(2.0 m o 1 / L) 1 2 0 m L を 加 え て、この 混合物を 減 圧 し な がら 撹 拌 す る こ と で 脱 気 し、脱気後、フ ラ ス コ 内 を 窒素 置換した。さらに、酢酸 パ ラ ジ ウ ム (II) 2 7 m g (0.12 m m o 1)、トリ (オ ル ト - ト リ ル)ホスフィン 1 5 4 m g (0.5 m m o 1)を 加 え、再度、減圧 し な がら 撹 拌 す る こ と で 脱気し、脱気後、フ ラ ス コ 内 を 窒素 置換した。この 混合物を 窒素気流下、11 0 で 1.5 時間 撹 拌 し た。

[0395]

その後、撹拌しながら室温まで放冷した後、この混合物の水層をトルエンで2回抽出した。得られた抽出液と有機層をあわせてから、水で2回、飽和食塩水で2回洗浄した。この 溶液に硫酸マグネシウムを加えて静置し、乾燥した。この混合物を自然濾過して硫酸マグ ネシウムを除去し、得られた濾液を濃縮して褐色溶液を得た。この褐色溶液をトルエンと 混合してから、得られた溶液をセライト、アルミナ、フロリジールを通して精製した。得 られた濾液を濃縮して淡黄色固体を得た。この淡黄色固体を酢酸エチル/エタノールを用 いて再結晶したところ、目的物の淡黄色粉末を収量46g、収率88%で得た。 【0396】

得られた淡黄色粉末38gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力3.7Pa、アルゴン流量15mL/minの条件で、淡黄色粉末を345 で加熱して行った。昇華精製後、目的物の淡黄色固体を収量31g、回収率83%で得た。 【0397】

核磁気共鳴法(NMR)によって、この化合物が目的物であるN-(1,1' - ビフェニ ル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル ]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBBiF)であるこ とを確認した。

20

[0398]得られた淡黄色固体の<sup>1</sup> H NMRデータを以下に示す。 <sup>1</sup> H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500MHz): = 1, 45 (s, 6H), 7.18 ( d、J=8.0Hz、1H)、7.27-7.32(m、8H)、7.40-7.50( m、7H)、7.52-7.53(m、2H)、7.59-7.68(m、12H)、8 . 19 (d, J = 8.0 Hz, 1 H), 8.36 (d, J = 1.1 Hz, 1 H), [0399]また、<sup>1</sup> H NMRチャートを図21に示す。なお、図21(B)は、図21(A)にお ける6.00ppm~10.0ppmの範囲を拡大して表したチャートである。 [0400]また、PCBBiFのトルエン溶液の吸収スペクトルを図22(A)に、発光スペクトル を図22(B)にそれぞれ示す。また、PCBBiFの薄膜の吸収スペクトルを図23( A)に、発光スペクトルを図23(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外 可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、 薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、 溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸 収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペク トルを示した。図22及び図23において横軸は波長(nm)、縦軸は強度(任意単位) を表す。トルエン溶液の場合では350nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピー クは、401 nm、420 nm(励起波長360 nm)であった。また、薄膜の場合では 356nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは415nm、436nm(励) 起波長370nm)であった。 [0401]

(参考例2)

実施例1で用いた9,9-ジメチル-N-[4-(1-ナフチル)フェニル]-N-[4 -(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9H-フルオレン-2 -アミン(略称:PCBNBF)の合成方法について説明する。

[0402]

【化33】



PCBNBF

【0403】 < ステップ1:1-(4-ブロモフェニル)ナフタレンの合成>

ステップ1の合成スキームを(y-1)に示す。

【0404】

10

20

(72)



[0405]

3 L 三 ロ フ ラ ス コ に、1 - ナ フ タ レンボロン酸47g(0.28mol)と、4 - ブロモ ヨードベンゼン82g(0.29mol)を加え、トルエン750mLと、エタノール2 50mLを加えた。この混合物を減圧しながら撹拌することで脱気し、脱気後、フラスコ 内を窒素置換した。この溶液に炭酸カリウム水溶液(2.0mol/L)415mLを加 え、この混合物を再び減圧しながら撹拌することで脱気し、脱気後、フラスコ内を窒素置 換した。ここへ、トリ(オルト - トリル)ホスフィン4.2g(14mmol)と、酢酸 パラジウム(II)0.7g(2.8mmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、9 0 で1時間撹拌した。

[0406]

撹拌後、この混合物を室温まで放冷し、この混合物の水層をトルエンで3回抽出した。得20 られた抽出液と有機層をあわせて、水で2回、飽和食塩水で2回洗浄した。その後、硫酸 マグネシウムを加えて18時間静置し、乾燥した。この混合物を、自然濾過して硫酸マグ ネシウムを除去し、得られた濾液を濃縮したところ、橙色液体を得た。

【0407】

この橙色液体にヘキサン500mLを加えてから、得られた溶液をセライト、フロリジー ルを通して精製した。得られた濾液を濃縮して無色液体を得た。この無色液体にヘキサン を加え、 -10 にて静置し、析出した不純物を濾別した。得られた濾液を濃縮し、無色 液体を得た。この無色液体を減圧蒸留にて精製し、得られた黄色液体をシリカゲルカラム クロマトグラフィー(展開溶媒:ヘキサン)にて精製したところ、目的物の無色液体を収 量56g、収率72%で得た。

【0408】

< ステップ 2 : 9 , 9 - ジメチル - N - ( 4 - ナフチル)フェニル - N - フェニル - 9 H - フルオレン - 2 - アミンの合成 >

ステップ2の合成スキームを(y-2)に示す。

[ 0 4 0 9 ]

【化35】



40

30
1 L 三口フラスコに、9,9-ジメチル - N-フェニル - 9 H - フルオレン - 2 - アミン 4 0 g (0.14 mol)と、ナトリウムtert-ブトキシド4 0 g (0.42 mol) )と、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)2.8 g (1.4 mmol)を 入れ、1 - (4 - ブロモフェニル)ナフタレン44g (0.15 mol)のトルエン溶液 5 6 0 m L を加えた。この混合物を減圧しながら撹拌することで脱気し、脱気後、フラス コ内を窒素置換した。その後、トリ(tert - ブチル)ホスフィン(10 w t%へキサ ン溶液)14 m L (7.0 mmol)を加え、この混合物を窒素気流下、110 で2時 間撹拌した。

## [0411]

その後、混合物を室温まで冷やしてから、吸引濾過により固体を濾別した。得られた濾液 <sup>10</sup> を濃縮し、濃褐色液体を得た。この濃褐色液体をトルエンと混合してから、得られた溶液 をセライト、アルミナ、フロリジールを通して精製した。得られた濾液を濃縮して、淡黄 色液体を得た。この淡黄色液体をアセトニトリルにて再結晶し、目的物の淡黄色粉末を収 量53g、収率78%で得た。

**[**0412**]** 

< ステップ 3 : N - ( 4 - ブロモフェニル) - 9 , 9 - ジメチル - N - [ 4 - ( 1 - ナフ チル)フェニル] - 9 H - フルオレン - 2 - アミンの合成 >

- ステップ3の合成スキームを(y 3)に示す。
- 【0413】
- 【化36】



## **[**0414**]**

2 Lマイヤーフラスコに、9,9-ジメチル - N - (4 - ナフチル)フェニル - N - フェ ニル - 9 H - フルオレン - 2 - アミン5 9 g(0 . 1 2 m o 1)と、トルエン3 0 0 m L を加え、この混合物を加熱しながら撹拌した。得られた溶液を室温まで放冷した後、酢酸 エチル3 0 0 m L を加えてから、N - プロモこはく酸イミド(略称; N B S ) 2 1 g(0 . 1 2 m o 1 )を加えて、約2 . 5 時間室温にて撹拌した。この混合物に飽和炭酸水素ナ トリウム水溶液 4 0 0 m L を加えて室温にて撹拌した。この混合物の有機層を飽和炭酸水 素ナトリウム水溶液で2 回、飽和食塩水で2 回洗浄した。その後、硫酸マグネシウムを加 えて 2 時間静置し、乾燥した。この混合物を自然濾過して硫酸マグネシウムを除去した後 、得られた濾液を濃縮し、黄色液体を得た。この液体をトルエンに溶かしてから、この溶 液をセライト、アルミナ、フロリジールを通して精製し、淡黄色固体を得た。得られた淡 黄色固体をトルエン / アセトニトリルを用いて再沈殿したところ、目的物の白色粉末を収 量5 6 g、収率 8 5 %で得た。

- < ステップ4 : P C B N B F の合成 >
- ステップ4の合成スキームを(y-4)に示す。
- 【0416】



**[**0417**]** 

1 L三口フラスコに、N - (4 - プロモフェニル) - 9,9 - ジメチル - N - [4 - (1 - ナフチル)フェニル] - 9 H - フルオレン - 2 - アミン 5 1 g (9 0 mm o 1)と、9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - ボロン酸 2 8 g (9 5 mm o 1)と、酢酸パラジ ウム(II)0.4 mg(1.8 mm o 1)と、トリ(オルト - トリル)ホスフィン1. 4 g (4 . 5 mm o 1)と、トルエン 3 0 0 m L と、エタノール 1 0 0 m L と、炭酸カリ ウム水溶液(2.0 m o 1 / L) 1 3 5 m L を加えた。この混合物を減圧しながら撹拌す ることで脱気し、脱気後、フラスコ内を窒素置換した。この混合物を窒素気流下、9 0 で1.5時間撹拌した。撹拌後、混合物を室温まで冷やしてから、吸引濾過により固体を 回収した。得られた水層と有機層の混合物から有機層を取出し、濃縮して褐色固体を得た 。この褐色固体をトルエン / 酢酸エチル / エタノールを用いて再結晶を行い、目的物の白 色粉末を得た。また、撹拌後に回収した固体を、再結晶にて得られた白色粉末とともに、 トルエンに溶解してから、セライト、アルミナ、フロリジールを通して精製した。得られ た溶液を濃縮し、トルエン / エタノールを用いて再結晶を行ったところ、目的の白色粉末 を収量54g、収率82%で得た。 【0418】

得られた白色粉末51gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。昇華精製は、圧力3.7Pa、アルゴン流量15mL/minの条件で、白色粉末を360 で加熱して行った。昇華精製後、目的の淡黄色固体を収量19g、回収率38%で得た。 【0419】

核磁気共鳴法(NMR)によって、この化合物が目的物である9,9-ジメチル-N-[ 4-(1-ナフチル)フェニル]-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3 -イル)フェニル]-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBNBF)であること を確認した。

[0420]

得られた物質の<sup>1</sup> H NMRデータを以下に示す。

<sup>1</sup> H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500MHz): = 1.50(s、6H)、7.21( dd、J=8.0Hz、1.6Hz、1H)、7.26-7.38(m、8H)、7.4 1-7.44(m、5H)、7.46-7.55(m、6H)、7.59-7.69(m

20

10

50

、9 H)、7.85(d、J=8.0Hz、1H)、7.91(dd、J=7.5Hz、
1.7Hz、1H)、8.07-8.09(m、1H)、8.19(d、J=8.0Hz
、1H)、8.37(d、J=1.7Hz、1H)。
【0421】
(参考例3)
実施例3で用いた下記構造式(119)に示されるN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9
'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン(略称: PCBBiSF)の合成方法について説明する。

【0422】

【化38】



(119) PCBBiSF

【0423】 <ステップ1:N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-フェニル-9,9'-ス ピロビ[9H-フルオレン]-2-アミンの合成> ステップ1の合成スキームを(z-1)に示す。 【0424】 【化39】



[0425]

200mL三ロフラスコに、2-ブロモ - 9,9-スピロビ[9H-フルオレン]4.8 g(12mmol)と、4-フェニル - ジフェニルアミン3.0g(12mmol)と、 ナトリウムtert - プトキシド3.5g(37mmol)を入れ、フラスコ内を窒素置 換した。この混合物へ、脱水トルエン60mLとトリ(tert - プチル)ホスフィン( 10%へキサン溶液)0.2mLを加え、この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気 した。この混合物にビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を70mg(0. 12mmol)加え、窒素気流下にて110 で8時間加熱撹拌した。撹拌後、この混合 物に水を加え、水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和食塩水で洗 10

20

浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して固体を得た。 【0426】 この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフ ィーはトルエン:ヘキサン=1:5、次いでトルエン:ヘキサン=1:3を展開溶媒とし 、得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られた固体をトルエン/酢酸エチルで

再結晶し、白色固体を収量5.7g、収率83%で得た。

【0427】

< ステップ2:N-(1,1 ' -ビフェニル-4-イル)-N-(4-ブロモフェニル) -9,9 ' -スピロビ「9H-フルオレン]-2-アミンの合成>

ステップ2の合成スキームを(z - 2)に示す。

< ステップ3: PCBBiSFの合成 >

ステップ3の合成スキームを(z - 3)に示す。

【0428】

【化40】



[0429]

**[**0431**]** 

100mL三ロフラスコに、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-フェニル-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン3.0g(5.4mmol)と、 トルエン20mLと、酢酸エチル40mLを加えた。この溶液に0.93g(5.2mm ol)のN-ブロモこはく酸イミド(略称;NBS)を加え、25時間撹拌した。撹拌後 、この混合物を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した後、有機層を硫酸マグネシ ウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して固体を得た。この 固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィー はヘキサン、次いでトルエン:ヘキサン=1:5を展開溶媒とし、得られたフラクション を濃縮して固体を得た。得られた固体を酢酸エチル/ヘキサンで再結晶し、白色固体を収 量2.8g、収率83%で得た。

30

10

【化41】



【0432】

200mL三口フラスコに、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(4-ブロ モフェニル)-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン2.4g(3.8 mmol)と、9-フェニルカルバゾール-3-ボロン酸1.3g(4.5mmol)と、 、トリ(オルト-トリル)ホスフィン57mg(0.19mmol)と、炭酸カリウム1 .2g(9.0mmol)を入れた。この混合物に、水5mLと、トルエン14mLと、 エタノール7mLを加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物に酢酸パラ ジウム8mg(0.038mmol)を加え、窒素気流下、90 で7.5時間撹拌した 。撹拌後、得られた混合物をトルエンで抽出した。得られた抽出溶液と有機層を合わせ、 飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し 、濾液を濃縮して固体を得た。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精 製した。カラムクロマトグラフィーはトルエン:ヘキサン=1:2、次いでトルエン:ヘ キサン=2:3を展開溶媒とし、得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られた 固体を酢酸エチル/ヘキサンで再結晶し、目的物の白色固体を収量2.8g、収率94% で得た。

得られた固体 2 . 8 gをトレインサブリメーション法により昇華精製した。圧力 2 . 9 P 40 a、アルゴン流量 5 m L / m i n の条件で、 3 3 6 で加熱して行った。昇華精製後、淡 黄色固体を収量 0 . 9 9 g、回収率 3 5 % で得た。

【0434】

核磁気共鳴法(NMR)によって、この化合物が目的物であるN-(1,1^-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9^-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン(略称:PCBBiSF)であることを確認した。

【0435】

得られた淡黄色固体の<sup>1</sup> H NMRデータを以下に示す。

 $^{1}$  H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500MHz) : = 6.67-6.69 (m, 2H), 50

20

6.84 (d、J1=7.5Hz、2H)、7.04-7.11 (m、5H)、7.13 - 7.17(m、3H)、7.28-7.45(m、12H)、7.46-7.53(m 、 5 H )、 7 . 5 7 - 7 . 6 4 (m、 5 H )、 7 . 7 4 - 7 . 7 7 (m、 4 H )、 8 . 1 7 ( d、 J 1 = 7 . 5 H z、 1 H )、 8 . 2 7 ( d、 J 1 = 1 . 5 H z、 1 H )。 [0436] また、<sup>1</sup> H NMRチャートを図24に示す。なお、図24(B)は、図24(A)にお ける6.50ppm~8.50ppmの範囲を拡大して表したチャートである。 [0437] また、PCBBiSFのトルエン溶液の吸収スペクトルを図25(A)に、発光スペクト ルを図25(B)にそれぞれ示す。また、PCBBiSFの薄膜の吸収スペクトルを図2 6 (A)に、発光スペクトルを図26 (B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定方法 は参考例1と同様である。図25及び図26において横軸は波長(nm)、縦軸は強度( 任 意 単 位 ) を 表 す 。 ト ル エ ン 溶 液 の 場 合 で は 3 5 2 n m 付 近 に 吸 収 ピ ー ク が 見 ら れ 、 発 光 波長のピークは、403nm(励起波長351nm)であった。また、薄膜の場合では3 57nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは424nm(励起波長378n m)であった。 【符号の説明】 [0438]201 第1の電極 203 EL層 203a 第1のEL層 203b 第2のEL層 205 第2の電極 207 中間層 2 1 3 発光層 221 第1の有機化合物 2 2 2 第2の有機化合物 223 <u> 燃 光 性 化 合 物</u> 301 正孔注入層 3 0 2 正孔輸送層 303 発光層 3 0 4 電子輸送層 305 電子注入層 306 電子注入バッファー層 307 電子リレー層 308 電荷発生領域 4 0 1 支持基板 4 0 3 発光素子 封止基板 4 0 5 4 0 7 封止材 409a 第1の端子 409b 第2の端子 4 1 1 a 光取り出し構造 4 1 1 b 光取り出し構造 4 1 3 平坦化層 4 1 5 空間 4 1 7 補助配線 4 1 9 絶縁層 4 2 1 第1の電極

4 2 3

EL層

(78)

10

(79)

10

20

30

スピーカ部 7 3 0 4 7 3 0 5 記録媒体挿入部 7306 操作キー 7307 接続端子 7308 センサ 7400 携帯電話機 7401 筐体 7402 表示部 7403 操作ボタン 7404 外部接続ポート スピーカ 7405 7406 マイク 7500 タブレット型端末 7501a 筐体 7501b 筐体 7502a 表示部 7502b 表示部 7503 軸 部 7504 電 源 7 5 0 5 操作キー 7506 スピーカ 7601 照明部 7602 傘 7603 可変アーム 7604 支柱 7605 台 7606 電 源 7701 照明器具 7702 照明器具 7703 卓上照明器具

10

30

(81)



【図3】



409b R N ш 407 401 415 419 425 423 403 421 411b 405 407 41 ر 409a الإل ∢ 【図4】

3



552

551

ً₿

(A)



















10

1

100

輝度(cd/m<sup>2</sup>)

1000

10000



輝度(cd/m²)





【図21】 (A)



(B)



【図 2 2】 (A)













波長(nm)



【図26】 (A)



(B)



















フロントページの続き

 (72)発明者 瀬尾 哲史
 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
 Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC04 CC12 CC21 DD53 DD59 DD68 4C204 BB09 CB25 EB01 FB08 GB13