(19) **日本国特許庁(JP)**

(12) 公 開 特 許 公 報(A)

(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. F I テーマコード (参考) **HO1L 51/50 (2006.01)** HO5B 33/14 B 3 K 1 O 7

CO9K 11/06 (2006.01) CO9K 11/06 69O 4C2O4

CO7D 209/86 (2006.01) CO7D 209/86

審査請求 有 請求項の数 12 OL (全 88 頁)

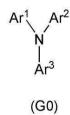
(21) 出願番号	特願2019-190174 (P2019-190174)	(71) 出願人	000153878	
(22) 出願日	令和1年10月17日 (2019.10.17)		株式会社半導体エネルギー研究所	
(62) 分割の表示	特願2018-197509 (P2018-197509)		神奈川県厚木市長谷398番地	
	の分割	(72) 発明者	濱田 孝夫	
原出願日	平成25年7月29日 (2013.7.29)		神奈川県厚木市長谷398番地	株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2012-172944 (P2012-172944)		半導体エネルギー研究所内	
(32) 優先日	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			神奈川県厚木市長谷398番地	株式会社
	日本国(JP)		半導体エネルギー研究所内	
(31) 優先権主張番号	特願2013-45127 (P2013-45127)	(72) 発明者	安部 寬太	
(32) 優先日	平成25年3月7日(2013.3.7)		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	株式会社
			半導体エネルギー研究所内	
			最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】発光層用材料

(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、Ar¹及びAr²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、Ar³は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。



【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、

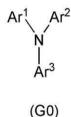
前記第1の有機化合物は、式(G0)で表される化合物であり、

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、Ar¹及びAr²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、Ar³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、

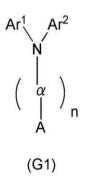
前記第1の有機化合物は、式(G1)で表される化合物であり、

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。

【化2】



(式(G1)中、Ar¹及びAr²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

20

30

(3)

(G2)

(式(G2)中、Ar¹及びAr²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、R¹~R⁴及びR¹¹~R¹⁷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、Ar⁴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】

Ar¹ Ar² R^4 R^4 R^1 R^2 R^{17} R^{16} R^{12} R^{25} R^{24} R^{23} R^{22} R^{21} R^{15} R^{14} R^{3}

40

50

10

20

30

(式(G3)中、Ar 1 及びAr 2 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、 $R^1 \sim R^4$ 、 $R^{1-1} \sim R^{1-7}$ 及び $R^{2-1} \sim R^{2-5}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数 $1 \sim 100$ アルキル基、無置換もしくは炭素数 $1 \sim 100$ 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 $1 \sim 100$ 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Ar¹及び前記Ar²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であり、

ホストとしての機能を有する、発光層用材料。

【化5】



(G0)

(式(G0)中、Ar¹及びAr²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、Ar³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。

10

20

30

$$Ar^{1}$$
 Ar^{2}
 $\begin{pmatrix} \alpha \\ A \end{pmatrix}$
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}
 Ar^{2}

(G1) 10

(式(G1)中、Ar¹及びAr²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。)

(5)

【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】

(G2)

(式(G2)中、Ar¹及びAr²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、R¹~R⁴及びR¹¹~R¹7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、Ar⁴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を表す。)

【請求項10】

20

30

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】

Ar¹ Ar²

$$R^4$$
 R^3
 R^2
 R^{17}
 R^{16}
 R^{25}
 R^{25}
 R^{24}
 R^{23}
 R^{22}
 R^{21}
 R^{15}
 R^{14}
 R^{23}
 R^{22}

(G3)

(式(G3)中、Ar 1 及びAr 2 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 1 ~ R 4 、R 1 1 ~ R 1 7 及び R 2 1 ~ R 2 5 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 のアルキル基が 1 以上置換したフェニル基を表す。)

【請求項11】

請求項7乃至請求項10のいずれか一において、

前記 $A r^1$ 及び前記 $A r^2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の 2 - 7 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 - 7 ル基、又はビフェニル - 4 - 7 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のいずれか一において、

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】

[0001]

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】

[0002]

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。

[0003]

50

10

20

30

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。

[00005]

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】

[0009]

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】

[0 0 1 3]

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

10

20

30

40

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(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200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】



(G0)

[0016]

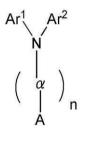
一般式(G0)中、Ar¹及びAr²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、Ar³は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

[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200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】



(G1)

[0019]

一般式(G1)中、Ar¹及びAr²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200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]

10

20

30

(9)

(G2)

[0022]

一般式(G 2)中、 A r 1 及び A r 2 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 1 ~ R 4 及び R 1 1 ~ R 1 7 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 のアルキル基が 1 以上置換したビフェニル基を表し、 A r 4 は、炭素数 1 ~ 1 0 のアルキル基、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、又は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200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】

Ar¹ Ar² N R⁴ R¹ R³ R² R¹⁷ R¹¹ R¹⁶ R¹² R²⁵ N R¹³ R²⁴ R²¹ R¹⁵ R¹⁴ (G3)

[0025]

ー般式(G3)中、Ar 1 及びAr 2 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 1 ~ R 4 、R 1 1 ~ R 1 7 、及び R 2 1 ~ R 2 5 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(G 0) 乃至一般式(G 3) 中、A r ¹ 及びA r ² 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]

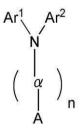
一般式(G0)中、Ar¹及びAr²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、Ar³は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

[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200以下であることが好ましい。

[0031]

【化6】



(G1)

[0032]

一般式(G1)中、Ar¹及びAr²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。

[0033]

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。

10

20

30

20

30

40

50

【0034】 【化7】

(G2)

[0035]

一般式(G 2)中、 A r 1 及び A r 2 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 1 ~ R 4 及び R 1 1 ~ R 1 7 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 のアルキル基が 1 以上置換したビフェニル基を表し、 A r 4 は、炭素数 1 ~ 1 0 のアルキル基、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を表す。

[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】

Ar¹ Ar²

N

R⁴

R³

R¹

R¹⁶

R¹⁶

R¹⁶

R¹²

R²⁵

R²⁴

R²¹

R¹⁵

R¹³

R²³

R²¹

R¹⁵

R¹⁴

[0038]

ー般式(G3)中、Ar 1 及びAr 2 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 1 ~ R 4 、R 1 1 ~ R 1 7 、及び R 2 1 ~ R 2 5 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 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。

[0040]

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。

[0041]

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。

[0043]

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 Carrier 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。

【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。
- 【図9】実施例1の発光素子の電圧-輝度特性を示す図。

10

20

30

00

40

- 【 図 1 0 】 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。
- 【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。
- 【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 - 9 H - フルオレン - 2 - ア ミン(略称:PCBBiF)の¹ 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 [9 H - フルオレン] - 2 アミン(略称: PCBBiSF)の¹ H NMRチャートを示す図。
- 【 図 2 5 】 P C B B i S F 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 2 6 】 P C B B i S F 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。
- 【 図 3 5 】 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 4 1 】 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】
- [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。

[0050]

10

20

30

40

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203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205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、EL層203に第1の電極201側から正孔が注入され、第2の電極205側から電子が注入される。注入された電子と正孔はEL層203において再結合し、EL層203に含まれる発光物質が発光する。

[0 0 5 3]

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 3 0 3 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]

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200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。

[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る。

[0058]

以下では、発光層 3 0 3 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 5 0 0 以上 2 0 0 0 以下である。

[0060]

20

10

30

【化9】

(G0)

[0061]

一般式(G0)中、Ar¹及びAr²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、Ar³は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

[0062]

一般式(G 0)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 ~ 1 0 のアルキル基、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 ~ 1 0 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。これらの置換基であれば、一般式(G 0)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、 A r ³ としては、 置換もしくは無置換の(9 H - 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 - 9 H - 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 - 9 H - 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 - 9 H - 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 A r ³ 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 ~ 1 0 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303に含まれる第1の有機化合物としては、下記一般式(G1)で表される化合物が好ましい。

[0065]

10

20

30

20

40

【化10】

$$Ar^{1}$$
 Ar^{2}
 $\begin{pmatrix} N \\ \alpha \\ A \end{pmatrix}$
 r
(G1)

[0066]

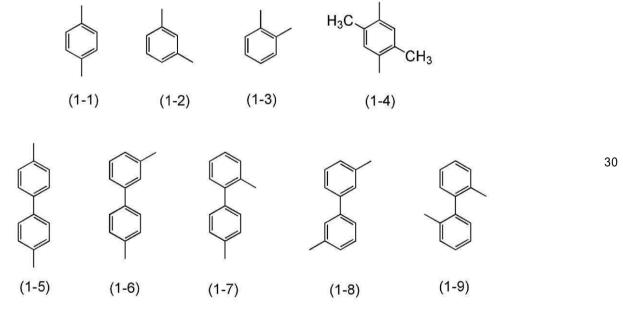
一般式(G1)中、Ar¹及びAr²は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、 は、置換もしくは無置換のフェニレン基、又は置換もしくは無置換のビフェニルジイル基を表し、nは、0又は1を表し、Aは、置換又は無置換の3・カルバゾリル基を表す。

[0067]

一般式(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303に含まれる第1の有機化合物としては、下記一般式(G2)で表される化合物がより好ましい。

[0 0 7 0]

20

30

50

【化12】

(G2)

[0071]

一般式(G 2)中、 A r 1 及び A r 2 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 1 ~ R 4 及び R 1 1 ~ R 1 7 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 のアルキル基が 1 以上置換したビフェニル基を表し、 A r 4 は、炭素数 1 ~ 1 0 のアルキル基、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、又は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を表す。

[0 0 7 2]

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】

 R^{4} R^{4} R^{1} R^{2} R^{17} R^{16} R^{12} R^{25} R^{24} R^{21} R^{15} R^{14} R^{10} R^{23} R^{22} R^{21} R^{15} R^{14} R^{15} R^{14} R^{15}

[0074]

一般式(G3)中、Ar 1 及びAr 2 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 1 ~ R 4 、R 1 1 ~ R 1 7 及び R 2 1 ~ R 2 5 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 ~ 1 0 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 ~ 1 0 のアルキル基が 1 以上置換し

たビフェニル基を表す。

[0 0 7 5]

A r ¹ 及び A r ² 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。

[0076]

10

【 0 0 7 7 】 【化 1 4 】 20

(2-17)

[0078]

(2-15)

(2-16)

一般式(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(142)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.

[0 0 7 9]

【化15】

[0080]

【化16】

[0 0 8 1] 40

【化17】

[0 0 8 2]

【化18】

[0 0 8 3]

【化19】

[0 0 8 4]

【化20】

[0085]

[0 0 8 6]

【化22】

[0 0 8 7]

【化23】

[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]

20

30

40

50

アルミニウム(I I I) (略称: B A l q)、ビス(8-キノリノラト) 亜鉛(I I) (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) ₂) 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 - ブチルフェニル) - 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] - 9 H -カルバゾール(略称: CO11)、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:mDBTBIm‐II)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: 2 mDBTPDBa-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: 7 m D B T P D B q - I I) 、 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: 2 m D B T B P D B q - I I)、2 - [3 ' - (9 H - 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 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 , 6 m D 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 - (9 H - 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: B P 4 m P y) 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。

[0090]

燐光性化合物

発光層 3 0 3 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、 4 4 0 n m ~ 5 2 0 n m 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) - 4 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 3 - イル - N 2] フェニル - C } イリジウム(III)(略称:[Ir(mppt z - d m p) 3])、トリス (5 - メチル - 3 , 4 - ジフェニル - 4 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾラト)イリジウム(III)(略称:[Ir(Mptz) 3])、トリス [4 - (3 - ピフェニル) - 5 - イソプロピル - 3 - フェニル - 4 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾラト] イリジウム(III)(略称:[Ir(iprptz - 3 b) 3])のような 4 H - 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 - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾラト] イリジウム(III)(略称:[Ir(Mptz 1 - Mptz 1 - Mp) 3])、トリス(1 - メチル - 5 - フェニル - 3 - プロピル - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム(1 II)(略称:[Ir(1 Frpmi) 3])、ト 5 - フェニル - 1 H - イミダゾール] イリジウム(1 II)(1 日 「 1 Fpmi) 3])、ト

20

30

40

50

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)₃])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,C²]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,C²]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,C² 】イリジウム(III)ピコリナート(略称:[Ir(CF₃ppy)₂(pic)])、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C²]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)₃])、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 (t B u p p m) 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(tBuppm)っ(acac)]) 、(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) ₂ (a c a c)]) 、 (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(I I I) (略称: [I r (m p m ppm) ₂ (acac)])、(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 ^{2 '}) イリジウム (I I I) (略称: [I r (p チルアセトナート(略称: [Ir (ppy) 2 (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), (a c a c)])、トリス(ベンゾ [h] キノリナト)イリジウム(III)(略称: [Ir (bzq)₃])、トリス(2-フェニルキノリナト-N,C^{2'})イリジウム(III) (略称: [I r (p q) ₃])、ビス (2 - フェニルキノリナト - N , C ^{2 '}) イリジ ウム(III)アセチルアセトナート(略称: $[Ir(pq)_2(acac)]$)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) $_2$ (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) $_2$ (dpm)])、ビス[4,6-ジ(ナフタ

レン・1・イル)ピリミジナトヿ(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称 : [Ir (d 1 n p m) ₂ (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)っ(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(tppr) (dpm)])、(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 ^{2 '}) イリジウム(III) (略称: [Ir (pi セチルアセトナート(略称: [Ir (p i q) , (a c a c)]) 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)₃(Phen)])、トリス [1 - (2 - テノイル) - 3 , 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) ₃ (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。

[0096]

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203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。

[0097]

図 1 (C)に示す発光素子は、第 1 の電極 2 0 1 及び第 2 の電極 2 0 5 の間に E L 層 2 0 3 を有し、さらに、 E L 層 2 0 3 及び第 2 の電極 2 0 5 の間に、中間層 2 0 7 を有する。

[0098]

10

20

30

40

20

30

40

50

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308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203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(Lowest Unoccupied Molecular Orbital、最低空分子軌道)準位に注入される。

[0100]

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防ぐことができる。

[0101]

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203a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

[0102]

EL層203(m)とEL層203(m + 1)の間に設けられた中間層207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、中間層207において正孔と電子が発生し、正孔は第2の電極205側に設けられたEL層203(m + 1)へ移動し、電子は第1の電極201側に設けられたEL層203(m + 1)へ移動し、電子は第1の電極201側に設けられたEL層203(m)へ移動する。EL層203(m + 1)に注入された正孔は、第2の電極205側から注入された電子と再結合し、当該EL層203(m + 1)に含まれる発光物質が発光する。また、EL層203(m)に注入された電子は、第1の電極201側から注入された正孔と再結合し、当該EL層203(m)に含まれる発光物質が発光する。よって、中間層207において発生した正孔と電子は、それぞれ異なるEL層において発光に至る。

[0103]

なお、EL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、EL層同士を接して設けることができる。例えば、EL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EL層を設けることができる。

[0104]

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

の E L 層の発光色と第 2 の E L 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 E L 層を有する発光素子の場合でも同様である。

[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。

[0106]

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。

[0107]

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(4.0eV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。

[0109]

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。

[0 1 1 2]

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

20

30

40

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。

[0115]

正孔注入層301

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、タンダステン酸化物、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。

[0117]

また、フタロシアニン(略称: H_2 P C) 、銅(I 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。

[0118]

[0119]

また、ポリ(N‐ビニルカルバゾール)(略称:PVK)、ポリ(4‐ビニルトリフェニルアミン)(略称:PVTPA)、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:PTPDMA)、ポリ[N,N'‐ビス(4‐ブチルフェニル)・N,N'‐ビス(フェニル)ベンジジン](略称:Poly‐TPD)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)(PEDOT/PSS)、ポリアニリン/ポリ(スチレンスルホン酸)(PAni/PSS)等の酸を添加した高分子化合物を用いることができる。

[0120]

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。

[0121]

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、10⁶cm²/Vs以

10

20

30

40

20

30

40

50

上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。

[0122]

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(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。

(34)

[0123]

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:T P D)、 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:B P A F L P)、 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:D F L D P B i)、 4 , 4 ' - ビス [N - (スピロ - 9 , 9 ' - ビフルオレン - 2 - イル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル(略称:B S P B)等の芳香族アミン化合物を用いることができる。

[0124]

また、 4 , 4 ' - ジ(N - カルバゾリル)ビフェニル(略称: C B P)、 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 - (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: P C z P A)等のカルバゾール誘導体を用いることができる。

[0125]

また、 2 - tert - プチル - 9 , 1 0 - 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 - 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、特に、10^{・6}cm²/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。

[0 1 2 9]

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:Ala)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(I II)(略称:Alma₃)等の金属錯体を用いることができる。

[0131]

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 - ブチルフェニル) - 4 - (4 - エチルフェニル) - 5 - (4 - ビ

フェニリル) - 1 , 2 , 4 - トリアゾール(略称: p - E t T A Z) 、 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: B z O s)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。

[0 1 3 4]

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、Al q 中にマグネシウム(Mg)を含有させることで電子注入層305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。

[0 1 3 6]

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、10⁶ cm² / 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-BuDNA、DNA、DPAnth等の芳香族炭化水素化合物、PVK、PVTPA等の高分子化

10

20

30

40

20

30

40

50

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_4 - T C N Q)、クロラニル等のハロゲン化合物、ピラジノ[2 , 3 - f] [1 , 1 0] フェナントロリン - 2 , 3 - ジカルボニトリル(略称: P P D N)、ジピラジノ[2 , 3 - f : 2 ' , 3 ' - h] キノキサリン - 2 , 3 , 6 , 7 , 1 0 , 1 1 - へキサカルボニトリル(略称: H A T - C N)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]

電子リレー層307

電子リレー層 3 0 7 では、電荷発生領域 3 0 8 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(Phthalocyanine tin(II) complex)、ZnPc(Phthalocyanine zinc complex)、CoPc(Cobalt(II)phthalocyanine, -form)、FePc(Phthalocyanine Iron)、PhO-VOPc(Vanadyl 2,9,16,23-tetraphenoxy-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。

[0147]

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)、SnOPc(Phthalocyanine tin(IV) oxide complex)、TiOPc(Phthalocyanine titanium oxide complex)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PhO-VOPc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]

[0150]

また、 7 , 7 , 8 , 8 - テトラシアノキノジメタン(略称: T C N Q) 、 1 , 4 , 5 , 8 - ナフタレンテトラカルボン酸二無水物(略称: N T C D A) 、 \mathcal{N} - 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_{16} C u P c) 、 N , 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: N T C D I - C 8 F) 、 3 , 4 , 4 , 5 , 5 , 5 , 5 , 7 , 7 - ビス(ジシアノメチレン) - 5 , 5 , 7 , 7 - ジレドロ - 7 , 7 , 7 , 7 , 7 , 7 , 7 , 8 , 8 - 8 , 8 - 8 , 8 - 8

[0151]

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 E L 層 2 0 3 及び中間層 2 0 7 を構成する層は、それぞれ、蒸着法(真空蒸着法を含む)、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。

[0 1 5 5]

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

20

30

40

[0157]

図 2 (A) に示す発光素子は、第 1 の電極 2 0 1 及び第 2 の電極 2 0 5 の間に E L 層 2 0 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 2 1 3 に、第 1 の有機化合物 2 2 1、第 2 の有機化合物 2 2 2、及び燐光性化合物 2 2 3 を含む。第 1 の有機化合物 2 2 1 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 2 2 1 の分子量は 5 0 0以上 2 0 0以下であり、第 2 の有機化合物 2 2 2は電子輸送性を有する化合物である

[0159]

燐光性化合物 2 2 3 は、発光層 2 1 3 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 2 2 1 及び第 2 の有機化合物 2 2 2 のうち、発光層 2 1 3 に含まれる割合が多い方を、発光層 2 1 3 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221(又は第2の有機化合物222)のT」準位が燐光性化合物223のT」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(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

[0162]

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ュ準位が燐光性化合物のTュ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カッションが生じてカッションが生化合物のTュ準位を上回るように設計すると、今度はホスト材料として用いた燐光性化合物のTュ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、ホ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。

[0163]

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

[0 1 6 4]

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222)の蛍光スペクトル、第1の有機化合物221(又は第2の有機化合物222)の燐光スペクトル、燐光性化合物223の吸収スペクトル、及び励起錯体の発

10

20

30

40

光スペクトルを表す。

[0166]

例えば、発光層 2 1 3 において、第 1 の有機化合物 2 2 1 の蛍光スペクトル及び第 2 の有機化合物 2 2 2 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 2 2 3 (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 2 2 1 と第 2 の有機化合物 2 2 2 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))。

[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 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 2 2 3 (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 2 2 3 (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。

[0170]

このように、本発明の一態様の発光素子は、発光層 2 1 3 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 2 2 3 (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。

[0 1 7 3]

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221と、第2の有機化合物222のHOMO準位及びLUMO準位は、それぞれ異なる。具体的には、第2の有機化合物222のHOMO準位<第1の有機化

10

20

30

40

20

30

40

50

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、HOMO準位とLUMO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。

[0 1 7 6]

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 2 2 1 及び第 2 の有機化合物 2 2 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形成過程である。

[0179]

一般的には、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 2 2 1 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 2 2 2 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 2 2 2 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

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221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223(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222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0.3eV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。

[0185]

一般的には、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 2 2 3 (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 . 3 e V 以内であることが好ましい。より好ましくは 0 . 2 e V 以内であり、最も好ましいのは 0 . 1 e V 以内である。

[0188]

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 2 3 (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 2 2 3 (ゲスト材料)にエネルギーを移動して、燐光性化合物 2 2 3 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]

10

20

30

20

30

40

50

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)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 4 0 1、封止基板 4 0 5 及び封止材 4 0 7 に囲まれた空間 4 1 5 内に、発光素子 4 0 3 (第 1 の電極 4 2 1、 E L 層 4 2 3 及び第 2 の電極 4 2 5)を備える。発光素子 4 0 3 は、ボトムエミッション構造であり、具体的には、支持基板 4 0 1 上に可視光を透過する第 1 の電極 4 2 1 を有し、第 1 の電極 4 2 1 上に E L 層 4 2 3 を有し、E L 層 4 2 3 上に可視光を反射する第 2 の電極 4 2 5 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 E L 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 E L 素子内、又は有機 E L 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 E L 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 4 0 1 と大気との界面に光取り出し構造 4 1 1 a を有することが好ましい。支持基板 4 0 1 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 4 0 1 の界面に光取り出し構造 4 1 1 a 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403と支持基板401との界面に光取り出し構造411b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423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423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。

[0200]

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。

[0201]

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

[0 2 0 3]

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。

[0205]

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

[0206]

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

10

20

30

40

とができる。平坦化層 4 1 3 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 4 1 3 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。

[0211]

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 5 0 1、封止基板 5 0 5 及び封止材 5 0 7 で形成された空間 5 1 5 に封止されている

[0212]

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。

[0 2 1 3]

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。

[0 2 1 4]

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。

[0215]

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 5 1 7 が設けられる。ここでは、外部入力端子としてFPC 5 0 9 (Fle×ible Printed Circuit)を設ける例を示している。なお、FPC 5 0 9 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 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 C M O S 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 C M O S 回路、 P M O S 回路又は N M O S 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ー体型を示すが、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 5 1 7 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。

[0218]

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

10

20

30

40

20

30

40

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、酸化至化シリコン膜、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。

[0 2 2 1]

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。

[0222]

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。

[0 2 2 3]

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。

[0224]

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503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。

[0225]

また、カラーフィルタ 5 3 3 及びブラックマトリクス 5 3 1 を覆うオーバーコート層 5 3 5 が形成されている。オーバーコート層 5 3 5 は、発光素子 5 0 3 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 5 3 5 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。

[0 2 2 7]

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。

[0228]

(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。

[0229]

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。

[0 2 3 0]

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。

[0 2 3 1]

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7100は、筐体7101に表示部7102が組み込まれている。表示部7102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7102に用いることができる。また、ここでは、スタンド7103により筐体7101を支持した構成を示している。

[0232]

テレビジョン装置 7 1 0 0 の操作は、筐体 7 1 0 1 が備える操作スイッチや、別体のリモコン操作機 7 1 1 1 により行うことができる。リモコン操作機 7 1 1 1 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 7 1 0 2 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 7 1 1 1 に、当該リモコン操作機 7 1 1 1 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 7 1 0 0 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 7 2 0 0 は、本体 7 2 0 1、筐体 7 2 0 2、表示部 7 2 0 3、キーボード 7 2 0 4、外部接続ポート 7 2 0 5、ポインティングデバイス 7 2 0 6 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 7 2 0 3 に用いることにより作製される。

[0 2 3 5]

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7301a及び筐体7301b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7301aには表示部7303aが組み込まれ、筐体7301bには表示部7303b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7307、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

20

30

40

20

30

40

50

、少なくとも表示部7303a、表示部7303b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。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。

[0 2 3 6]

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7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、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。

[0237]

図5(D)に示す携帯電話機7400は、表示部7402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。

[0238]

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 7 4 0 2 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。

[0 2 4 1]

また、画面モードの切り替えは、表示部 7 4 0 2 を触れること、又は筐体 7 4 0 1 の操作ボタン 7 4 0 3 の操作により行われる。また、表示部 7 4 0 2 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。

[0242]

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。

[0243]

表示部 7 4 0 2 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 7 4 0 2 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7500は、筐体7501a、筐体7501b、表示部7502a、表示部7502bを有する。筐体7501aと筐体7501bは、軸部7503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7501a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7500は、本発明の一態様の発光装置を表示部7502a、表示部7502bの両方、又は一方に用いることにより作製される。

[0 2 4 5]

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

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 7 5 0 2 a 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 7 5 0 2 b 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7601、傘7602、可変アーム7603、 支柱7604、台7605、電源7606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7601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。

[0249]

【化24】

[0 2 5 0]

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 1 1 0 0 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 1 1 0 1を形成した。なお、その膜厚は 1 1 0 n m とし、電極面積は 2 m m × 2 m m とした。ここで、第 1 の電極 1 1 0 1 は、発光素子の陽極として機能する電極である。

20

30

40

50

[0252]

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。

[0 2 5 3]

その後、10^{・4} 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^{・4} 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1111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 、正孔輸送層1112を形成した。

[0256]

さらに、 $2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f、h]キノキサリン(略称:<math>2mDBTBPDBq-II)、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBBiF)、及び(アセチルアセトナト)ビス(<math>4,6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dppm)<math>_2$ (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、 $2mDBTBPDBq-II、PCBBiF、及び[Ir(dppm)<math>_2$ (acac)]の重量比は、 $0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:[Ir(dppm)<math>_2$ (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15 n m 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15 n m となるように成膜することで、電子輸送層1114を形成した。

[0 2 5 8]

その後、電子輸送層 1 1 1 4 上に、フッ化リチウム(LiF)を 1 n m の膜厚で蒸着し、電子注入層 1 1 1 5 を形成した。

[0259]

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) $_2$ (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 (d p p

20

30

40

m) $_2$ (acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDB q- II:PCBNBB:[Ir(dppm) $_2$ (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。発光層1113以外は発光素子1と同様に作製した。

[0262]

(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)2(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTBPDBq-II、PCBNBFに[Ir(dppm)2(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBNBF:[Ir(dppm)2(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。発光層1113以外は発光素子1と同様に作製した。

[0 2 6 3]

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 2		DBT3P-II :MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	$\begin{array}{cccc} 2 \text{mDBTBPDBq-II:PCBBiF} \\ : [Ir(dppm)_2(acac)] \\ (=0.8:0.2:0.05) & 40 \text{nm} \\ 2 \text{mDBTBPDBq-II:PCBNBB} \\ : [Ir(dppm)_2(acac)] \\ (=0.8:0.2:0.05) & 40 \text{nm} \\ 2 \text{mDBTBPDBq-II:PCBNBF} \\ : [Ir(dppm)_2(acac)] \\ (=0.8:0.2:0.05) & 40 \text{nm} \\ \end{array}$	2mDBT BPDBq-II 15nm	BPhen 15nm	LiF 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(cd/m²)、縦軸は電流効率(cd/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(cd/m²)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(cd/m²)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/m²付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm²)、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2に示す。

[0267]

20

30

40

50

【表2】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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 2 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 2 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 2 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) $_2$ (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。

[0269]

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であることがわかった。

[0270]

[0271]

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/m²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。

[0272]

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。

[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。

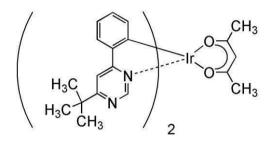
【実施例2】

[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。

[0275]

【化25】



[Ir(tBuppm)₂(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。

[0277]

(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、 2 m D B T B P D B q - I I、 P C B B i F、 Qび(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(I I I I)(略称: $[I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]$)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 F、 Qび $[I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]の重量比が、 <math>0.7:0.3:0.05 (=2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i F : [I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]) となるように調整して成膜した厚さ <math>2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i F : [I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]) となるように調節して成膜した厚さ <math>2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i F : [I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]) となるように調節して成膜した厚さ <math>2 m D B T B P D B q - I I : P C B B i F : [I r (t B u p p m)_2 (a c a c)]$

[0280]

次に、発光層1113上に2mDBTBPDBq - IIを膜厚5nm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1114を形成した。

[0 2 8 1]

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。

[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]

50

10

20

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。

[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	発汐	電子輸	送層	電子 注入層	第2の 電極	
発光				2mDBTBPDBq-II:PCBI	BiF:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]				
素子			PCBBiF 20nm	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
4	ITSO	DBT3P-II :MoOx	52000	20nm	20nm	2mDBT BPDBa-II	BPhen	LiF	Al
比較	110nm	(=4:2) 20nm			NBB:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]	5nm	15nm	1nm	200nm
発光 素子		2011111	PCBNBB 20nm	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
5				20nm	20nm				

[0287]

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(c d / m 2)、縦軸は電流効率(c d / 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(c d / m 2)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(c d / m 2)を、縦軸は、パワー効率(1 m / 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(c d / m 2)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900c d / m 2 のときの電圧(V)、電流密度(V m V

[0289]

10

20

30

【表4】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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

[0290]

表 4 に示す通り、 9 0 0 c d / m ² 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) ₂ (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12万至図15、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12、図14、又は図15の輝度が1000~1000cd/m²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、及びピ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まれる第3級アミンがナフチル基を含むかである。本発明の一態様である発光素子4で用いた正正を有するため、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、高輝度領域である光光素子のため、高輝度現現でできる。そのため、高輝度現現でできる。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たときに、より大きくなる。では、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たときに、より大きくなる。では、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たときに、より大きくなる。では、発光素子3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5000cd/m²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]

10

20

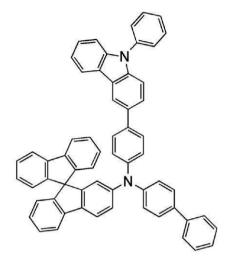
30

40

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。

[0296]

【化26】



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 1 1 1 1 上に、N - (1 , 1 ' - ビフェニル - 4 - イル) - N - [4 - (9 - フェニル - 9 H - 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 2 0 n m の 膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 1 1 1 2 を形成した。

[0300]

さらに、2mDBTBPDBq-II、PCBBiSF、及び[Ir(dppm)2(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、PCBBiSF、及び[Ir(dppm)2(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDBq-II:PCBBiSF:[Ir(dppm)2(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:PCBBiSF:[Ir(dppm)2(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。

[0301]

次に、発光層1113上に2mDBTBPDB q - 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。

[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。

[0303]

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6を作製した。

[0304]

50

10

20

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。

[0305]

(発光素子7)

発光素子7の正孔輸送層1112は、BPAFLPを膜厚20nmとなるように成膜することで形成した。正孔輸送層1112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	発注	電子輸	送層	電子 注入層	第2の 電極	
発光 素子 6	ITSO	DBT3P-II :MoOx	PCBBiSF 20nm	2mDBTBPDBq−II :PCBBiSF: [Ir(dppm)₂(acac)]		2mDBT BPDBq-II	BPhen	LiF	Al
発光	110nm	(=4:2) 20nm	BPAFLP	20.00	[5,(5],11,2,1555]		20nm	1nm	200nm
素子 7			20nm	(=0.7:0.3:0.05) (=0.8:0.2:0.05)					
				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(2 5 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/m²)、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/m²)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/m²)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/m²)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/m²付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm²)、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6に示す。

[0310]

【表6】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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 ² 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 ² 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) ₂ (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

10

20

30

[0312]

図17乃至図20、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。

10

【実施例4】

[0313]

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。

[0314]

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1111、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20nmとした。

20

[0316]

30

[0317]

次に、発光層1113上に2mDBTBPDB q - 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。

40

[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 。

[0321]

(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) $_2$ (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 及び [I r (d p p m) $_2$ (a c a c)] の重量比は、1 : 0 . 0 5 (= 2 m D B T B P D B q - I I : [I r (d p p m) $_2$ (a c a c)])となるように調節した。また、発光層 1 1 1 3 の膜厚は 4 0 n m とした。また、比較発光素子 9 の電子輸送層 1 1 1 4 は、2 m D B T B P D B q - I I を膜厚 1 0 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。

[0322]

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。

[0 3 2 3]

【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) ₂ (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	(=1:	II:[Ir(dppm)₂(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/m²)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1000cd/m²付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm²)、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8に示す。

[0326]

【表8】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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 ² 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 ² 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) ₂ (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、1000cd/m²付近における外部量子効率が31%(電流効率で85cd/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。

[0329]

また、発光素子 8 は、 1 0 0 0 c d / m 2 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

30

50

20

30

40

50

[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/m²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。

[0 3 3 1]

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。

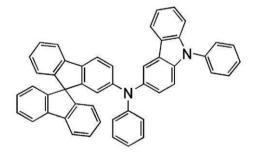
【実施例5】

[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。

[0 3 3 3]

【化27】



PCASF

[0 3 3 4]

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。

[0335]

(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) ₂ (acac)]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 B i F、 及び [I r (d 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 i F: [I r (d 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 i F: [I r (d 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。

(発光素子11)

[0336]

発光素子11では、2 m D B T B P D B q - I I 、N - (4 - ビフェニル) - N - (9 , 9 ' - スピロビ[9 H - フルオレン] - 2 - イル) - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン(略称: P C B i S F)、及び[I r (d p p m) $_2$ (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 i S F 、及び[I r (d p p m) $_2$ (a c a c)]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 i S F : [I r (d 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、0.8:0.2:0.05(= 2 m D B T B P D B q - I I : P C B i S F : [I r (d 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。

[0337]

(比較発光素子12)

比較発光素子12では、2mDBTBPDB q - II、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:PCASF)、及び[Ir(dppm) 2 (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、2mDBTBPDB q - II、PCASF、及び[Ir(dppm) 2 (acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDB q - II:PCASF:[Ir(dppm) 2 (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 q - II:PCASF:[Ir(dppm) 2 (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。

[0338]

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りに示す。

[0339]

【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:P	CBiF:[Ir(dppm) ₂ (acac)]				
素子			l	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	1			
10				20nm	20nm				
発光		DBT3P-II		2mDBTBPDBq-II:PC	BiSF:[Ir(dppm) ₂ (acac)]	2mDBT			
素子	ITSO 110nm	:MoOx (=4:2)	BPAFLP 20nm	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	BPDBq-II	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
11	TIOTHI	20nm	ZOMM	20nm	20nm	20nm	201111	111111	2001111
比較		2011111		2mDBTBPDBq-II:PC	CASF:[Ir(dppm) ₂ (acac)]	1			
発光			l	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	1			
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]

30

10

20

40

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/m²)、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/m²)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/m²)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/m²付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm²)、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】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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

[0343]

表 1 0 に示す通り、 1 0 0 0 c d / m ² 付近の輝度の時の各発光素子のCIE色度座標は(x , y) = (0 . 5 7 , 0 . 4 3)であった。本実施例で示す発光素子は、[Ir(d p p m) ₂ (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 3 4 4]

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。

[0 3 4 5]

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/m²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11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。

10

20

30

40

【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。

[0349]

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。

[0350]

(発光素子13)

発光素子13では、2mDBTBPDB q - II、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)₂(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、2mDBTBPDB q - II、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)₂(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDB q - II:PCBBiF:[Ir(tBuppm)₂(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 q - II:PCBBiF:[Ir(tBuppm)₂(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、2mDBTBPDB q - II、PCBiF、及び[Ir(tBuppm) $_2$ (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、2mDBTBPDB q - II、PCBiF、及び[Ir(tBuppm) $_2$ (acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDB q - II:PCBiF:[Ir(tBuppm) $_2$ (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 q - II:PCBiF:[Ir(tBuppm) $_2$ (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、2mDBTBPDB q - II、PCBiSF、及び[Ir(tBuppm)₂(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、2mDBTBPDB q - II、PCBiSF、及び[Ir(tBuppm)₂(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDB q - II:PCBiSF:[Ir(tBuppm)₂(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 q - II:PCBiSF:[Ir(tBuppm)₂(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、2 m D B T B P D B q - I I 、 P C A S F 、及び [I r (t B u p p m) $_2$ (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 (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 A S F : [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 A S F : [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。

[0354]

50

10

20

30

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2mDBTBPDBg-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。

[0355]

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	
発光				2mDBTBPDBq-II:PCE	BBiF:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]				
素子				(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
13				20nm	20nm				
発光				2mDBTBPDBq-II:PC	BiF:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]				
素子		DBT3P-II		(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
14	ITSO	:MoOx	BPAFLP	20nm	20nm	2mDBT BPDBg-II	BPhen	LiF	Al
発光	110nm	(=4:2)	20nm	2mDBTBPDBq-II:PCE	BiSF:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]	10nm	15nm	1nm	200nm
素子		20nm	,	(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)	1011111			
15				20nm	20nm				
比較				2mDBTBPDBq-II:PC/	ASF:[Ir(tBuppm) ₂ (acac)]				
発光				(=0.7:0.3:0.05)	(=0.8:0.2:0.05)				
素子16				20nm	20nm		-		

[0357]

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 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。

[0358]

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 (c d / m²)、縦軸は電流効率(c d / A)を表す。また、電圧 - 輝度特性を図36に 示す。 図 3 6 において、 横軸は電圧 (V) 、 縦軸は輝度 (c d / m²) 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/m²)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 ²付近のときの電圧(V)、電流密度(m A / c m ²)、C I E 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12に示す。

[0359]

【表12】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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 1 2 に示す通り、 8 6 0 c d / m ² の輝度の時の発光素子 1 3 の C I E 色度座標は (x

10

20

30

40

 , y) = (0.41,0.58)であった。970cd/m²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/m²

 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/m²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)。(acac)]に由来する黄緑色発光が得られたことがわかった。

[0 3 6 1]

図35乃至図37、及び表12から、発光素子13、発光素子14、発光素子15、及び比較発光素子16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5000cd/m²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。

[0363]

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

30

【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 1 1 0 0 上に第 1 の電極 1 1 0 1 、正孔注入層 1 1 1 1、及び正孔輸送層 1 1 1 2 を作製した。

[0369]

次に、 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)、 P C B B i F 、及び [I r (t B u p p m) $_2$ (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、 4 , 6 m C z P 2 P m 、 P C B B i F 、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 (= 4 , 6 m C z P 2 P m : P C B B i F : [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 (= 4 , 6 m C z P 2 P m : P C B B i F : [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。

[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。

[0372]

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。

[0374]

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。

[0 3 7 5]

10

20

30

【表13】

	第1の 電極	正孔 注入層	正孔輸送層	発力	電子輸送層		電子 注入層	第2の 電極
発光 素子 17	ITSO 110nm	100000000000000000000000000000000000000	BPAFLP 20nm	4,6mCzP2Pm:PCBBi			Sevicemen	77870
				(=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/m²)、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/m²)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/m²)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/m²のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm²)、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14に示す。

[0378]

【表14】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm²)	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

[0379]

表 1 4 に示す通り、 7 6 0 c d / m ² の輝度の時の発光素子 1 7 の C I E 色度座標は(x , y) = (0 . 4 1 , 0 . 5 8) であった。 1 本実施例で示す発光素子は、 [I r (t B u p p m) ₂ (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。

[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/m²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。

[0382]

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(1 2 8)に示される N - (1 , 1 ' - ビフェニル - 4 - イル) - N - [4 - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル)フェニル] - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン - 2 - アミン(略称: P C B B i F)の合成方法について説明する。

10

20

30

20

40

50

【 0 3 8 4 】 【 化 2 9 】

[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 (x - 1) に示す。

[0386]

【化30】

[0387]

1 L三口フラスコに、 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 4 5 g(0 . 1 3 m o 1)と、ナトリウム t e r t - ブトキシド 3 6 g(0 . 3 8 m o 1)と、ブロモベンゼン 2 1 g(0 . 1 3 m o 1)と、トルエン 5 0 0 m L 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 1)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) 1 2 m L (5 . 9 m m o 1)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。

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 5 2 g 、収率 9 5 % 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 - 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 (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 - 9 H - フルオレン - 2 - アミン 4 5 g (0 . 1 0 m o 1) を入れ、トルエン 2 2 5 m L 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 2 2 5 m L を加えて、 N - ブロモこはく酸イミド(略称: N B S) 1 8 g (0 . 1 0 m o 1) 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 4 7 g 、収率 8 9 %で得た。

[0392]

< ステップ 3 : P C B B i F の合成 >

ステップ3の合成スキームを(x - 3)に示す。

[0 3 9 3]

20

40

50

【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(8 0 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(8 8 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 . 1 2 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、 1 1 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。

[0398]

得られた淡黄色固体の ¹ H NMRデータを以下に示す。

[0399]

また、 ¹ H NMRチャートを図 2 1 に示す。なお、図 2 1 (B)は、図 2 1 (A)における 6 . 0 0 p p m ~ 1 0 . 0 p p m の範囲を拡大して表したチャートである。

[0400]

また、 P C B B i F のトルエン溶液の吸収スペクトルを図 2 2 (A) に、発光スペクトルを図 2 2 (B) にそれぞれ示す。また、 P C B B i F の薄膜の吸収スペクトルを図 2 3 (A) に、発光スペクトルを図 2 3 (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、 V 5 5 0 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 2 2 及び図 2 3 において横軸は波長(n m)、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 0 n m 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは4 1 5 n m、4 3 6 n m(励起波長3 7 0 n m)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】

H₃C CH₃ N

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

30

【化34】

[0 4 0 5]

3 L 三 ロ フ ラ ス コ に 、 1 ・ ナ フ タ レ ン ボ ロ ン 酸 4 7 g(0 . 2 8 m o 1)と 、 4 ・ ブ ロ モ ヨ ー ド ベ ン ゼ ン 8 2 g(0 . 2 9 m o 1)を 加 え 、 ト ル エ ン 7 5 0 m L と 、 エ タ ノ ー ル 2 5 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 。 こ の 溶 液 に 炭 酸 カ リ ウ ム 水 溶 液 (2 . 0 m o 1 / L) 4 1 5 m L 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 . 2 g(1 4 m m o 1)と 、 酢 酸 パ ラ ジ ウ ム (I I) 0 . 7 g(2 . 8 m m o 1)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 5 0 0 m L 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、 - 1 0 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 5 6 g、収率 7 2 % 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。

[0409]

【化35】

10

20

30

[0410]

20

30

40

1 L 三 ロフラスコに、 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 . 1 4 m o 1) と、ナトリウム t e r t ・ ブトキシド 4 0 g (0 . 4 2 m o 1) 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 m m o 1) を入れ、 1 ・ (4 ・ ブロモフェニル)ナフタレン 4 4 g (0 . 1 5 m o 1) 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(t e r t ・ ブチル)ホスフィン(1 0 w t % へ + サン溶液) 1 4 m L (7 . 0 m m o 1) を加え、この混合物を窒素気流下、 1 1 0 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。

[0 4 1 2]

< 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】

 $\begin{array}{c|c} & & & \\ & & \\ \hline & & \\$

[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 ・ ブ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 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除去した後えて 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。

[0415]

< 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。

[0 4 1 6]

40

50

【化37】

[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]・9H・フルオレン・2・アミン51g(90mmol)と、ラジウム(II)の・4mg(1・8mmol)と、トリ(オルト・トリル)ホスフィンのカム(II)の・4mg(1・8mmol)と、トリ(オルト・トリル)ホスフィンのカム(II)の・4mg(1・8mmol)と、トリール100mLと、ボらりから、カリウム水溶液(2・0mol/L)135mLを加えた。この混合物を窒素気によりりながらりまることで脱気し、脱気後、フラスコ内を窒素温まで冷やしてから、吸引濾過により固体をで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、濃縮してがら、り固体をして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、目的をはした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たところ、目的の白色粉末を濃縮し、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 1 H NMRデータを以下に示す。

¹ H NMR (CDCl₃, 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

30

40

50

、9 H)、7 . 8 5 (d、J = 8 . 0 H z、1 H)、7 . 9 1 (dd、J = 7 . 5 H z、1 . 7 H z、1 H)、8 . 0 7 - 8 . 0 9 (m、1 H)、8 . 1 9 (d、J = 8 . 0 H z、1 H)、8 . 3 7 (d、J = 1 . 7 H z、1 H)。

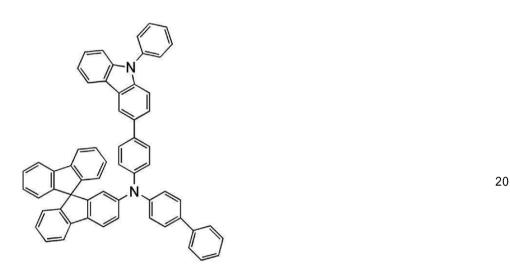
[0 4 2 1]

(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 [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(z - 1)に示す。

[0424]

【化39】

[0425]

 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。

[0 4 2 7]

< 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 [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 (z - 2) に示す。

[0 4 2 8]

【化40】

[0429]

100mL三口フラスコに、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(5.2mmol)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。

[0430]

< ステップ 3 : P C B B i S F の合成 >

ステップ3の合成スキームを(z-3)に示す。

[0 4 3 1]

30

20

10

40

50

【化41】

[0 4 3 2]

200mL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,・スピロビ[9H・フルオレン]・2・アミン2・4g(3・8mmo1)と、9・フェニルカルバゾール・3・ボロン酸1・3g(4・5mmo1)と、トリ(オルト・トリル)ホスフィン57mg(0・19mmo1)と、炭酸カリウム1・2g(9・0mmo1)を入れた。この混合物に、水5mLと、トルエン14mLでガウム8mg(0・038mmo1)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分がした。 記和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然によりにより、漁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い・した。カラムクロマトグラフィーはトルエン: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。得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られたで得た。

PCBBiSF

[0433]

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 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 ¹ H NMRデータを以下に示す。

 1 H NMR (CDCl₃, 500MHz): = 6.67-6.69 (m, 2H),

```
6 . 8 4 ( d 、 J 1 = 7 . 5 H z 、 2 H ) 、 7 . 0 4 - 7 . 1 1 ( m 、 5 H ) 、 7 . 1 3
- 7 . 1 7 (m, 3 H), 7 . 2 8 - 7 . 4 5 (m, 1 2 H), 7 . 4 6 - 7 . 5 3 (m
、5H)、7.57-7.64(m、5H)、7.74-7.77(m、4H)、8.1
7 (d、J1 = 7.5 Hz、1 H)、8.27 (d、J1 = 1.5 Hz、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 . 5 0 p p m ~ 8 . 5 0 p p m 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
                                                           10
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 2 6 ( 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、403 nm(励起波長351 nm)であった。また、薄膜の場合では3
5 7 n m 付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは424 n m (励起波長378 n
m)であった。
【符号の説明】
[ 0 4 3 8 ]
2 0 1
      第1の電極
                                                           20
2 0 3
       E L 層
2 0 3 a
        第1のEL層
2 0 3 b
       第2のEL層
2 0 5
       第2の電極
2 0 7
      中間層
2 1 3
       発光層
2 2 1
      第1の有機化合物
2 2 2
      第2の有機化合物
2 2 3
       燐光性化合物
3 0 1
       正孔注入層
                                                           30
3 0 2
       正孔輸送層
3 0 3
       発光層
3 0 4
       電子輸送層
3 0 5
       電子注入層
3 0 6
       電子注入バッファー層
3 0 7
       電子リレー層
3 0 8
       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
                                                           40
4 0 7
       封止材
4 0 9 a
        第1の端子
4 0 9 b
        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

第1の電極

絶縁層

E L 層

4 1 9

4 2 1

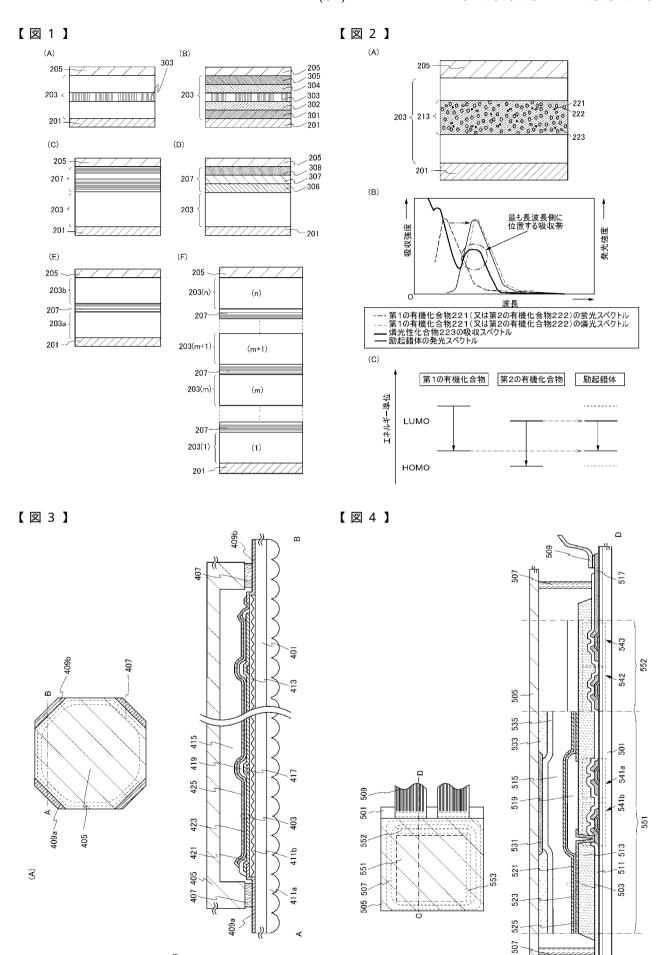
4 2 3

50

```
4 2 5
        第2の電極
5 0 1
        支持基板
5 0 3
        発光素子
5 0 5
        封止基板
5 0 7
        封止材
5 0 9
        FPC
5 1 1
        絶縁層
5 1 3
        絶縁層
5 1 5
        空間
                                                                     10
5 1 7
        配 線
5 1 9
        隔壁
5 2 1
        第1の電極
5 2 3
        E L 層
5 2 5
        第2の電極
5 3 1
        ブラックマトリクス
5 3 3
        カラーフィルタ
5 3 5
        オーバーコート層
5 4 1 a
          トランジスタ
5 4 1 b
          トランジスタ
                                                                     20
5 4 2
        トランジスタ
5 4 3
        トランジスタ
5 5 1
        発光部
5 5 2
        駆動回路部
5 5 3
        駆動回路部
1 1 0 0
         ガラス基板
1 1 0 1
         第1の電極
1 1 0 3
         第2の電極
1 1 1 1
         正孔注入層
1 1 1 2
         正孔輸送層
                                                                     30
1 1 1 3
         発光層
         電子輸送層
1 1 1 4
         電子注入層
1 1 1 5
         テレビジョン装置
7 1 0 0
7 1 0 1
         筐体
7 1 0 2
         表示部
7 1 0 3
         スタンド
          リモコン操作機
7 1 1 1
7 2 0 0
         コンピュータ
7 2 0 1
         本 体
                                                                     40
7 2 0 2
         筐体
7 2 0 3
         表示部
7 2 0 4
         キーボード
7 2 0 5
         外部接続ポート
7 2 0 6
         ポインティングデバイス
         携帯型ゲーム機
7 3 0 0
7 3 0 1 a
           筐体
7 3 0 1 b
           筐体
7 3 0 2
         連結部
7 3 0 3 a
           表示部
                                                                     50
7 3 0 3 b
           表示部
```

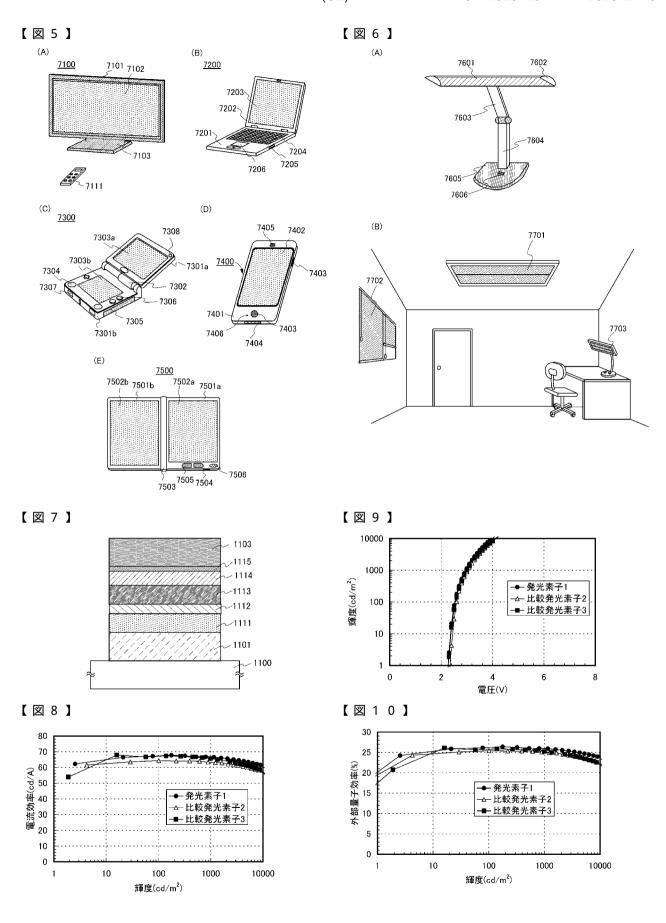
7 3 0 4	スピーカ部	
7 3 0 5	記録媒体挿入部	
7 3 0 6	操 作 キ ー	
7 3 0 7	接続端子	
7 3 0 8	センサ	
7 4 0 0	携帯電話機	
7 4 0 1	筐体	
7 4 0 2	表示部	
7 4 0 3	操 作 ボ タン	
7 4 0 4	外 部 接 続 ポ ー ト	
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
7 5 0 0	タブレット型端末	
7 5 0 1 a	筐体	
7 5 0 1 b	筐体	
7 5 0 2 a	表示部	
7 5 0 2 b	表示部	
7 5 0 3	軸 部	
7 5 0 4	電源	
7 5 0 5	操 作 キ -	
7 5 0 6	スピーカ	
7 6 0 1	照明部	
7 6 0 2	傘	
7 6 0 3	可変アーム	
7 6 0 4	支 柱	
7 6 0 5	台	
7 6 0 6	電源	
7 7 0 1	照 明 器 具	
7 7 0 2	照 明 器 具	
7 7 0 3	卓上照明器具	

 $\widehat{\mathbf{B}}$



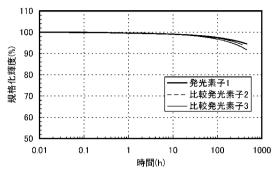
3

<u>@</u>

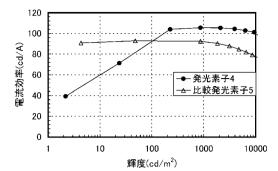


【図11】

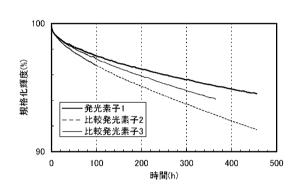
(A)



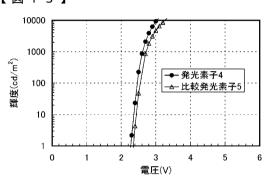
【図12】



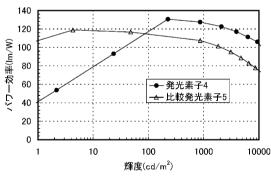
(B)



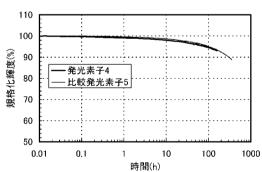
【図13】



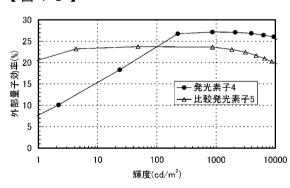
【図14】



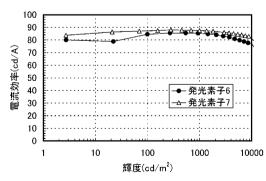
【図16】

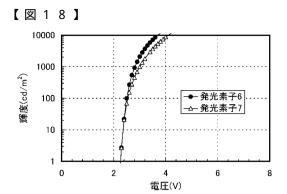


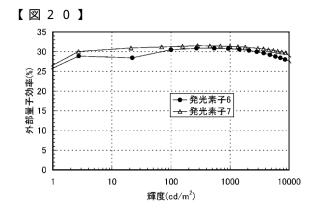
【図15】

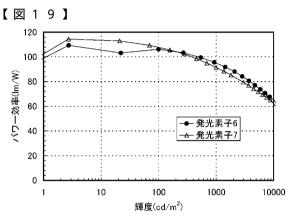


【図17】





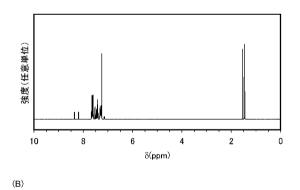


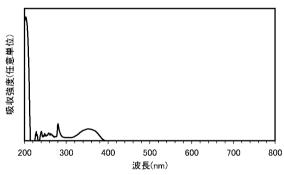


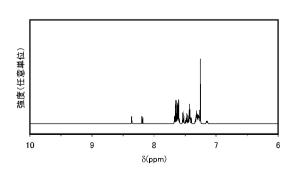


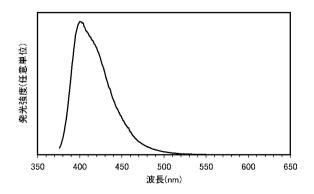


(B)





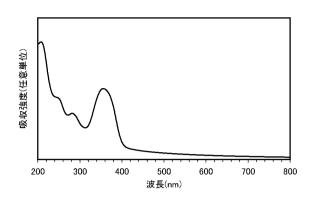




6.5

【図23】

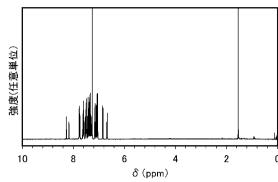
(A)



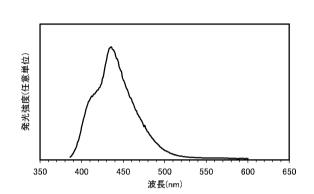
【図24】

(A)

(B)



(B)

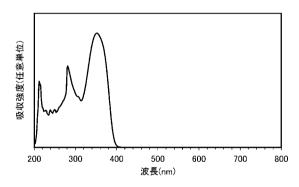


強度(任意単位)

8.5 8 7.5 7 δ (ppm)

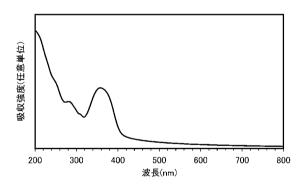
【図25】

(A)

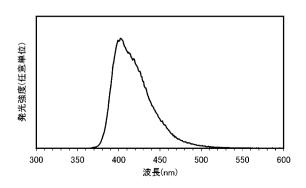


【図26】

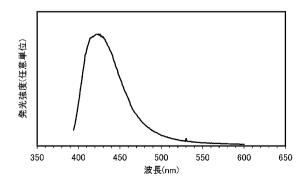
(A)

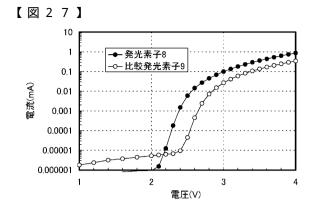


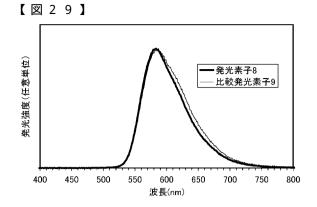
(B)

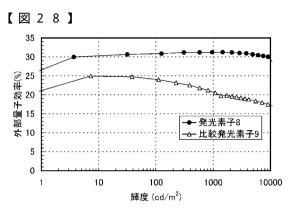


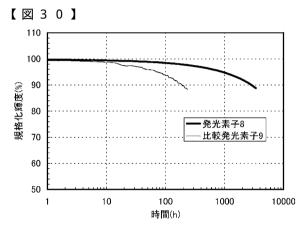
(B)

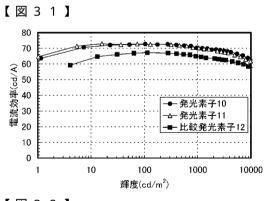


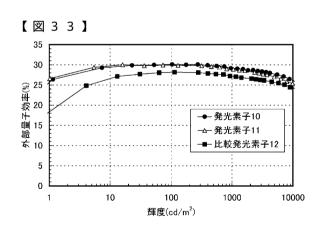


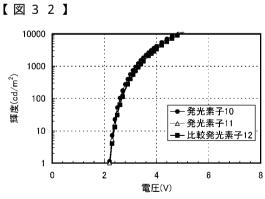


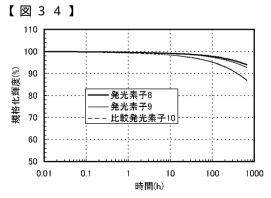


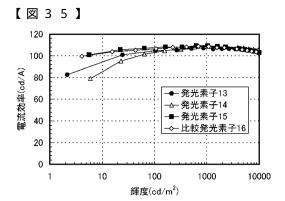


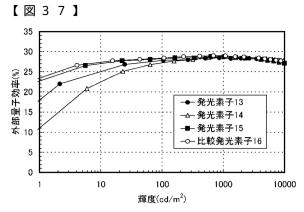


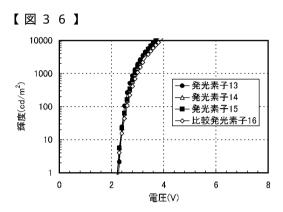


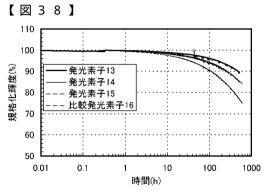


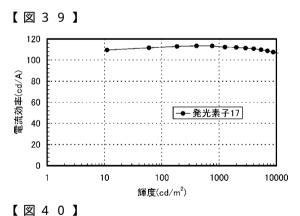


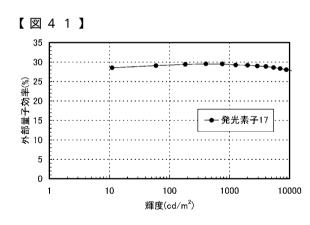


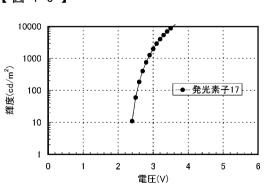


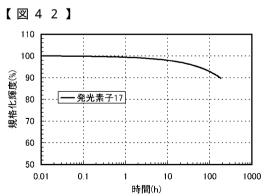












フロントページの続き

(72)発明者 瀬尾 哲史

神奈川県厚木市長谷 3 9 8 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