

(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2019-24115

(P2019-24115A)

(43) 公開日 平成31年2月14日(2019.2.14)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)	
<b>H01L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B	33/22	D	3K107
<b>C07D 209/86</b>	<b>(2006.01)</b>	H05B	33/14	B	4C204
		C07D	209/86	CSP	

審査請求 有 請求項の数 20 O L (全 87 頁)

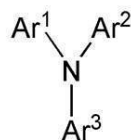
(21) 出願番号	特願2018-197509 (P2018-197509)	(71) 出願人	000153878
(22) 出願日	平成30年10月19日 (2018.10.19)		株式会社半導体エネルギー研究所
(62) 分割の表示	特願2017-247440 (P2017-247440)		神奈川県厚木市長谷398番地
	の分割	(72) 発明者	濱田 孝夫
原出願日	平成25年7月29日 (2013.7.29)		神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2012-172944 (P2012-172944)		半導体エネルギー研究所内
(32) 優先日	平成24年8月3日 (2012.8.3)	(72) 発明者	瀬尾 広美
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		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2013-45127 (P2013-45127)	(72) 発明者	安部 寛太
(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	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】 発光装置および発光装置用化合物

(57) 【要約】

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

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



(G0)

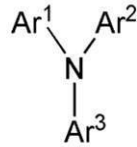
【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

陽極と、陰極と、励起錯体を形成する 2 種の有機化合物を含む発光層と、を備え、  
前記発光層は、前記陽極と前記陰極との間に位置し、  
前記陽極と前記発光層との間に、式 (G0) で表される化合物を含む発光装置。

## 【化 1】



10

(G0)

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

## 【請求項 2】

前記式 (G0) で表される化合物を含む層は、前記発光層と接する、  
請求項 1 に記載の発光装置。

20

## 【請求項 3】

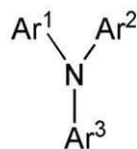
陽極と、陰極と、励起錯体を形成する 2 種の有機化合物を含む発光層と、アクセプター性物質を含む領域と、を備え、

前記発光層は、前記陽極と前記陰極との間に位置し、

前記アクセプター性物質を含む領域は、前記陽極と前記発光層との間に位置し、

前記発光層とアクセプター性物質を含む領域との間に、式 (G0) で表される化合物を含む発光装置。

## 【化 2】



30

(G0)

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

## 【請求項 4】

40

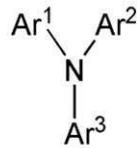
陽極と、陰極と、3 種の化合物を含む発光層と、アクセプター性物質を含む領域と、を備え、

前記発光層は、前記陽極と前記陰極との間に位置し、

前記アクセプター性物質を含む領域は、前記陽極と前記発光層との間に位置し、

前記発光層とアクセプター性物質を含む領域との間に、式 (G0) で表される化合物を含む発光装置。

## 【化 3】



(G0)

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

## 【請求項 5】

前記アクセプター性物質を含む領域は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む領域である、

請求項 3 または 請求項 4 に記載の発光装置。

## 【請求項 6】

前記アクセプター性物質を含む領域は、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している領域である、

請求項 3 または 請求項 4 に記載の発光装置。

## 【請求項 7】

前記アクセプター性物質は、前記正孔輸送性の高い物質に対して質量比で 0.1 以上 4.0 以下の比率で前記アクセプター性物質を含む領域に含まれている、

請求項 5 または 請求項 6 に記載の発光装置。

## 【請求項 8】

前記正孔輸送性の高い物質は、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上の正孔移動度を有する有機化合物である、

請求項 5 乃至 請求項 7 のいずれかーに記載の発光装置。

## 【請求項 9】

前記アクセプター性物質を含む領域が前記陽極と接している、

請求項 3 乃至 請求項 8 のいずれかーに記載の発光装置。

## 【請求項 10】

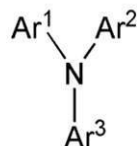
前記式(G0)で表される化合物の分子量は、500 以上 2000 以下である請求項 1 乃至 請求項 9 のいずれかーに記載の発光装置。

## 【請求項 11】

励起錯体を形成する 2 種の有機化合物を含む発光層と陽極との間に用いられる化合物であって、

式(G0)で表される発光装置用化合物。

## 【化 4】



(G0)

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

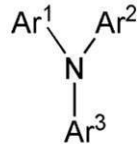
## 【請求項 12】

前記式 (G0) で表される化合物を含む層は、前記発光層と接する、  
請求項 11 に記載の発光装置用化合物。

## 【請求項 13】

励起錯体を形成する 2 種の有機化合物を含む発光層とアクセプター性物質を含む領域との間に用いられる化合物であって、  
式 (G0) で表される発光装置用化合物。

## 【化 5】



10

(G0)

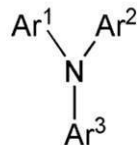
(式 (G0) 中、 $\text{Ar}^1$  及び  $\text{Ar}^2$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のピフェニル基を表し、 $\text{Ar}^3$  は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。)

## 【請求項 14】

3 種の化合物を含む発光層とアクセプター性物質を含む領域との間に用いられる化合物であって、

式 (G0) で表される発光装置用化合物。

## 【化 6】



20

30

(G0)

(式 (G0) 中、 $\text{Ar}^1$  及び  $\text{Ar}^2$  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ピフェニル基を表し、 $\text{Ar}^3$  は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。)

## 【請求項 15】

前記アクセプター性物質を含む領域は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含む領域である、

請求項 13 または請求項 14 に記載の発光装置用化合物。

## 【請求項 16】

前記アクセプター性物質を含む領域は、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している領域である、

請求項 13 または請求項 14 に記載の発光装置用化合物。

## 【請求項 17】

前記アクセプター性物質は、前記正孔輸送性の高い物質に対して質量比で 0.1 以上 4.0 以下の比率で前記アクセプター性物質を含む領域に含まれている、

請求項 15 または請求項 16 に記載の発光装置用化合物。

## 【請求項 18】

前記正孔輸送性の高い物質は、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上の正孔移動度を有する有機化合物である、

40

50

請求項 15 乃至請求項 17 のいずれか一に記載の発光装置用化合物。

【請求項 19】

前記アクセプター性物質を含む領域が前記陽極と接している、

請求項 13 乃至請求項 18 のいずれか一に記載の発光装置用化合物。

【請求項 20】

分子量は、500 以上 2000 以下である請求項 11 乃至請求項 19 のいずれか一に記載の発光装置用化合物。

【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、一对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】

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。

【0005】

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、一对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】

10

20

30

40

50

## 【 0 0 0 9 】

有機 E L 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。

## 【 0 0 1 0 】

また、有機 E L 素子を用いたディスプレイや照明の実用化に向け、有機 E L 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。

## 【 0 0 1 1 】

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。

## 【 0 0 1 2 】

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、一对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 5 0 0 以上 2 0 0 0 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。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。

## 【 0 0 1 4 】

具体的には、本発明の一態様は、一对の電極間に、発光層を有し、発光層は、第 1 の有機化合物、第 2 の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第 1 の有機化合物は、一般式 ( G 0 ) で表される化合物であり、第 1 の有機化合物の分子量は、5 0 0 以上 2 0 0 0 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。

## 【 0 0 1 5 】

## 【 化 1 】



(G0)

## 【 0 0 1 6 】

一般式 ( G 0 ) 中、A r <sup>1</sup> 及び A r <sup>2</sup> は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、A r <sup>3</sup> は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

## 【 0 0 1 7 】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、発光層を有し、発光層は、第 1 の有機化合物、第 2 の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第 1 の有機化合物は、一般式 ( G 1 ) 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、5 0 0 以上 2 0 0 0 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。

## 【 0 0 1 8 】

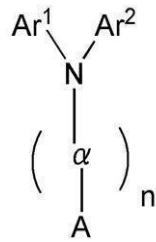
10

20

30

40

## 【化2】



(G1)

10

## 【0019】

一般式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、 $\alpha$ 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。

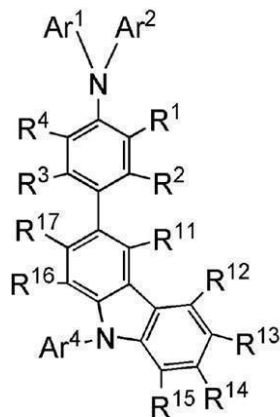
## 【0020】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G2)で表される有機化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であり、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。

20

## 【0021】

## 【化3】



(G2)

30

## 【0022】

一般式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基を表し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したビフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したターフェニル基を表す。

40

## 【0023】

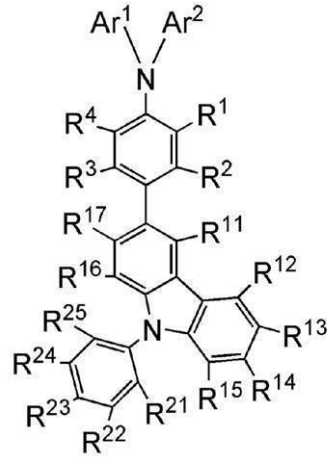
また、本発明の一態様は、一对の電極間に、発光層を有し、発光層は、第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物を含み、第1の有機化合物は、一般式(G3)で

50

表される有機化合物であり、第1の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であり、第2の有機化合物は、電子輸送性を有する化合物である発光素子である。

【0024】

【化4】



(G3)

10

【0025】

一般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、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ピフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>、及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したピフェニル基を表す。

20

【0026】

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

30

【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)

40

【0029】

一般式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のピフェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

【0030】

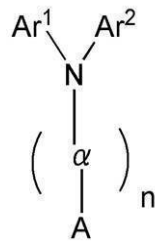
上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G1)で表される有機化合物であり、

50

第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。

【0031】

【化6】



(G1)

10

【0032】

一般式(G1)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のピフェニル基を表し、 $\alpha$ 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ピ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。

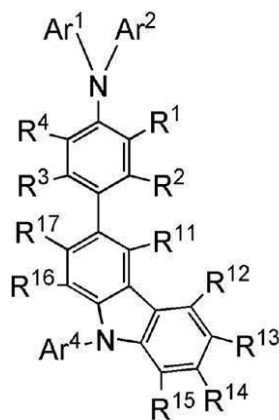
【0033】

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。

20

【0034】

【化7】



(G2)

30

【0035】

一般式(G2)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のピフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>及びR<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したピフェニル基を表し、Ar<sup>4</sup>は、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したピフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したターフェニル基を表す。

40

【0036】

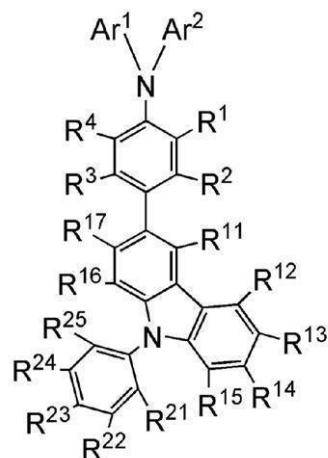
上記本発明の一態様において、発光層と接する正孔輸送層を有し、正孔輸送層は、第3の

50

有機化合物を含み、第3の有機化合物は、一般式(G3)で表される有機化合物であり、第3の有機化合物の分子量は、500以上2000以下であることが好ましい。

【0037】

【化8】



(G3)

10

【0038】

一般式(G3)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、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ピフェニル基を表し、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>、R<sup>11</sup>~R<sup>17</sup>、及びR<sup>21</sup>~R<sup>25</sup>は、それぞれ独立に、水素、炭素数1~10のアルキル基、無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数1~10のアルキル基が1以上置換したピフェニル基を表す。

20

【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(excimer: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。

30

【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、ジアゾール骨格、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。

40

【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

50

た、発光素子にコネクタ、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。

10

【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。

20

【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。

【図10】実施例1の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。

【図11】実施例1の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

【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。

30

【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 - 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: PCB Bi F) の<sup>1</sup>H NMRチャートを示す図。

【図22】PCB Bi 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23】PCB Bi 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24】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: PCB Bi S F) の<sup>1</sup>H NMRチャートを示す図。

40

【図25】PCB Bi 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26】PCB Bi 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。

50

- 【図 3 3】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 3 4】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 3 6】実施例 6 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。  
 【図 3 7】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 3 8】実施例 6 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。  
 【図 3 9】実施例 7 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。  
 【図 4 0】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 4 2】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】

10

## 【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)

20

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】

本実施の形態で例示する発光素子は、一对の電極と、該一对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。

30

## 【0053】

EL 層 203 は、少なくとも発光層 303 を有する。本実施の形態の発光素子は、発光層 303 に、第 1 の有機化合物、第 2 の有機化合物、及び燐光性化合物を含む。

## 【0054】

本実施の形態では、発光物質であるゲスト材料として、燐光性化合物を用いる。また、第 1 の有機化合物及び第 2 の有機化合物のうち、発光層に含まれる割合が多い材料を、該ゲスト材料を分散するホスト材料という。

40

## 【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、又はピフェニレン骨格のいずれかを含む 2 つの置換基と、カルバゾール骨格を含む 1 つの置換基とが、それぞれ窒素原子に直接結合した構造を有する。かつ、該第 1 の有機化合物の分子量は 500 以上 2000 以下である。該第 2 の有機化合物は、電子輸送性を有する化

50

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。

10

【0058】

以下では、発光層303に含まれる第1の有機化合物、第2の有機化合物、及び燐光性化合物として用いることができる材料について、それぞれ詳述する。

【0059】

第1の有機化合物

第1の有機化合物は一般式(G0)で表される化合物であり、第1の有機化合物の分子量は500以上2000以下である。

【0060】

20

【化9】



(G0)

【0061】

一般式(G0)中、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフルオレニル基、置換もしくは無置換のスピロフルオレニル基、又は置換もしくは無置換のビフェニル基を表し、Ar<sup>3</sup>は、カルバゾール骨格を含む置換基を表す。

30

【0062】

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

40

【0063】

また、Ar<sup>3</sup>としては、置換もしくは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル基、置換もしくは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)ビフェニル基、置換もしくは無置換の(9H-カルバゾール-9-イル)ターフェニル基、置換もしくは無置換の(9-アリアル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル基、置換もしくは無置換の(9-アリアル-9H-カルバゾール-3-イル)ビフェニル基、置換もしくは無置換の(9-アリアル-9H-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-アリアル-9H-カルバゾール-3-イル基などが挙げられる。アリア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

50

置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したビフェニル基、無置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したターフェニル基等が挙げられる。なお、上述した  $Ar^3$  が置換基を有する場合、該置換基としては、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、無置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したフェニル基、無置換もしくは炭素数 1 ~ 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。

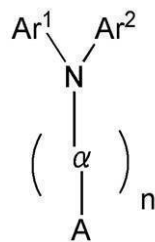
【0064】

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。

10

【0065】

【化10】



20

(G1)

【0066】

一般式 (G1) 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、 $\alpha$  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。

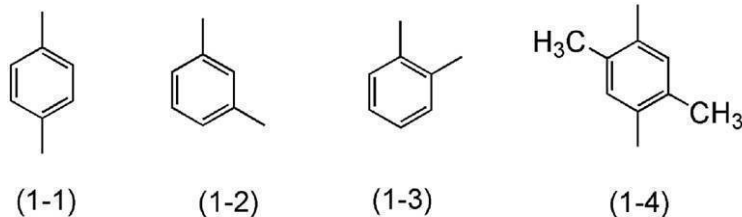
【0067】

一般式 (G1) における  $\alpha$  の具体的な構造の一例を、構造式 (1-1) ~ 構造式 (1-9) に示す。

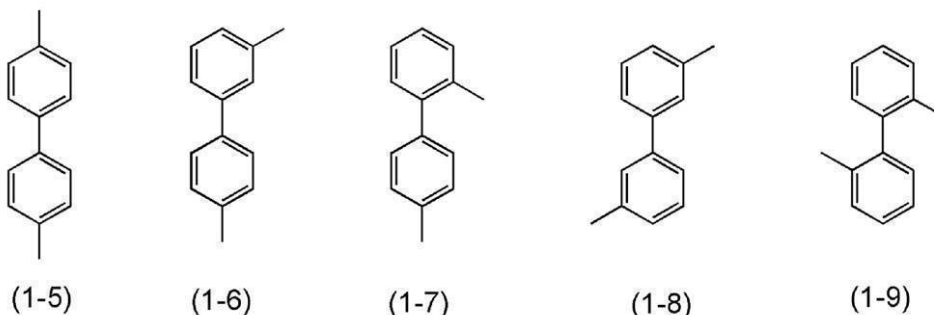
30

【0068】

【化11】



40



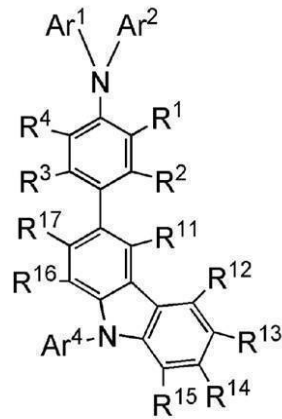
【0069】

50

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。

【0070】

【化12】



(G2)

10

【0071】

一般式 (G2) 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ピフェニル基を表し、 $R^1 \sim R^4$  及び  $R^{11} \sim R^{17}$  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 以上置換したピフェニル基を表し、 $Ar^4$  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 以上置換したピフェニル基、又は無置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したターフェニル基を表す。

20

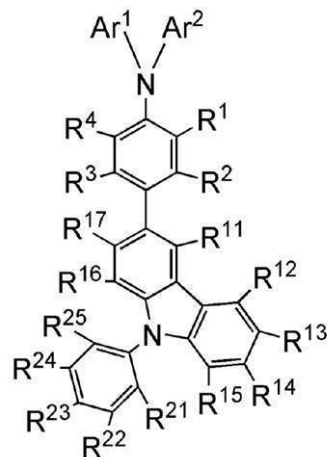
【0072】

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 (G3) で表される化合物が特に好ましい。

30

【0073】

【化13】



(G3)

40

【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ピフ

50

エニル基を表し、 $R^1 \sim R^4$ 、 $R^{11} \sim R^{17}$  及び  $R^{21} \sim R^{25}$  は、それぞれ独立に、水素、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、無置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したフェニル基、又は無置換もしくは炭素数 1 ~ 10 のアルキル基が 1 以上置換したビフェニル基を表す。

【0075】

$Ar^1$  及び  $Ar^2$  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。

10

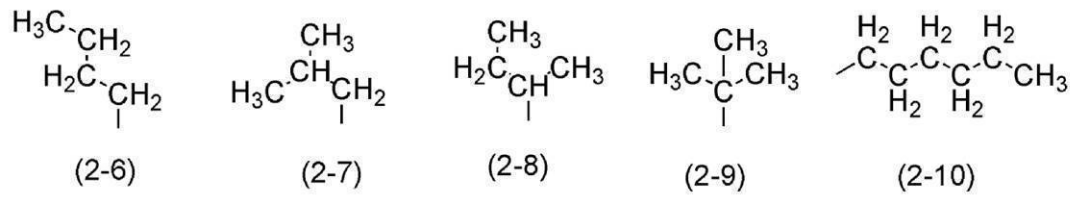
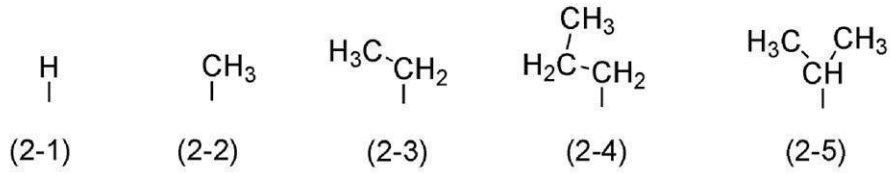
【0076】

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

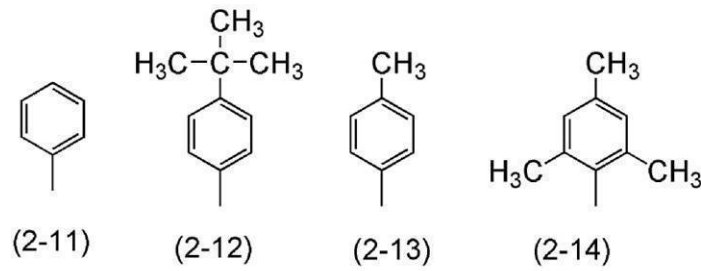
20

【0077】

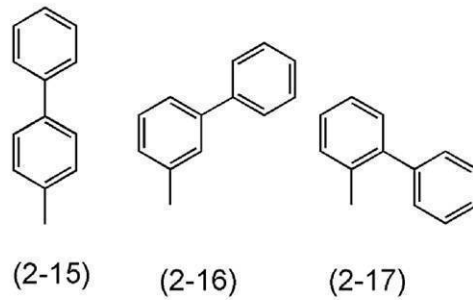
## 【化 1 4】



10



20



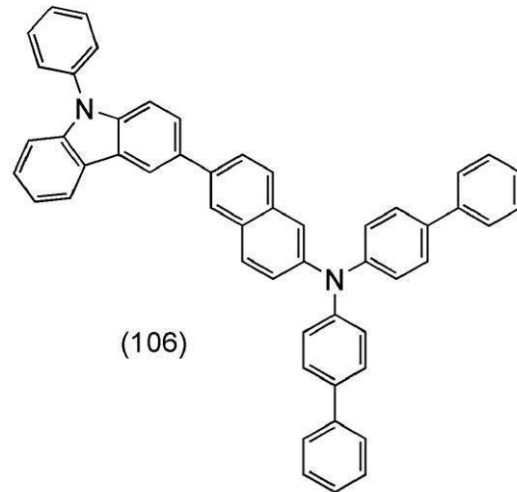
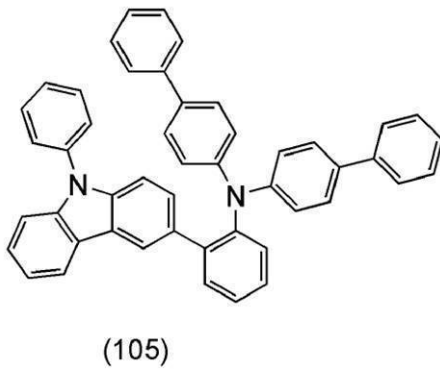
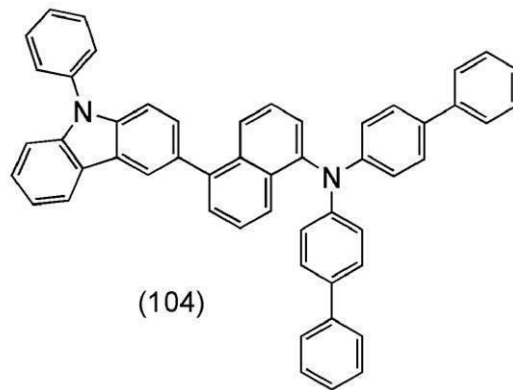
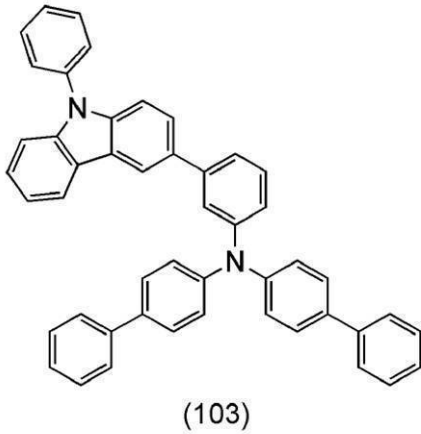
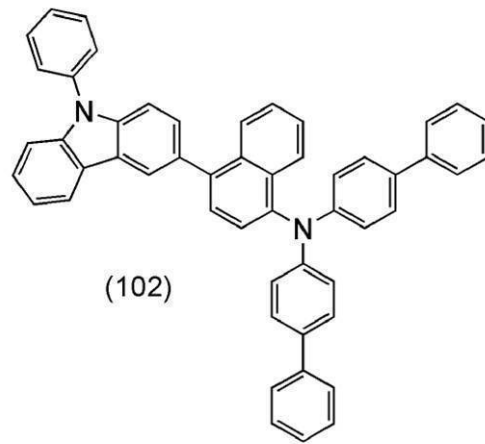
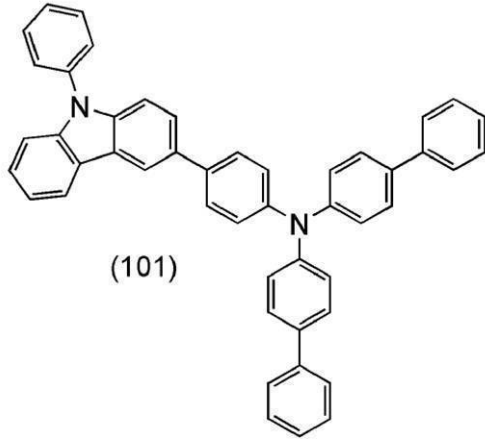
## 【 0 0 7 8 】

30

一般式 ( G 0 ) に示される有機化合物の具体例としては、構造式 ( 1 0 1 ) ~ 構造式 ( 1 4 2 ) 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 1 5】



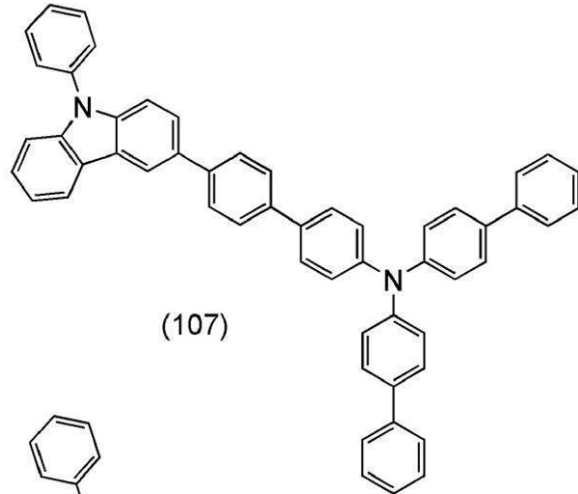
10

20

30

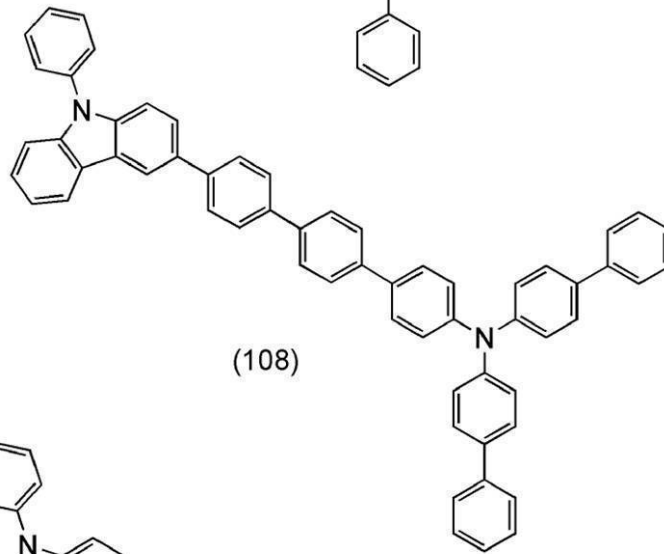
【 0 0 8 0 】

【化 1 6】



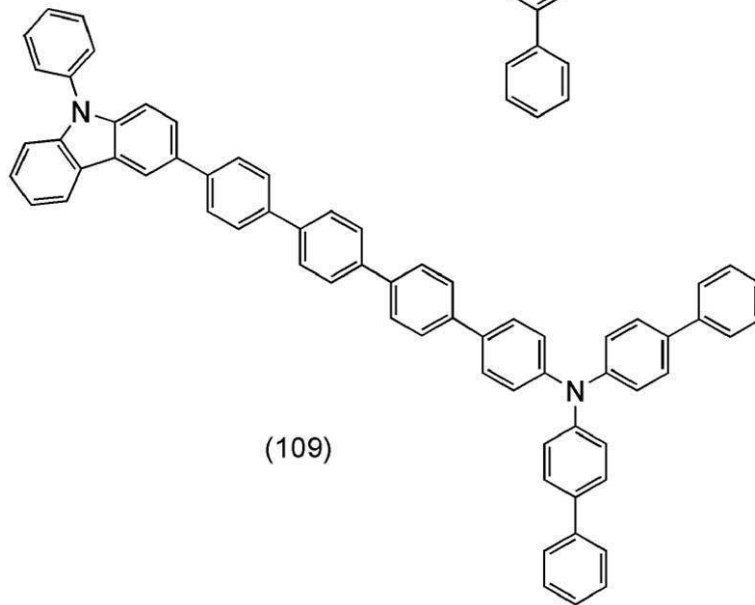
(107)

10



(108)

20



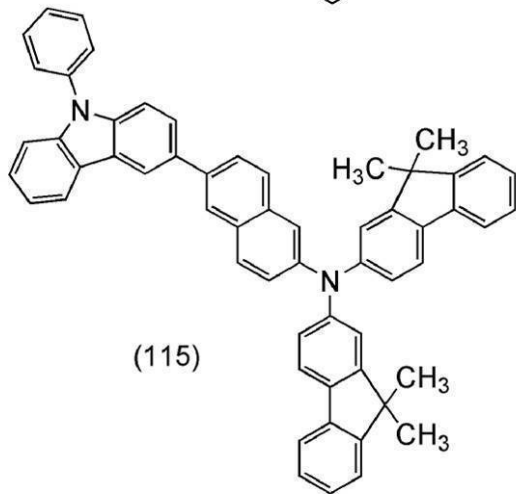
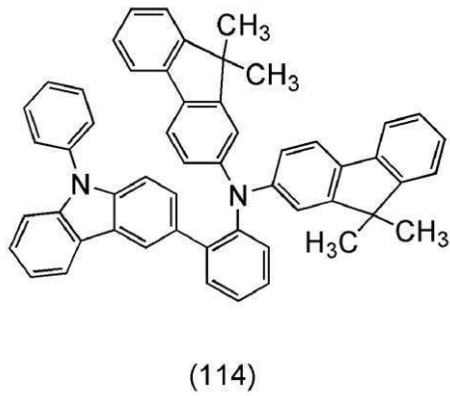
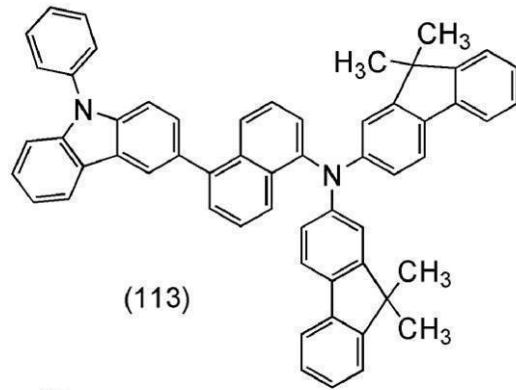
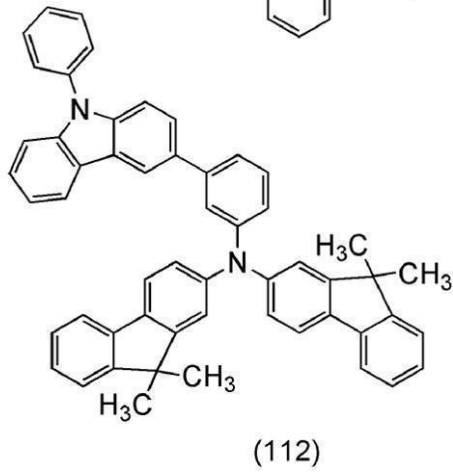
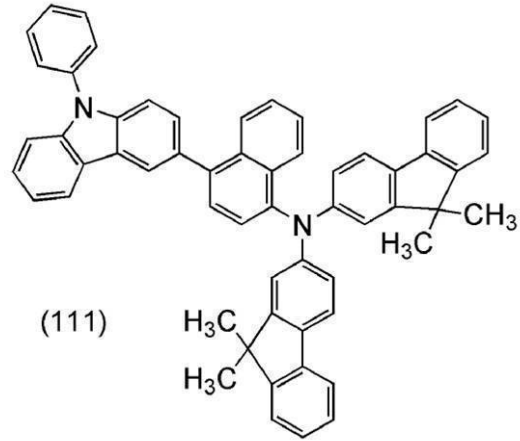
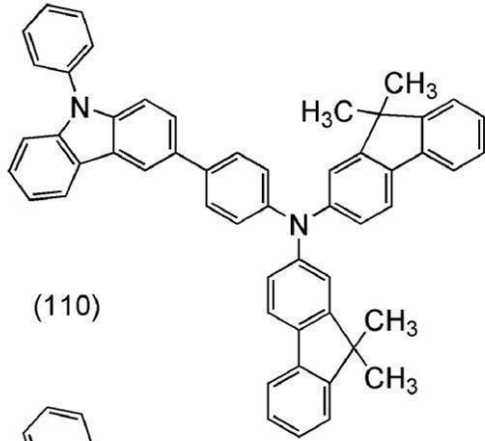
(109)

30

【 0 0 8 1 】

40

【化 1 7】



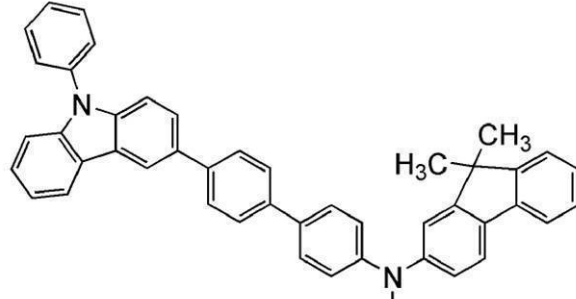
【 0 0 8 2 】

10

20

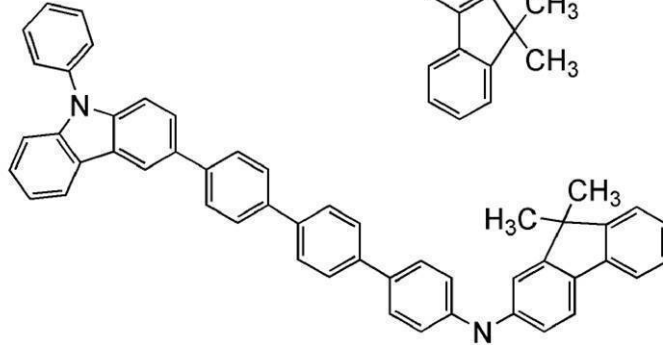
30

【化 1 8】



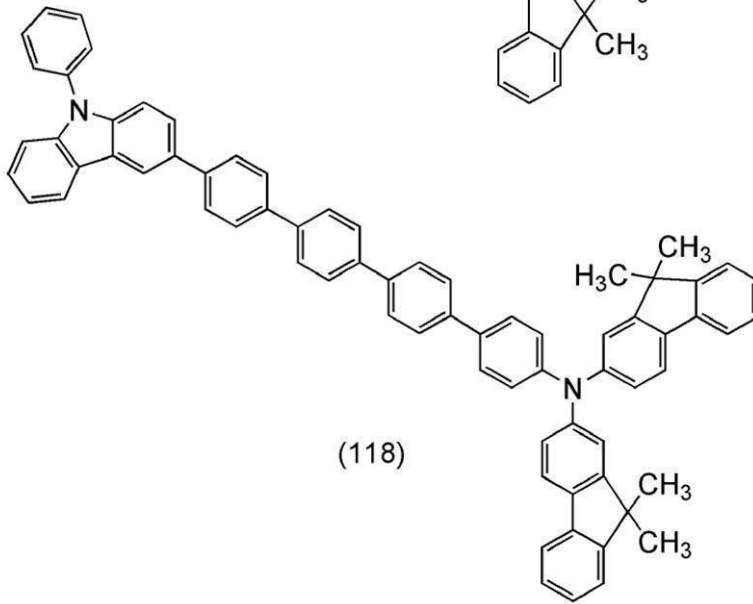
(116)

10



(117)

20

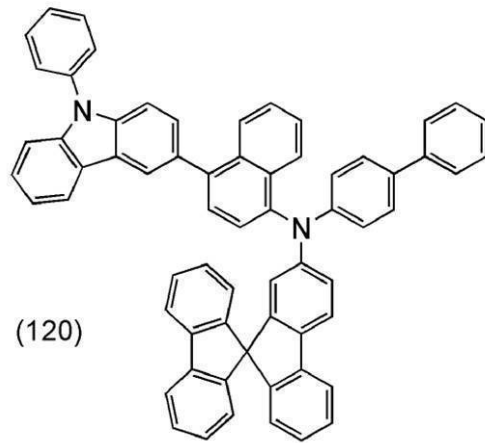
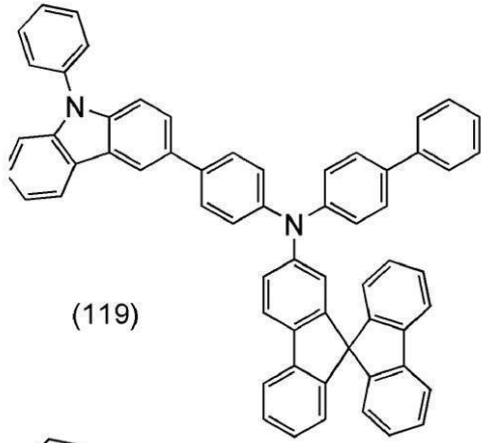


(118)

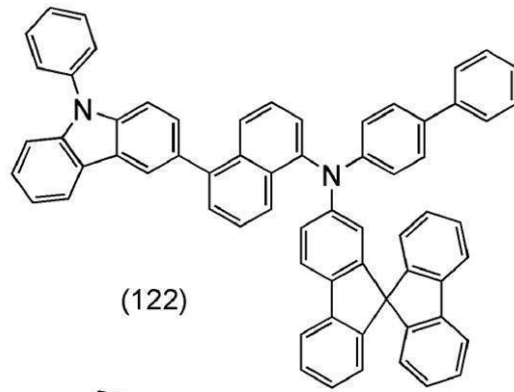
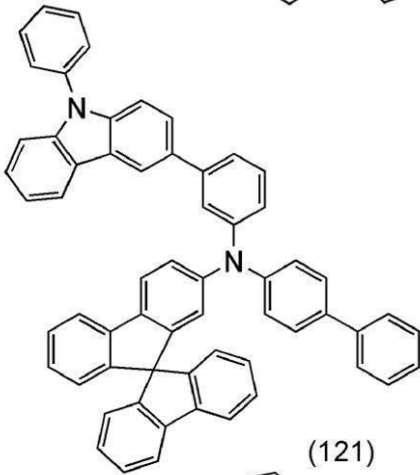
30

【 0 0 8 3 】

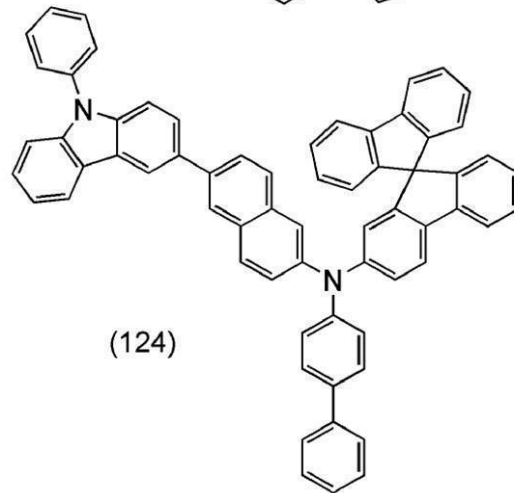
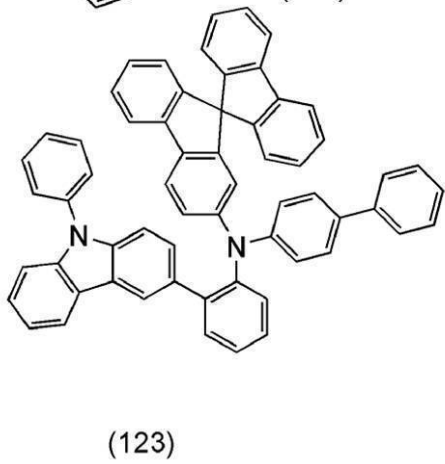
【化 1 9】



10



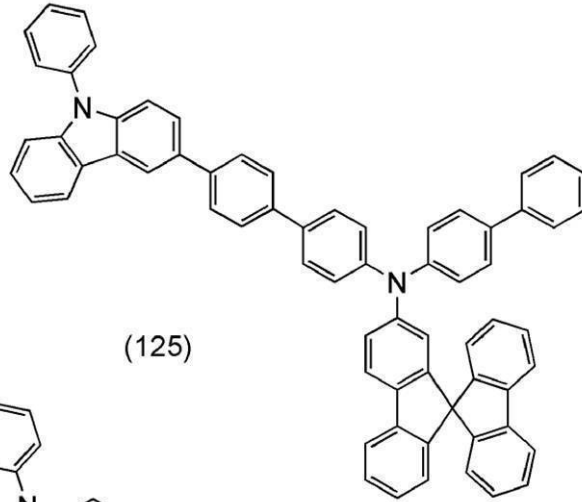
20



30

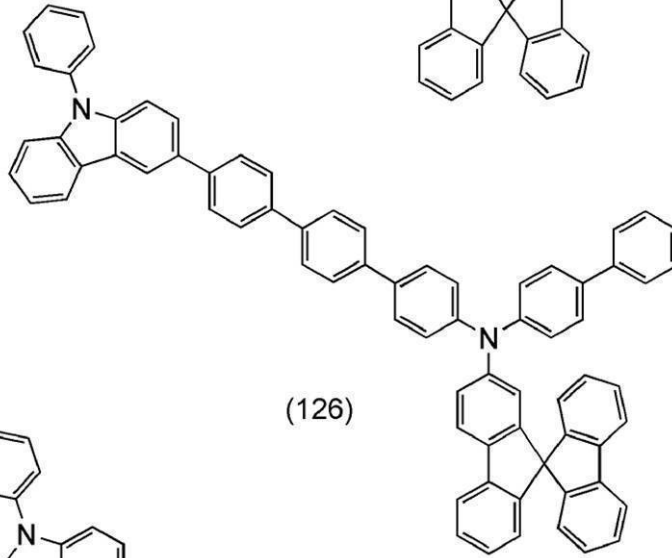
【 0 0 8 4】

【化 2 0】



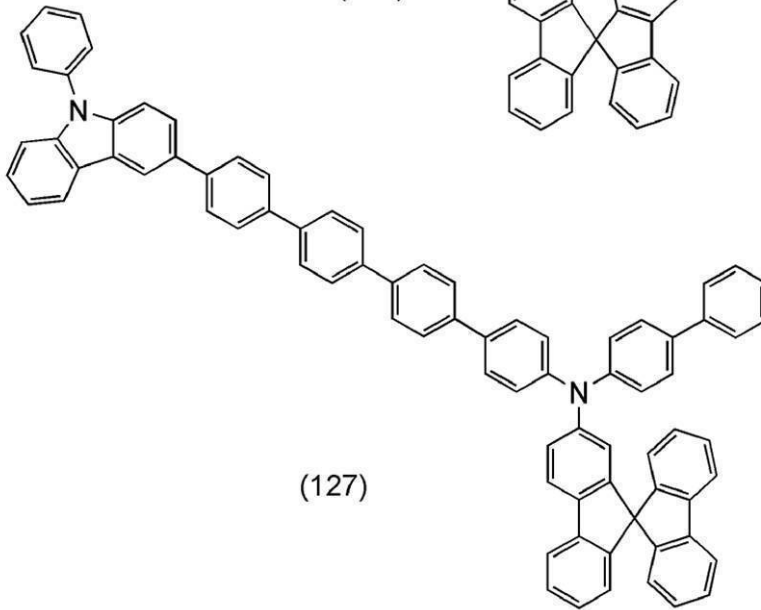
(125)

10



(126)

20



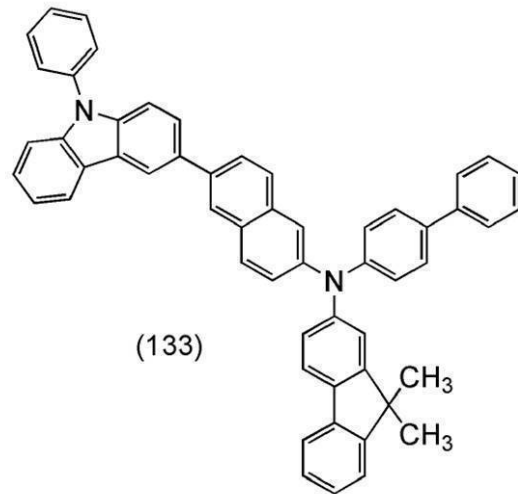
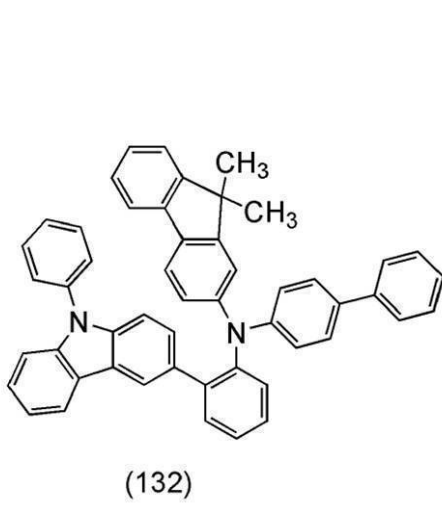
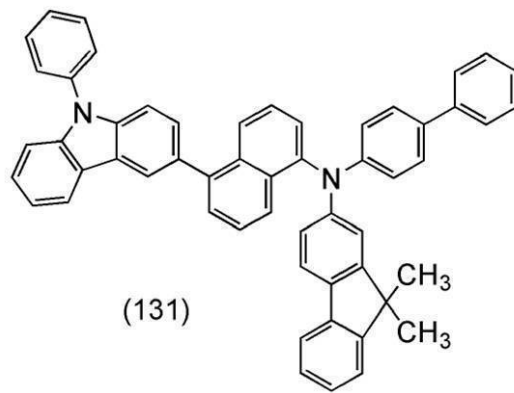
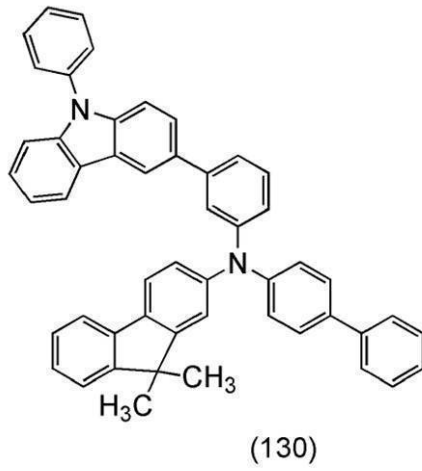
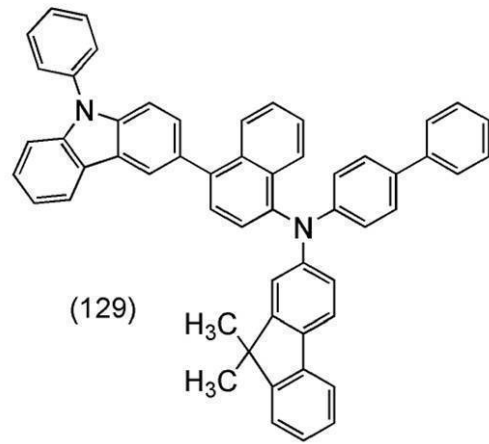
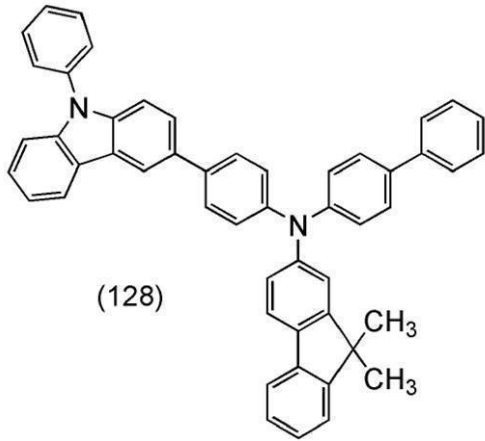
(127)

30

【 0 0 8 5】

40

【化 2 1】



【 0 0 8 6 】

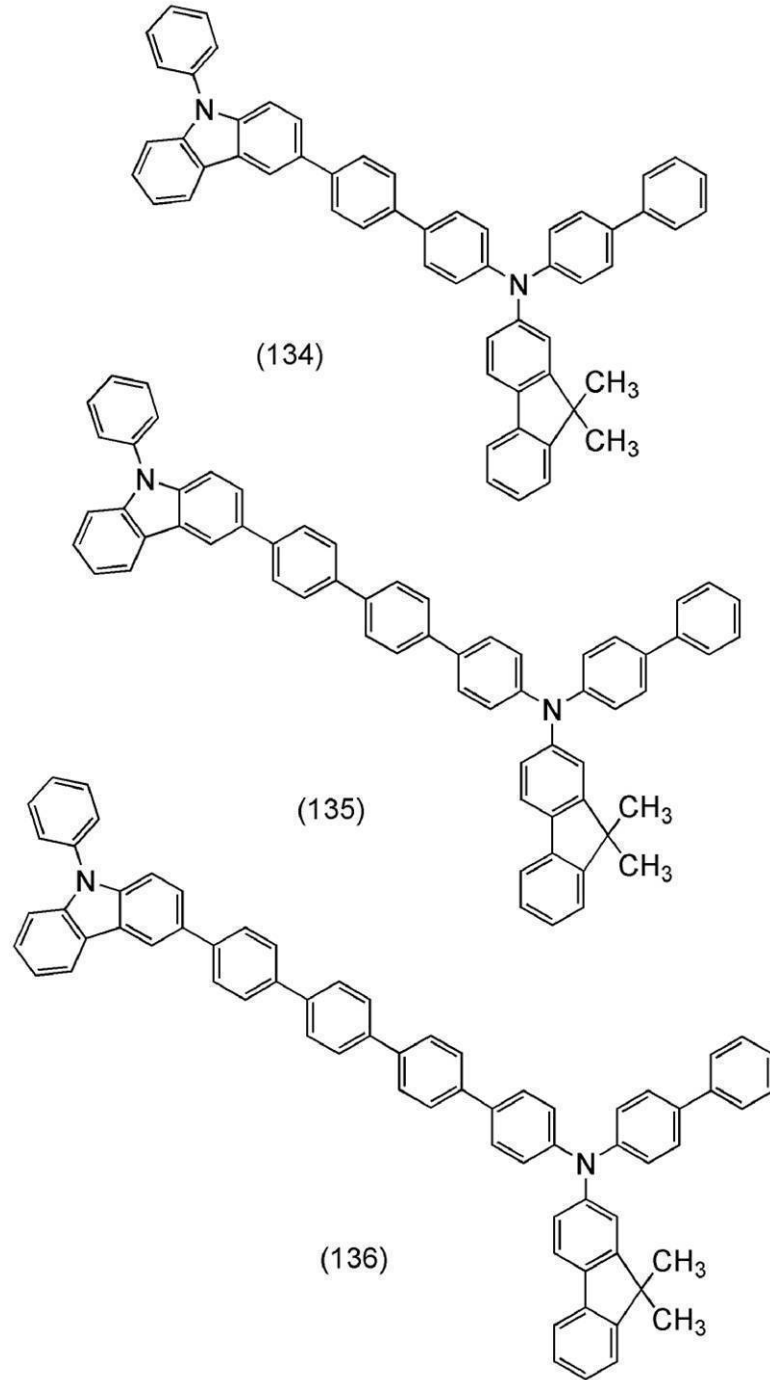
10

20

30

40

【化 2 2】



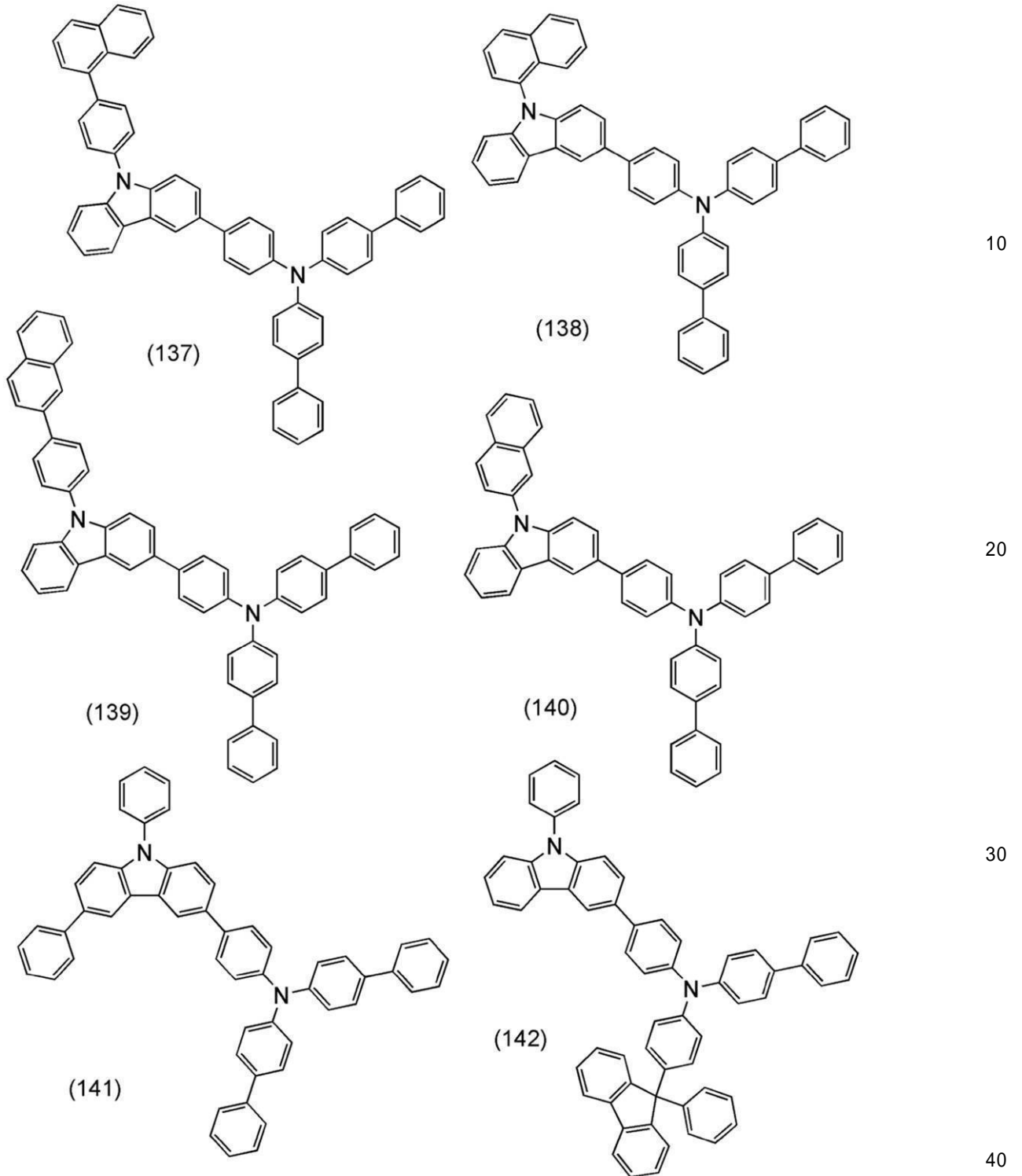
10

20

30

【 0 0 8 7 】

## 【化 2 3】



## 【 0 0 8 8 】

## 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。

## 【 0 0 8 9 】

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

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 : Z n q )、ビス [ 2 - ( 2 - ベンゾオキサゾリル ) フェノラト ] 亜鉛 ( I I ) ( 略称 : Z n ( B O X )<sub>2</sub> )、ビス [ 2 - ( 2 - ベンゾチアゾリル ) フェノラト ] 亜鉛 ( I I ) ( 略称 : Z n ( B T Z )<sub>2</sub> ) などの金属錯体、2 - ( 4 - ビフェニル ) - 5 - ( 4 - tert - ブチルフェニル ) - 1, 3, 4 - オキサジアゾール ( 略称 : P B D )、3 - ( 4 - ビフェニル ) - 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 : T A Z )、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 : C O 1 1 )、2, 2', 2'' - ( 1, 3, 5 - ベンゼントリイル ) トリス ( 1 - フェニル - 1 H - ベンゾイミダゾール ) ( 略称 : T P B I )、2 - [ 3 - ( ジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニル ] - 1 - フェニル - 1 H - ベンゾイミダゾール ( 略称 : m D B T B I m - I I ) などのポリアゾール骨格を有する複素環化合物、2 - [ 3 - ( ジベンゾチオフェン - 4 - イル ) フェニル ] ジベンゾ [ f, h ] キノキサリン ( 略称 : 2 m D B T P D B q - I I )、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ゾキノキサリン骨格を有する複素環化合物、4, 6 - ビス [ 3 - ( フェナントレン - 9 - イル ) フェニル ] ピリミジン ( 略称 : 4, 6 m P n P 2 P m )、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 B T P 2 P m - I I ) 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, 5 D C z P P y )、1, 3, 5 - トリ [ 3 - ( 3 - ピリジル ) フェニル ] ベンゼン ( 略称 : T m P y P B )、3, 3', 5, 5' - テトラ [ ( m - ピリジル ) - フェニル - 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。

10

20

30

#### 【 0 0 9 0 】

##### 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( m p p t z - d m p )<sub>3</sub> ] )、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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( M p t z )<sub>3</sub> ] )、トリス [ 4 - ( 3 - ビフェニル ) - 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( i P r p t z - 3 b )<sub>3</sub> ] ) 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 ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( M p t z 1 - m p )<sub>3</sub> ] )、トリス ( 1 - メチル - 5 - フェニル - 3 - プロピル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾラト ) イリジウム ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( P r p t z 1 - M e )<sub>3</sub> ] ) のような 1 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、f a c - トリス [ 1 - ( 2, 6 - ジイソプロピルフェニル ) - 2 - フェニル - 1 H - イミダゾール ] イリジウム ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( i P r p m i )<sub>3</sub> ] )、ト

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

#### 【0091】

また、例えば、520nm~600nmに発光のピークを有する燐光性化合物としては、  
トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir  
(mppm)<sub>3</sub>])、トリス(4-t-ブチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム  
(III)(略称:[Ir(tBuppm)<sub>3</sub>])、(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)  
<sub>2</sub>(cacac)])、(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)<sub>2</sub>(cacac)  
])、(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)<sub>2</sub>(cacac)])、(アセチルアセトナト)ビス[5-メチル-6-(2-メチル  
フェニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(mpp  
m)<sub>2</sub>(cacac)])、(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)<sub>2</sub>(cacac)])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)<sub>2</sub>(cacac)])、(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)<sub>2</sub>(cacac)])のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ト  
リス(2-フェニルピリジナト-N,C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)(略称:[Ir(p  
py)<sub>3</sub>])、ビス(2-フェニルピリジナト-N,C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)アセ  
チルアセトナート(略称:[Ir(ppy)<sub>2</sub>(cacac)])、ビス(ベンゾ[h]キノ  
リナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(bzq)<sub>2</sub>(a  
cacac)])、トリス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)(略称:[Ir  
(bzq)<sub>3</sub>])、トリス(2-フェニルキノリナト-N,C<sup>2'</sup>)イリジウム(III)  
(略称:[Ir(pq)<sub>3</sub>])、ビス(2-フェニルキノリナト-N,C<sup>2'</sup>)イリジ  
ウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(pq)<sub>2</sub>(cacac)])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(cacac)<sub>3</sub>(Phen  
)])のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する  
有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率が際だって優れるため、特に好ましい。

#### 【0092】

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

10

20

30

40

50

レン - 1 - イル)ピリミジナト] (ジピバロイルメタナト)イリジウム ( I I I ) (略称 : [ I r ( d 1 n p m ) <sub>2</sub> ( 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 ( I I I ) (略称 : [ I r ( t p p r ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) 、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 ( I I I ) (略称 : [ I r ( t p p r ) <sub>2</sub> ( d p m ) ] ) 、(アセチルアセトナト)ビス [ 2 , 3 - ビス ( 4 - フルオロフェニル)キノキサリナト]イリジウム ( I I I ) (略称 : [ I r ( F d p q ) <sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス ( 1 - フェニルイソキノリナト - N , C <sup>2</sup> )イリジウム ( I I I ) (略称 : [ I r ( p i q ) <sub>3</sub> ] ) 、ビス ( 1 - フェニルイソキノリナト - N , C <sup>2</sup> )イリジウム ( I I I ) アセチルアセトナト (略称 : [ I r ( p i q ) <sub>2</sub> ( 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 , 12 , 13 , 17 , 18 - オクタエチル - 21H , 23H - ポルフィリン白金 ( I I ) (略称 : P t O E P ) 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 ( I I I ) (略称 : [ E u ( D B M ) <sub>3</sub> ( P h e n ) ] ) 、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 ) <sub>3</sub> ( P h e n ) ] ) のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率が際だって優れるため、特に好ましい。また、ピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、色度の良い赤色発光が得られる。

#### 【 0 0 9 3 】

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。

#### 【 0 0 9 4 】

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することで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、発光層を 2 つ有する発光素子において、第 1 の発光層の発光色と第 2 の発光層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。なお、補色とは、混合すると無彩色になる色同士の間接関係をいう。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。

#### 【 0 0 9 5 】

また、E L 層 2 0 3 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の高い物質 ) 等を含む層をさらに有していても良い。E L 層 2 0 3 には公知の物質を用いることができ、低分子系化合物及び高分子系化合物のいずれを用いることもでき、無機化合物を含んでいても良い。

#### 【 0 0 9 6 】

図 1 ( B ) に示す発光素子は、第 1 の電極 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、該 E L 層 2 0 3 では、正孔注入層 3 0 1、正孔輸送層 3 0 2、発光層 3 0 3、電子輸送層 3 0 4 及び電子注入層 3 0 5 が、第 1 の電極 2 0 1 側からこの順に積層されている。

#### 【 0 0 9 7 】

図 1 ( C ) に示す発光素子は、第 1 の電極 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。

#### 【 0 0 9 8 】

10

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層 306 に速やかに受け渡す層である。電子注入バッファ層 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。

10

【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。

20

【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 203 a と第 2 の EL 層 203 b 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。

30

【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) 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。

40

【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

50

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 205 と E L 層 203 ( n ) の間に中間層 207 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 . 0 e V 以上 ) 材料を用いることが好ましい。例えば、インジウムスズ酸化物 ( I T O : I n d i u m T i n O x i d e ) 、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、M g - A g 、 A l - L i ) 、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、I T O、珪素又は酸化珪素を含有したインジウムスズ酸化物等も用いることができる。

【0111】

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

【0112】

可視光を透過する導電膜は、例えば、酸化インジウム、I T O、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

50

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、タンタル酸化物、銀酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等の金属酸化物等を用いることができる。

【0117】

また、フタロシアニン（略称：H<sub>2</sub>Pc）、銅（II）フタロシアニン（略称：CuPc）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】

また、低分子の有機化合物である4,4',4''-トリス（N,N-ジフェニルアミノ）トリフェニルアミン（略称：TDATA）、4,4',4''-トリス〔N-（3-メチルフェニル）-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（略称：MTDATA）、4,4'-ビス〔N-（4-ジフェニルアミノフェニル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：DPAB）、4,4'-ビス（N-〔4-〔N'-（3-メチルフェニル）-N'-フェニルアミノ〕フェニル〕-N-フェニルアミノ）ビフェニル（略称：DNTPD）、1,3,5-トリス〔N-（4-ジフェニルアミノフェニル）-N-フェニルアミノ〕ベンゼン（略称：DPA3B）、3-〔N-（9-フェニルカルバゾール-3-イル）-N-フェニルアミノ〕-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA1）、3,6-ビス〔N-（9-フェニルカルバゾール-3-イル）-N-フェニルアミノ〕-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCA2）、3-〔N-（1-ナフチル）-N-（9-フェニルカルバゾール-3-イル）アミノ〕-9-フェニルカルバゾール（略称：PCzPCN1）等の芳香族アミン化合物を用いることができる。

【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、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以

10

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。

10

【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]ピフェニル(略称:NPB又は-NPD)、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ピフェニル]-4,4'-ジアミン(略称:TPD)、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称:BPAPLP)、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]ピフェニル(略称:DFLDPBi)、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ピフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(略称:BSPB)等の芳香族アミン化合物を用いることができる。

20

【0124】

また、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ピフェニル(略称:CBP)、9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称:CzPA)、9-フェニル-3-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称:PCzPA)等のカルバゾール誘導体を用いることができる。

【0125】

また、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、9,10-ジフェニルアントラセン(略称:DPAnth)等の芳香族炭化水素化合物を用いることができる。

30

【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。

【0127】

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、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質であることが好ましい。

40

【0129】

電子輸送層304には、発光層303に含まれる第2の有機化合物(電子輸送性を有する化合物)を適用することができる。

【0130】

そのほか、電子輸送層304には、例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)(略称:Alq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)(略称:Almq<sub>3</sub>)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:BPhen)、バソキュプロイン(略称:BCP)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ピ

50

フェニル) - 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: P P y)、ポリ [(9, 9 - ジヘキシルフルオレン - 2, 7 - ジイル) - c o - (ピリジン - 3, 5 - ジイル)] (略称: P F - P y)、ポリ [(9, 9 - ジオクチルフルオレン - 2, 7 - ジイル) - c o - (2, 2' - ビピリジン - 6, 6' - ジイル)] (略称: P F - B P y) 等の高分子化合物を用いることができる。

【0133】

電子注入層 305

電子注入層 305 は、電子注入性の高い物質を含む層である。

【0134】

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

【0135】

また、電子注入層 305 は、前述の電子輸送性の高い物質とドナー性物質とを含む構成としても良い。例えば、A1q 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。

【0136】

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

【0137】

電荷発生領域

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

【0138】

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

【0139】

正孔輸送性の高い物質としては、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば良く、特に、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  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、BPAPFP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

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

10

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

20

【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-tetraphenox y-29H,31H-phthalocyanine)等が挙げられる。

30

【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。

40

【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

50

る。

【0149】

また、その他の電子輸送性の高い物質として、例えば、3, 4, 9, 10 - ペリレンテトラカルボン酸二無水物（略称：PTCDA）、3, 4, 9, 10 - ペリレンテトラカルボキシリックビスベンゾイミダゾール（略称：PTCBI）、N, N' - ジオクチル - 3, 4, 9, 10 - ペリレンテトラカルボン酸ジイミド（略称：PTCDI - C<sub>8</sub>H）、N, N' - ジヘキシル - 3, 4, 9, 10 - ペリレンテトラカルボン酸ジイミド（略称：HexPTC）等のペリレン誘導体や、ピラジノ[2, 3 - f][1, 10]フェナントリン - 2, 3 - ジカルボニトリル（略称：PPDN）、2, 3, 6, 7, 10, 11 - ヘキサシアノ - 1, 4, 5, 8, 9, 12 - ヘキサアザトリフェニレン（略称：HAT(CN)<sub>6</sub>）、2, 3 - ジフェニルピリド[2, 3 - b]ピラジン（略称：2PYPR）、2, 3 - ビス(4 - フルオロフェニル)ピリド[2, 3 - b]ピラジン（略称：F2PYPR）等の含窒素縮合芳香族化合物などを用いても良い。含窒素縮合芳香族化合物は安定であるため、電子リレー層307を形成する為に用いる材料として好ましい。

10

【0150】

また、7, 7, 8, 8 - テトラシアノキノジメタン（略称：TCNQ）、1, 4, 5, 8 - ナフタレンテトラカルボン酸二無水物（略称：NTCDA）、パーフルオロペンタセン、銅ヘキサデカフルオロフタロシアニン（略称：F<sub>16</sub>CuPc）、N, N' - ビス(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8 - ペンタデカフルオロオクチル) - 1, 4, 5, 8 - ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド（略称：NTCDI - C<sub>8</sub>F）、3', 4' - ジブチル - 5, 5'' - ビス(ジシアノメチレン) - 5, 5'' - ジヒドロ - 2, 2' : 5', 2'' - テルチオフェン（略称：DCMT）、メタノフラーレン（例えば、[6, 6] - フェニルC<sub>6,1</sub> 醜酸メチルエステル）などを用いることができる。

20

【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も良い。電子リレー層307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、- 5.0 eV以上 - 3.0 eV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。

30

【0153】

なお、上述したEL層203及び中間層207を構成する層は、それぞれ、蒸着法（真空蒸着法を含む）、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。

40

【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。

【0155】

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。

50

## 【0157】

図2(A)に示す発光素子は、第1の電極201及び第2の電極205の間にEL層203を有する。EL層203は、発光層213を有する。

## 【0158】

図2(A)に示す発光素子は、発光層213に、第1の有機化合物221、第2の有機化合物222、及び燐光性化合物223を含む。第1の有機化合物221は実施の形態1で示した一般式(G0)で表される化合物であり、第1の有機化合物221の分子量は500以上2000以下であり、第2の有機化合物222は電子輸送性を有する化合物である。

## 【0159】

燐光性化合物223は、発光層213におけるゲスト材料である。本実施の形態では、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222のうち、発光層213に含まれる割合が多い方を、発光層213におけるホスト材料とする。

## 【0160】

なお、第1の有機化合物221及び第2の有機化合物222のそれぞれの三重項励起エネルギーの準位( $T_1$ 準位)は、燐光性化合物223の $T_1$ 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 $T_1$ 準位が燐光性化合物223の $T_1$ 準位よりも低いと、発光に寄与する燐光性化合物223の三重項励起エネルギーを第1の有機化合物221(又は第2の有機化合物222)が消光(クエンチ)してしまい、発光効率の低下を招くためである。

## 【0161】

ホスト材料からゲスト材料へのエネルギー移動効率を高めるため、分子間の移動機構として知られているフェルスター機構(双極子-双極子相互作用)及びデクスター機構(電子交換相互作用)を考慮すると、ホスト分子の発光スペクトル(一重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は蛍光スペクトル、三重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は燐光スペクトル)とゲスト分子の吸収スペクトル(より詳細には、最も長波長(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 $T_1$ 準位が燐光性化合物の $T_1$ 準位を下回ってしまい、上述したクエンチの問題が生じてしまうからである。一方、クエンチの問題を回避するため、ホスト材料の $T_1$ 準位がゲスト材料として用いた燐光性化合物の $T_1$ 準位を上回るように設計すると、今度はホスト材料の蛍光スペクトルが短波長(高エネルギー)側にシフトするため、その蛍光スペクトルはゲスト材料の最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯における吸収スペクトルと重ならなくなる。したがって、ホスト材料の蛍光スペクトルをゲスト材料の最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯における吸収スペクトルと重ね、ホスト材料の一重項励起状態からのエネルギー移動を最大限に高めることは、通常困難である。

## 【0163】

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

## 【0164】

励起錯体について、図2(B)(C)を用いて説明する。

## 【0165】

図2(B)は、励起錯体の概念を示す模式図であり、第1の有機化合物221(又は第2の有機化合物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

50

光スペクトルを表す。

【0166】

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

【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。

10

【0168】

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

【0169】

さらに、励起錯体は一重項励起エネルギーと三重項励起エネルギーの差が極めて小さいと考えられる。換言すれば、励起錯体の一重項状態からの発光スペクトルと三重項状態からの発光スペクトルは、極めて近接することになる。したがって、上述したように励起錯体の発光スペクトル（一般には、励起錯体の一重項状態からの発光スペクトル）を、燐光性化合物223（ゲスト材料）の最も長波長側に位置する吸収帯に重ねよう設計した場合、励起錯体の三重項状態からの発光スペクトル（常温では観測されず、低温でも観測されない場合が多い）も、燐光性化合物223（ゲスト材料）の最も長波長側に位置する吸収帯に重ねることになる。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。

20

【0170】

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

30

【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。

40

【0173】

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

【0174】

第1の有機化合物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

50

合物 2 2 1 の H O M O 準位 < 第 2 の有機化合物 2 2 2 の L U M O 準位 < 第 1 の有機化合物 2 2 1 の L U M O 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 L U M O 準位は、第 2 の有機化合物 2 2 2 に由来し、H O M O 準位は、第 1 の有機化合物 2 2 1 に由来する（図 2（C）参照）。

【 0 1 7 5 】

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

【 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 2 2 1 のエネルギー差、及び第 2 の有機化合物 2 2 2 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 2 1 と第 2 の有機化合物 2 2 2 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。

10

【 0 1 7 7 】

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。

【 0 1 7 8 】

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。

20

【 0 1 7 9 】

一般的には、電子及び正孔が宿主材料中で再結合した場合、励起状態の宿主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、宿主材料からゲスト材料に励起エネルギーが移動する前に、宿主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。

【 0 1 8 0 】

しかし、本発明の一態様においては、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ため、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。

30

【 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（H O M O 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（L U M O 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 1 のカチオンと第 2 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。

40

【 0 1 8 2 】

このようにして第 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 2 2 3（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 2 2 1 及び第 2 の有機化合物 2 2 2 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 2 2 3（ゲスト材料）にエネルギー移動すると考えられる。

【 0 1 8 3 】

2 つ目の励起錯体の形成過程は、第 1 の有機化合物 2 2 1 又は第 2 の有機化合物 2 2 2 の

50

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を得られているのである。

【0186】

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

【0187】

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

【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223(ゲスト材料)に十分にエネルギー移動し、励起錯体からの発光は実質的に観察されないことが好ましい。したがって、励起錯体を介して燐光性化合物223(ゲスト材料)にエネルギーを移動して、燐光性化合物223が、燐光を発することが好ましい。

【0189】

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

【0190】

10

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。

10

【0193】

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

【0194】

本実施の形態の発光素子403には、本発明の一態様の発光素子が適用されている。本発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。

20

【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。

30

【0196】

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

【0197】

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

【0198】

また、発光素子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。

40

【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

50

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。

10

【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。

20

【0203】

凹凸の底面形状は、特に限定されず、例えば、三角形、四角形等の多角形や、円形等とすることができる。凹凸の底面形状が規則性を有する場合は、隣り合う部分において隙間が生じないように設けられていることが好ましい。例えば、好ましい底面形状として、正六角形が挙げられる。

【0204】

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

【0205】

凹凸の大きさ、高さは、特に、1 $\mu$ 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。

30

【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。

40

【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

50

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。

10

【0212】

図 4 (B) に示す発光部 5 5 1 は、スイッチング用のトランジスタ 5 4 1 a と、電流制御用のトランジスタ 5 4 1 b と、トランジスタ 5 4 1 b 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 5 2 5 とを含む複数の発光ユニットにより形成されている。

20

【0213】

発光素子 5 0 3 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 5 2 1 と、EL 層 5 2 3 と、可視光を反射する第 2 の電極 5 2 5 とで構成されている。また、第 2 の電極 5 2 5 の端部を覆って隔壁 5 1 9 が形成されている。

【0214】

本実施の形態の発光素子 5 0 3 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 (Flexible 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。

30

【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 CMOS 回路を有する例を示している。駆動回路部の回路は、種々の CMOS 回路、PMOS 回路又は NMOS 回路で形成することができる。また、本実施の形態では、発光部が形成された基板上に駆動回路が形成されたドライバー一体型を示すが、本発明はこの構成に限定されるものではなく、発光部が形成された基板とは別の基板に駆動回路を形成することもできる。

40

【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 5 1 7 を、発光部 5 5 1 及び駆動回路部 5 5 2 に含まれ

50

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

【0219】

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

10

【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。

【0221】

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、チャンネルエッチ型やチャン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。

20

【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。

【0223】

封止基板505には、発光素子503(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533が設けられている。カラーフィルタ533は、発光素子503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。

30

【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。

40

【0225】

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

【0226】

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

50

## 【0227】

本実施の形態は、他の実施の形態と適宜組み合わせることができる。

## 【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。

10

## 【0230】

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

## 【0231】

図5(A)は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置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。

20

## 【0232】

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

30

## 【0233】

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

## 【0234】

図5(B)は、コンピュータの一例を示している。コンピュータ7200は、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、本発明の一態様の発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

40

## 【0235】

図5(C)は、携帯型ゲーム機の一例を示している。携帯型ゲーム機7300は、筐体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、にのみ又は赤外線を測定する機能を含むもの)、LEDランプ、マイク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

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。

【0236】

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。

10

【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。

20

【0239】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部 7402 を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。

【0240】

また、携帯電話機 7400 内部に、ジャイロセンサ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサを有する検出装置を設けることで、携帯電話機 7400 の向き（縦か横か）を判断して、表示部 7402 の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。

【0241】

また、画面モードの切り替えは、表示部 7402 を触れること、又は筐体 7401 の操作ボタン 7403 の操作により行われる。また、表示部 7402 に表示される画像の種類によって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画のデータであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。

30

【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 7402 は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部 7402 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。

40

【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。

【0245】

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

50

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行うことができる。例えば、表示部 7502a の全面にキーボードボタンを表示させてタッチパネルとし、表示部 7502b 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。

10

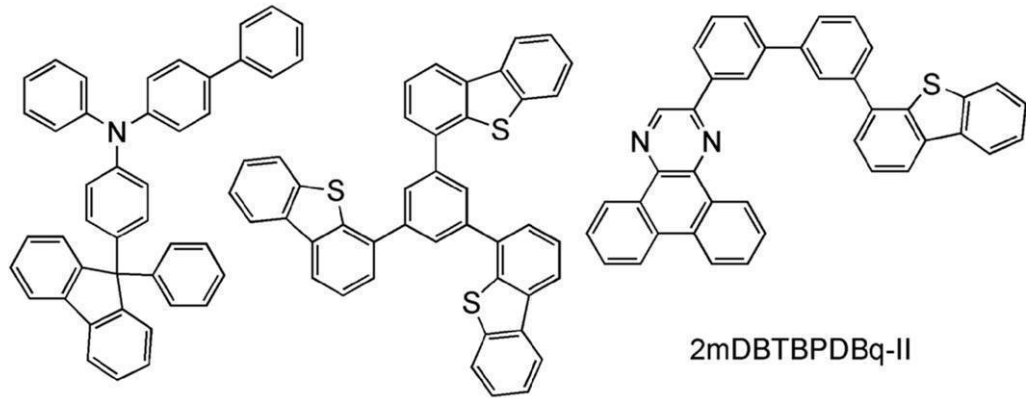
【実施例 1】

【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】

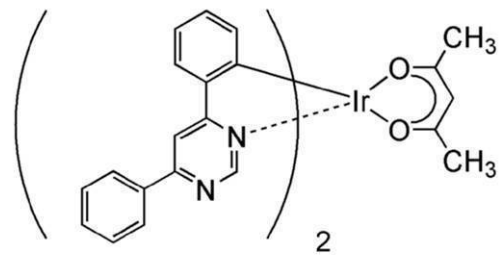
## 【化 2 4】



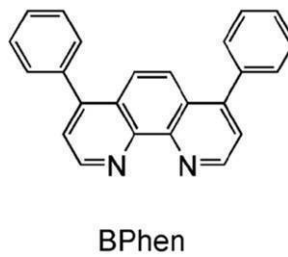
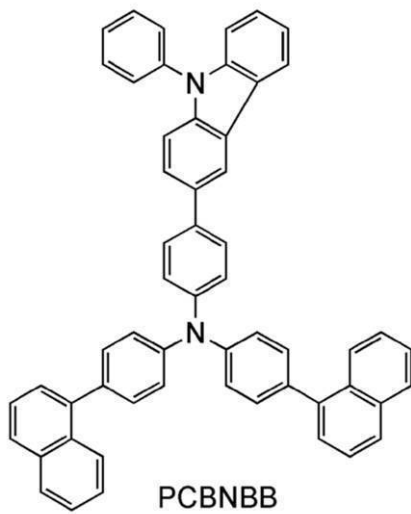
10

BPAFLP

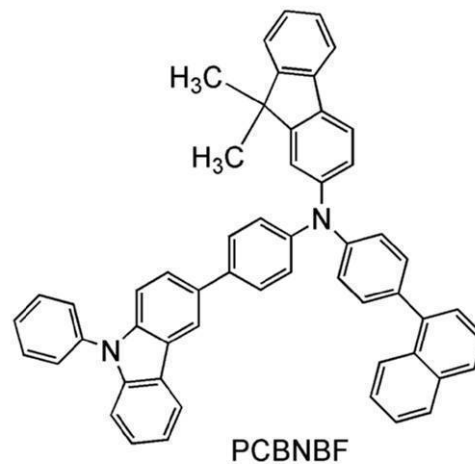
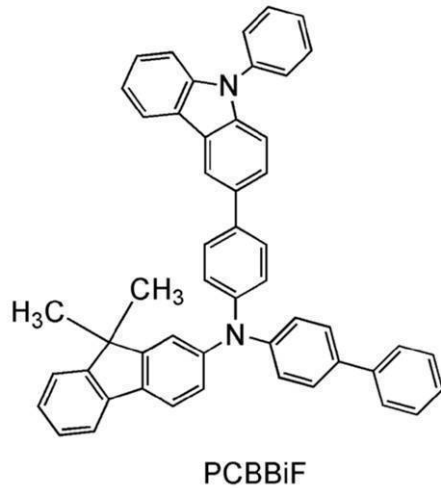
DBT3P-II

[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]

20



30



40

## 【 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。

## 【 0 2 5 1 】

(発光素子 1)

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

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。

## 【0253】

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1100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。

10

## 【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:BPALP)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。

20

## 【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:2mDBTBPD Bq-II)、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBBiF)、及び(アセチルアセトナト)ビス(4,6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここで、2mDBTBPD Bq-II、PCBBiF、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPD Bq-II:PCBBiF:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

30

## 【0257】

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

## 【0258】

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

## 【0259】

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。

40

## 【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1113は、2mDBTBPD Bq-II、4,4''-ジ(1-ナフチル)-4''-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)トリフェニルアミン(略称:PCBNBB)、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTBPD Bq-II、PCBNBB及び[Ir(dpp

50

m)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBNBB:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。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、2mDBTPDBq-II、N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9-ジメチル-N-[4-(1-ナフチル)フェニル]-9H-フルオレン-2-アミン(略称:PCBNBF)、及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、PCBNBF及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBNBF:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。発光層1113以外は発光素子1と同様に作製した。

【0263】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表1に示す。

【0264】

【表1】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子1	ITO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBiF :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBT BPDBq-II 15nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子2				2mDBTPDBq-II:PCBNBB :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm				
比較発光素子3				2mDBTPDBq-II:PCBNBF :[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm				

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

【0267】

10

20

30

40

【表 2】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	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

10

## 【0268】

表 2 に示す通り、 $1200 \text{ cd/m}^2$  の輝度の時の発光素子 1 の C I E 色度座標は  $(x, y) = (0.55, 0.45)$  であった。 $900 \text{ cd/m}^2$  の輝度の時の比較発光素子 2 の C I E 色度座標は  $(x, y) = (0.55, 0.44)$  であった。 $1000 \text{ cd/m}^2$  の輝度の時の比較発光素子 3 の C I E 色度座標は  $(x, y) = (0.55, 0.45)$  であった。本実施例で示す発光素子は、 $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$  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 10、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。

20

## 【0270】

特に、発光素子 1 は、比較発光素子 2 及び比較発光素子 3 に比べて、高輝度領域での電流効率及び外部量子効率が、高いことがわかった(図 8 や図 10 の輝度が  $1000 \sim 10000 \text{ cd/m}^2$  の時の電流効率又は外部量子効率を参照)。発光素子 1 は、カルバゾール骨格を含む置換基、フルオレニル基、及びピフェニル基を有する P C B B i F を発光層に含む。比較発光素子 2 はカルバゾール骨格を含む置換基と、2 つのナフチル基を有する P C B N B B を発光層に含む。比較発光素子 3 は、カルバゾール骨格を含む置換基、フルオレニル基、及びナフチル基を有する P C B N B F を発光層に含む。すなわち、発光素子 1 と、比較発光素子 2 又は比較発光素子 3 との大きな違いは、発光層に含まれる第 3 級アミンがナフチル基を含むか否かである。本発明の一態様である発光素子 1 で用いた第 3 級アミンは、ピフェニルアミン骨格及びフルオレニルアミン骨格を有するため、高い正孔輸送性と高い電子ブロック性を有する上に、ナフタレン骨格を含むアミン等に比べて三重項励起エネルギーが高いため、励起子ブロック性にも優れる。そのため、高輝度領域でも、電子の漏れや励起子の拡散を防ぐことができ、高い発光効率を示す発光素子を実現できる。

30

## 【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  $5000 \text{ cd/m}^2$  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。

40

## 【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。

50

## 【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。

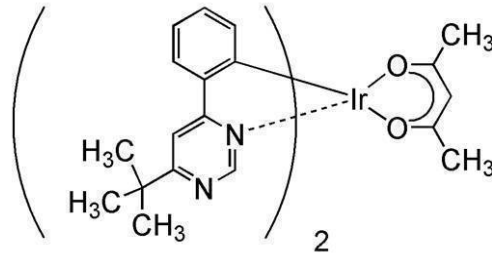
## 【実施例2】

## 【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)<sub>2</sub>(acac)]

10

20

## 【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、2mDBTBPDq-III、PCBBiF、及び(アセチルアセトナト)ピス(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)<sub>2</sub>(acac)])を共蒸着し、正孔輸送層1112上に発光層1113を形成した。ここでは、2mDBTBPDq-III、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDq-III:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDq-III:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。

30

## 【0280】

次に、発光層1113上に2mDBTBPDq-III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。

40

## 【0281】

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

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1112は、PCBNBBを膜厚20nmとなるように成膜することで形成した。また、発光層1113は、2mDBTBPDq-II、PCBNBB、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTBPDq-II、PCBNBB及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPDq-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜した厚さ20nmの層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=2mDBTBPDq-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節して成膜した厚さ20nmの層とを積層した。正孔輸送層1112及び発光層1113以外は発光素子4と同様に作製した。

10

【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	発光層		電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子4	ITSO 110nm	DBT3P-II: MoOx (=4:2) 20nm	PCBBiF 20nm	2mDBTBPDq-II:PCBBiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]		2mDBT BPDBq-II 5nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				
比較発光素子5			PCBNBB 20nm	2mDBTBPDq-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]					
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				

20

【0287】

発光素子4及び比較発光素子5を、窒素雰囲気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。

30

【0288】

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

40

【0289】

【表 4】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 <sub>x</sub>	色度 <sub>y</sub>	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/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、900 cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子4のCIE色度座標は(x, y) = (0.41, 0.59)であり、比較発光素子5のCIE色度座標は(x, y) = (0.40, 0.59)であった。発光素子4及び比較発光素子5は、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]に由来する緑色発光が得られたことがわかった。

10

## 【0291】

図12乃至図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1000~10000 cd/m<sup>2</sup>の時の電流効率、パワー効率、又は外部量子効率を参照)。

20

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

30

## 【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。

40

## 【0294】

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

## 【実施例3】

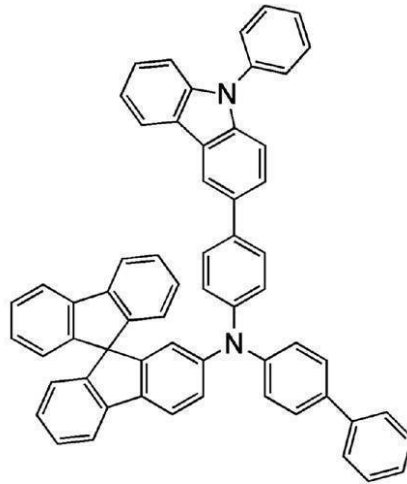
## 【0295】

50

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

10

【0297】

20

以下に、本実施例の発光素子6及び発光素子7の作製方法を示す。

【0298】

(発光素子6)

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

【0299】

次に、正孔注入層1111上に、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9'-スピロピ[9H-フルオレン]-2-アミン(略称:PCBBiSF)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。

30

【0300】

さらに、2mDBTBPD Bq-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、2mDBTBPD Bq-II、PCBBiSF、及び $[Ir(dppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq-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(=2mDBTBPD Bq-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。

40

【0301】

次に、発光層1113上に2mDBTBPD Bq-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1114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

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、BPFLP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	発光層		電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子6	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 20nm	PCBBSiSF 20nm	2mDBTBPDBq-II :PCBBSiSF: [Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]		2mDBT BPDBq-II 20nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子7			BPAFLP 20nm						

10

20

【0308】

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

【0309】

本実施例の発光素子の輝度-電流効率特性を図17に示す。図17において、横軸は輝度( $cd/m^2$ )、縦軸は電流効率( $cd/A$ )を表す。また、電圧-輝度特性を図18に示す。図18において、横軸は電圧(V)、縦軸は輝度( $cd/m^2$ )を表す。また、輝度-パワー効率特性を図19に示す。図19において、横軸は、輝度( $cd/m^2$ )を、縦軸は、パワー効率( $lm/W$ )を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図20に示す。図20において、横軸は、輝度( $cd/m^2$ )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1000 $cd/m^2$ 付近のときの電圧(V)、電流密度( $mA/cm^2$ )、CIE色度座標(x、y)、電流効率( $cd/A$ )、パワー効率( $lm/W$ )、外部量子効率(%)を表6に示す。

30

【0310】

【表6】

	電圧(V)	電流密度 ( $mA/cm^2$ )	色度x	色度y	輝度 ( $cd/m^2$ )	電流効率 ( $cd/A$ )	パワー効率 ( $lm/W$ )	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

40

【0311】

表6に示す通り、900 $cd/m^2$ の輝度の時の発光素子6のCIE色度座標は(x、y)=(0.56, 0.44)であり、1000 $cd/m^2$ の輝度の時の発光素子7のCIE色度座標は(x、y)=(0.55, 0.44)であった。発光素子6及び発光素子7は、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]に由来する橙色発光が得られたことがわかった。

50

## 【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、ピ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20

20

## 【0316】

次に、2mDBTBPD Bq - II、PCBBiF、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、2mDBTBPD Bq - II、PCBBiF、及び $[Ir(dppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq - II:PCBBiF: $[Ir(dppm)_2(acac)]$ )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(=2mDBTBPD Bq - II:PCBBiF: $[Ir(dppm)_2(acac)]$ )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。

30

## 【0317】

次に、発光層1113上に2mDBTBPD Bq - 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1114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1113は、2mDBTBPD Bq - II及び $[Ir(dppm)_2(acac)]$ を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTBPD Bq - II及び $[Ir(dppm)_2(acac)]$ の重量比は、1:0.05(=2mDBTBPD Bq - II: $[Ir(dppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。また、比較発光素子9の電子輸送層1114は、2mDBTBPD Bq - IIを膜厚10nmとなるように成膜し、さらに、BPhenを

50

膜厚 15 nm となるように成膜した。発光層 1 1 1 3 及び電子輸送層 1 1 1 4 以外は発光素子 8 と同様に作製した。

【 0 3 2 2 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表 7 に示す。

【 0 3 2 3 】

【 表 7 】

	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
発光素子 8	ITO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]	2mDBTBPDBq-II:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)]	2mDBTBPDBq-II 20nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
比較発光素子 9				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				

10

【 0 3 2 4 】

発光素子 8 及び比較発光素子 9 を、窒素雰囲気グローブボックス内において、各発光素子が大气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。

20

【 0 3 2 5 】

本実施例の発光素子の電圧 - 電流特性を図 2 7 に示す。図 2 7 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 2 8 に示す。図 2 8 において、横軸は、輝度 ( cd / m<sup>2</sup> ) を、縦軸は、外部量子効率 ( % ) を表す。また、本実施例の発光素子の発光スペクトルを図 2 9 に示す。また、各発光素子における輝度 1 0 0 0 cd / m<sup>2</sup> 付近のときの電圧 ( V ) 、電流密度 ( mA / cm<sup>2</sup> ) 、CIE 色度座標 ( x 、 y ) 、電流効率 ( cd / A ) 、パワー効率 ( lm / W ) 、外部量子効率 ( % ) を表 8 に示す。

【 0 3 2 6 】

【 表 8 】

30

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/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

【 0 3 2 7 】

表 8 に示す通り、960 cd / m<sup>2</sup> の輝度の時の発光素子 8 の CIE 色度座標は ( x , y ) = ( 0 . 5 6 , 0 . 4 4 ) であった。1100 cd / m<sup>2</sup> の輝度の時の比較発光素子 9 の CIE 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、[ Ir ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] に由来する橙色発光が得られたことがわかった。

40

【 0 3 2 8 】

発光素子 8 は、1000 cd / m<sup>2</sup> 付近における外部量子効率が 31 % ( 電流効率で 85 cd / A に相当する ) と極めて高く、エキサイプレックスからのエネルギー移動がない比較発光素子 9 よりも高い値を示した。

【 0 3 2 9 】

また、発光素子 8 は、1000 cd / m<sup>2</sup> 付近における電圧が 2 . 8 V と極めて低く、比較発光素子 9 よりも低い値を示した。

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  $5000 \text{ cd/m}^2$  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。

## 【0331】

以上示したように、本発明の一態様を適用することで、高い発光効率を示す発光素子を得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

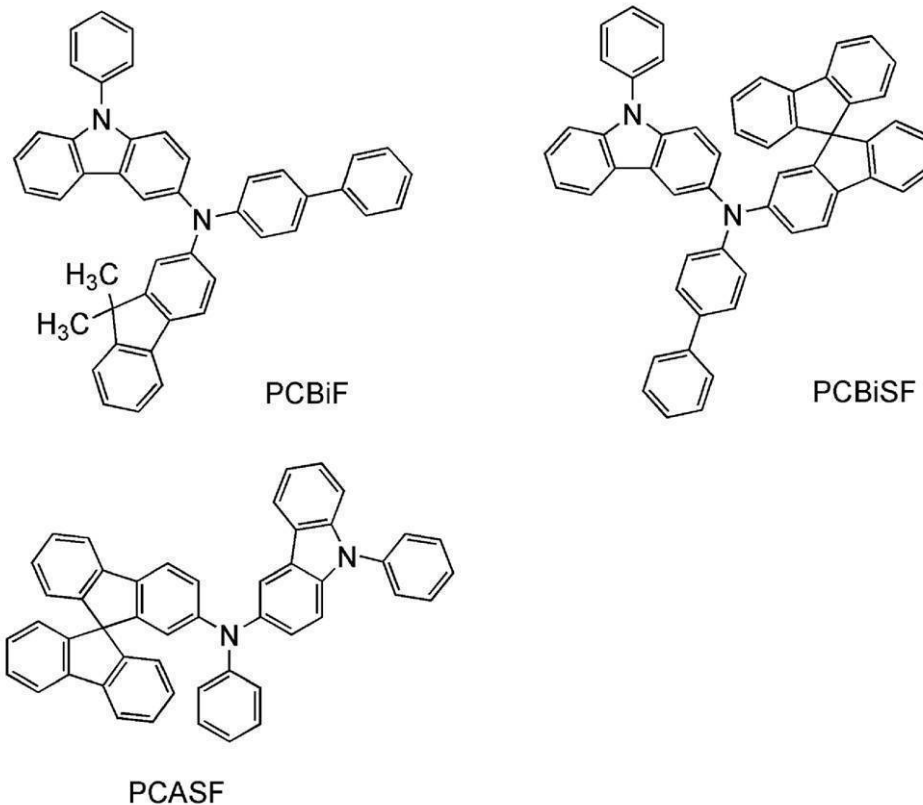
## 【実施例 5】

## 【0332】

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

## 【0333】

## 【化 27】



20

30

40

## 【0334】

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

## 【0335】

## (発光素子 10)

発光素子 10 では、2mDBTBPD Bq - II、N-(4-ピフェニル)-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  $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$  を共蒸着し、

50

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 )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] の重量比が、0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B i F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調整して成膜した厚さ 2 0 n m の層と、該重量比が、0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B i F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調節して成膜した厚さ 2 0 n m の層とを積層した。

【 0 3 3 6 】

( 発光素子 1 1 )

発光素子 1 1 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 )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] を共蒸着し、正孔輸送層 1 1 1 2 上に発光層 1 1 1 3 を形成した。ここでは、2 m D B T B P D B q - I I、P C B i S F、及び [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] の重量比が、0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B i S F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調整して成膜した厚さ 2 0 n m の層と、該重量比が、0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C B i S F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調節して成膜した厚さ 2 0 n m の層とを積層した。

10

【 0 3 3 7 】

( 比較発光素子 1 2 )

比較発光素子 1 2 では、2 m D B T B P D B q - I I、2 - [ N - ( 9 - フェニルカルバゾール - 3 - イル ) - N - フェニルアミノ ] - スピロ - 9 , 9 ' - ビフルオレン ( 略称 : P C A S F )、及び [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] を共蒸着し、正孔輸送層 1 1 1 2 上に発光層 1 1 1 3 を形成した。ここでは、2 m D B T B P D B q - I I、P C A S F、及び [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] の重量比が、0 . 7 : 0 . 3 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C A S F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調整して成膜した厚さ 2 0 n m の層と、該重量比が、0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T B P D B q - I I : P C A S F : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調節して成膜した厚さ 2 0 n m の層とを積層した。

20

【 0 3 3 8 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表 9 に示す。

30

【 0 3 3 9 】

【 表 9 】

	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
発光素子 10	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	2mDBTBPDBq-II:PCBiF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.7:0.3:0.05)      (=0.8:0.2:0.05) 20nm                      20nm		2mDBT BPDBq-II 20nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子 11				2mDBTBPDBq-II:PCBiSF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.7:0.3:0.05)      (=0.8:0.2:0.05) 20nm                      20nm					
比較発光素子 12				2mDBTBPDBq-II:PCASF:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.7:0.3:0.05)      (=0.8:0.2:0.05) 20nm                      20nm					

40

【 0 3 4 0 】

発光素子 1 0、発光素子 1 1、及び比較発光素子 1 2 を、窒素雰囲気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 ( 2 5 に保たれた雰囲気 ) で行った。

【 0 3 4 1 】

50

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図 3 1 に示す。図 3 1 において、横軸は輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、縦軸は電流効率 ( $\text{cd}/\text{A}$ ) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図 3 2 に示す。図 3 2 において、横軸は電圧 (V)、縦軸は輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 3 3 に示す。図 3 3 において、横軸は、輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) 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  $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$  付近のときの電圧 (V)、電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )、CIE 色度座標 (x、y)、電流効率 ( $\text{cd}/\text{A}$ )、パワー効率 ( $\text{lm}/\text{W}$ )、外部量子効率 (%) を表 1 0 に示す。

【 0 3 4 2 】

【 表 1 0 】

	電圧(V)	電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	色度x	色度y	輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	電流効率 ( $\text{cd}/\text{A}$ )	パワー効率 ( $\text{lm}/\text{W}$ )	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

10

【 0 3 4 3 】

表 1 0 に示す通り、 $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$  付近の輝度の時の各発光素子の CIE 色度座標は (x, y) = (0.57, 0.43) であった。本実施例で示す発光素子は、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)] に由来する橙色発光が得られたことがわかった。

20

【 0 3 4 4 】

図 3 2 及び表 1 0 から、発光素子 1 0、発光素子 1 1、及び比較発光素子 1 2 の駆動電圧が同程度であることがわかった。また、図 3 1、図 3 3、及び表 1 0 から、発光素子 1 0 及び発光素子 1 1 は、比較発光素子 1 2 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 1 0、発光素子 1 1、及び比較発光素子 1 2 の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 3 4 に示す。図 3 4 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  $5000 \text{ cd}/\text{m}^2$  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 3 4 から、発光素子 1 0 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 1 1 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 1 2 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 1 0 及び発光素子 1 1 は、比較発光素子 1 2 に比べて長寿命であることが明らかとなった。

30

【 0 3 4 6 】

発光素子 1 1 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 PCB i S F を発光層に含む。比較発光素子 1 2 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 P C A S F を発光層に含む。すなわち、発光素子 1 1 と、比較発光素子 1 2 との違いは、発光層に含まれる第 3 級アミンの置換基がビフェニル基かフェニル基かだけである。本発明の一態様である発光素子 1 1 で用いた第 3 級アミンは、反応性の高いフェニルアミン骨格のフェニル基の 4 位をフェニル基でキャップすることで、p - ビフェニルアミン骨格を形成しているため、信頼性の高い発光素子を実現できる。

40

【 0 3 4 7 】

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。

50

## 【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、2mDBTBPD Bq - 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、2mDBTBPD Bq - II、PCBBiF、及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq - 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(=2mDBTBPD Bq - 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。

10

## 【0351】

(発光素子14)

発光素子14では、2mDBTBPD Bq - 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、2mDBTBPD Bq - II、PCBiF、及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq - 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(=2mDBTBPD Bq - 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。

20

## 【0352】

(発光素子15)

発光素子15では、2mDBTBPD Bq - 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、2mDBTBPD Bq - II、PCBiSF、及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq - 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(=2mDBTBPD Bq - 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。

30

## 【0353】

(比較発光素子16)

比較発光素子16では、2mDBTBPD Bq - II、PCASF、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、2mDBTBPD Bq - II、PCASF、及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比が、0.7:0.3:0.05(=2mDBTBPD Bq - II:PCASF: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ )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(=2mDBTBPD Bq - II:PCASF: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ )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。

40

## 【0354】

50

そして、本実施例の発光素子 1 3、発光素子 1 4、発光素子 1 5、及び比較発光素子 1 6 では、発光層 1 1 1 3 上に 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 となるように成膜することで、電子輸送層 1 1 1 4 を形成した。

【 0 3 5 5 】

以上により得られた本実施例の発光素子の素子構造を表 1 1 に示す。

【 0 3 5 6 】

【表 1 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
発光素子 13	ITO 110nm	DBT3P-II :MoOx (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]		2mDBT BPDBq-II 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				
発光素子 14				2mDBTBPDBq-II:PCBiF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]					
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				
発光素子 15				2mDBTBPDBq-II:PCBiSF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]					
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				
比較発光素子 16				2mDBTBPDBq-II:PCASF:[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)]					
				(=0.7:0.3:0.05) 20nm	(=0.8:0.2:0.05) 20nm				

10

20

【 0 3 5 7 】

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

【 0 3 5 8 】

本実施例の発光素子の輝度 - 電流効率特性を図 3 5 に示す。図 3 5 において、横軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、電圧 - 輝度特性を図 3 6 に示す。図 3 6 において、横軸は電圧（V）、縦軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 3 7 に示す。図 3 7 において、横軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）を、縦軸は、外部量子効率（%）を表す。また、各発光素子における輝度 1 0 0 0 cd/m<sup>2</sup> 付近のときの電圧（V）、電流密度（mA/cm<sup>2</sup>）、CIE 色度座標（x、y）、電流効率（cd/A）、パワー効率（lm/W）、外部量子効率（%）を表 1 2 に示す。

30

【 0 3 5 9 】

【表 1 2】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度x	色度y	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/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

40

【 0 3 6 0 】

表 1 2 に示す通り、8 6 0 cd/m<sup>2</sup> の輝度の時の発光素子 1 3 の C I E 色度座標は（x

50

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

#### 【0361】

図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。

10

#### 【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5000 cd/m<sup>2</sup>に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図38から、発光素子13の520時間後の輝度は初期輝度の90%を保持しており、発光素子14の600時間後の輝度は初期輝度の84%を保持しており、発光素子15の520時間後の輝度は初期輝度の85%を保持しており、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。

20

#### 【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%を保持していたが、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、及びピ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ピ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-ピ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。

30

#### 【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】

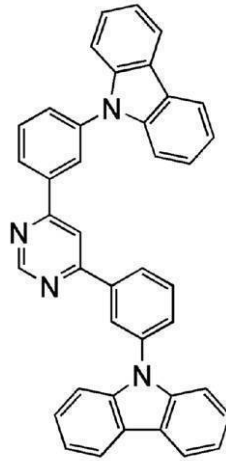
#### 【0365】

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。

40

#### 【0366】

## 【化 2 8】



4,6mCzP2Pm

10

## 【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)

20

まず、発光素子 8 と同様に、ガラス基板 1100 上に第 1 の電極 1101、正孔注入層 1111、及び正孔輸送層 1112 を作製した。

## 【0369】

次に、4,6-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ピリミジン(略称: 4,6mCzP2Pm)、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着し、正孔輸送層 1112 上に発光層 1113 を形成した。ここでは、4,6mCzP2Pm、PCBBiF、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比が、0.7:0.3:0.05(=4,6mCzP2Pm:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調整して成膜した厚さ 20 nm の層と、該重量比が、0.8:0.2:0.05(=4,6mCzP2Pm:PCBBiF:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])となるように調節して成膜した厚さ 20 nm の層とを積層した。

30

## 【0370】

次に、発光層 1113 上に 4,6mCzP2Pm を膜厚 15 nm となるように成膜し、さらに、BPhen を膜厚 10 nm 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 1 nm の膜厚で蒸着し、電子注入層 1115 を形成した。

## 【0372】

40

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

## 【0375】

【表 1 3】

	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
発光素子17	ITSO 110nm	DBT3P-II :MoO <sub>x</sub> (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	4,6mCzP2Pm:PCBBiF: (=0.7:0.3:0.05) 20nm	[Ir(tBuppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	4,6mCzP2Pm 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm

## 【0376】

発光素子17を、窒素雰囲気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。

10

## 【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( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、縦軸は電流効率( $\text{cd}/\text{A}$ )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( $\text{cd}/\text{m}^2$ )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( $\text{cd}/\text{m}^2$ )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 $760\text{cd}/\text{m}^2$ のときの電圧(V)、電流密度( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )、CIE色度座標(x, y)、電流効率( $\text{cd}/\text{A}$ )、パワー効率( $\text{lm}/\text{W}$ )、外部量子効率(%)を表14に示す。

20

## 【0378】

【表 1 4】

	電圧(V)	電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	色度x	色度y	電流効率 ( $\text{cd}/\text{A}$ )	パワー効率 ( $\text{lm}/\text{W}$ )	外部 量子効率(%)
発光素子17	2.8	0.67	0.41	0.58	113	127	30

## 【0379】

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

30

## 【0380】

図39乃至図41、及び表14から、発光素子17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 $5000\text{cd}/\text{m}^2$ 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。

40

## 【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】

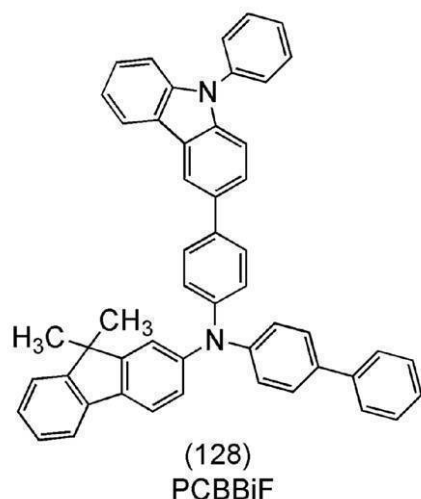
(参考例1)

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

50

【 0 3 8 4 】

【 化 2 9 】



10

【 0 3 8 5 】

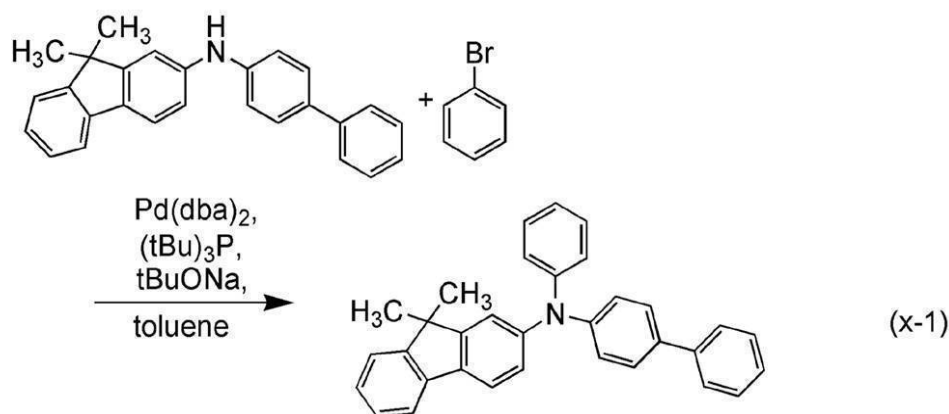
<ステップ1：N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-9,9-ジメチル-N-フェニル-9H-フルオレン-2-アミンの合成>

ステップ1の合成スキームを(x-1)に示す。

20

【 0 3 8 6 】

【 化 3 0 】



30

【 0 3 8 7 】

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-9H-フルオレン-2-アミン45 g (0.13 mol)と、ナトリウムtert-ブトキシド36 g (0.38 mol)と、プロモベンゼン21 g (0.13 mol)と、トルエン500 mLを入れた。この混合物を減圧しながら攪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 mmol)と、トリ(tert-ブチル)ホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液)12 mL (5.9 mmol)を加えた。

40

【 0 3 8 8 】

この混合物を窒素気流下、90℃で2時間攪拌した。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200 mL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。

50

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 95% で得た。

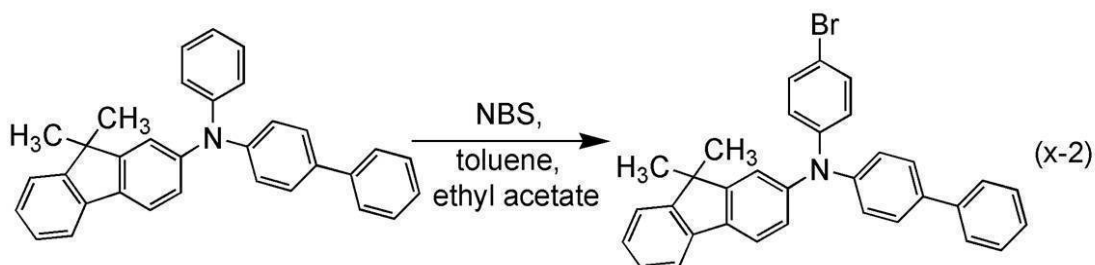
【0389】

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

ステップ2の合成スキームを(x-2)に示す。

【0390】

【化31】



10

【0391】

1 L マイヤーフラスコに、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-9,9-ジメチル-N-フェニル-9H-フルオレン-2-アミン 4.5 g (0.10 mol) を入れ、トルエン 225 mL を加えて加熱しながら攪拌して溶解した。この溶液を室温まで放冷した後、酢酸エチル 225 mL を加えて、N-プロモコハク酸イミド (略称：NBS) 1.8 g (0.10 mol) を加えて、2.5 時間室温にて攪拌した。攪拌終了後、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 89% で得た。

20

【0392】

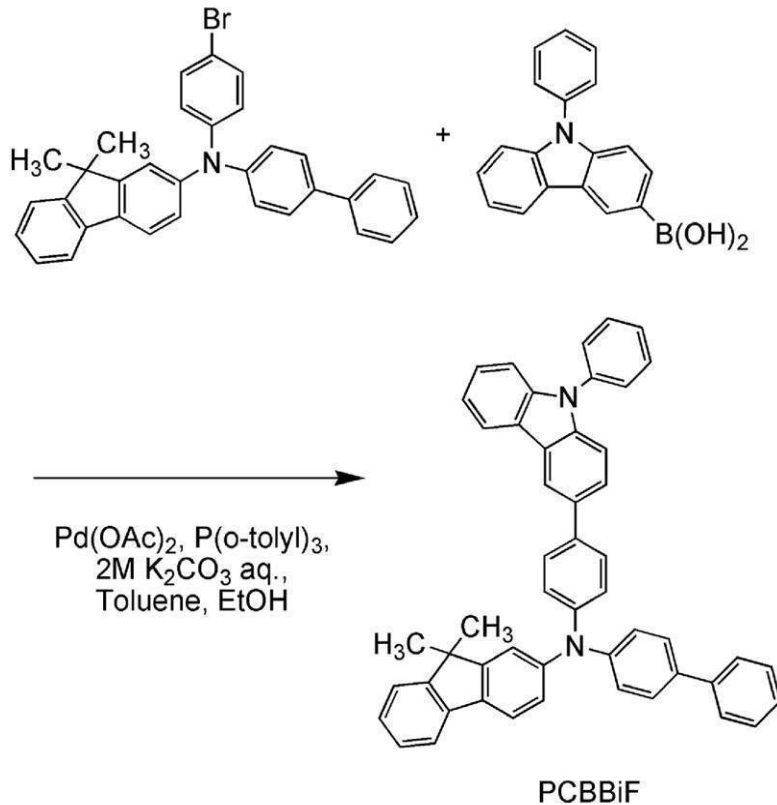
<ステップ3：PCBBiFの合成>

ステップ3の合成スキームを(x-3)に示す。

30

【0393】

## 【化 3 2】



10

20

## 【0394】

1 L三口フラスコにN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(4-プロモフェニル)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-アミン41g(80mmol)、9-フェニル-9H-カルバゾール-3-ボロン酸25g(88mmol)を入れ、トルエン240mLとエタノール80mLと炭酸カリウム水溶液(2.0mol/L)120mL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)27mg(0.12mmol)、トリ(オルト-トリル)ホスフィン154mg(0.5mmol)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、110で1.5時間撹拌した。

30

## 【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。

40

## 【0396】

得られた淡黄色粉末38gをトレインサブレ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。

50

## 【0398】

得られた淡黄色固体の<sup>1</sup>H NMRデータを以下に示す。

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz): δ = 1.45 (s, 6H), 7.18 (d, J = 8.0 Hz, 1H), 7.27 - 7.32 (m, 8H), 7.40 - 7.50 (m, 7H), 7.52 - 7.53 (m, 2H), 7.59 - 7.68 (m, 12H), 8.19 (d, J = 8.0 Hz, 1H), 8.36 (d, J = 1.1 Hz, 1H)。

## 【0399】

また、<sup>1</sup>H NMRチャートを図21に示す。なお、図21(B)は、図21(A)における6.00 ppm ~ 10.0 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

## 【0400】

また、PCBBiFのトルエン溶液の吸収スペクトルを図22(A)に、発光スペクトルを図22(B)にそれぞれ示す。また、PCBBiFの薄膜の吸収スペクトルを図23(A)に、発光スペクトルを図23(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計(日本分光株式会社製、V550型)を用いた。溶液は石英セルに入れ、薄膜は石英基板に蒸着してサンプルを作製して測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図22及び図23において横軸は波長(nm)、縦軸は強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合では350 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは、401 nm、420 nm(励起波長360 nm)であった。また、薄膜の場合では356 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは415 nm、436 nm(励起波長370 nm)であった。

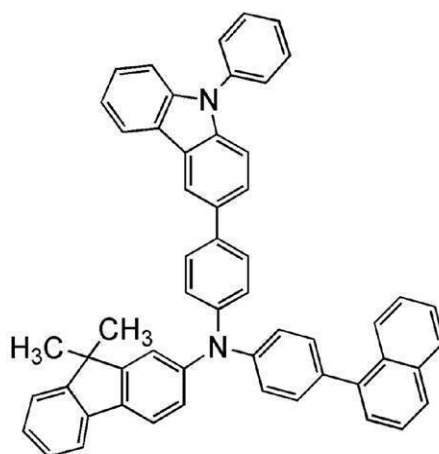
## 【0401】

(参考例2)

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

## 【0402】

## 【化33】



PCBNBF

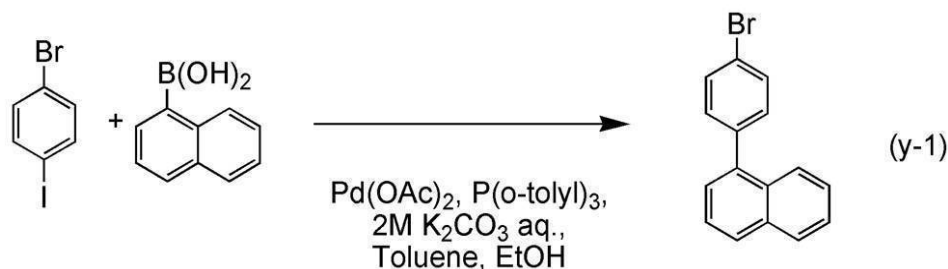
## 【0403】

<ステップ1: 1-(4-プロモフェニル)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】

## 【化34】



## 【0405】

10

3 L三口フラスコに、1-ナフタレンボロン酸47 g (0.28 mol)と、4-ブロモヨードベンゼン82 g (0.29 mol)を加え、トルエン750 mLと、エタノール250 mL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 mol/L)415 mL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 (14 mmol)と、酢酸パラジウム(II)0.7 g (2.8 mmol)を加えた。この混合物を窒素気流下、90 で1時間撹拌した。

## 【0406】

20

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

30

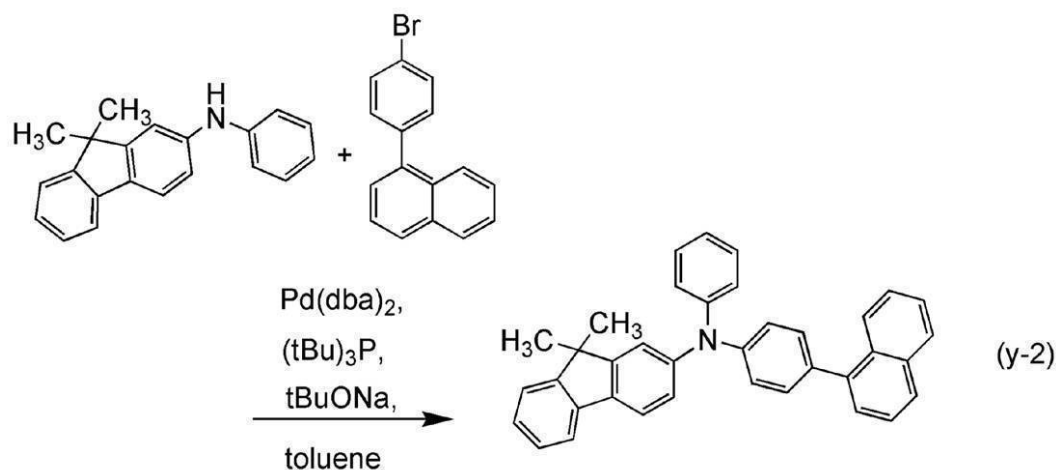
## 【0408】

<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-9H-フルオレン-2-アミンの合成>

ステップ2の合成スキームを(y-2)に示す。

## 【0409】

## 【化35】



40

## 【0410】

50

1 L三口フラスコに、9,9-ジメチル-N-フェニル-9H-フルオレン-2-アミン40 g (0.14 mol)と、ナトリウムtert-ブトキシド40 g (0.42 mol)と、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)2.8 g (1.4 mmol)を入れ、1-(4-プロモフェニル)ナフタレン44 g (0.15 mol)のトルエン溶液560 mLを加えた。この混合物を減圧しながら撹拌することで脱気し、脱気後、フラスコ内を窒素置換した。その後、トリ(tert-ブチル)ホスフィン(10 wt%ヘキサン溶液)14 mL(7.0 mmol)を加え、この混合物を窒素気流下、110 で2時間撹拌した。

【0411】

その後、混合物を室温まで冷やしてから、吸引濾過により固体を濾別した。得られた濾液を濃縮し、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53 g、収率78%で得た。

10

【0412】

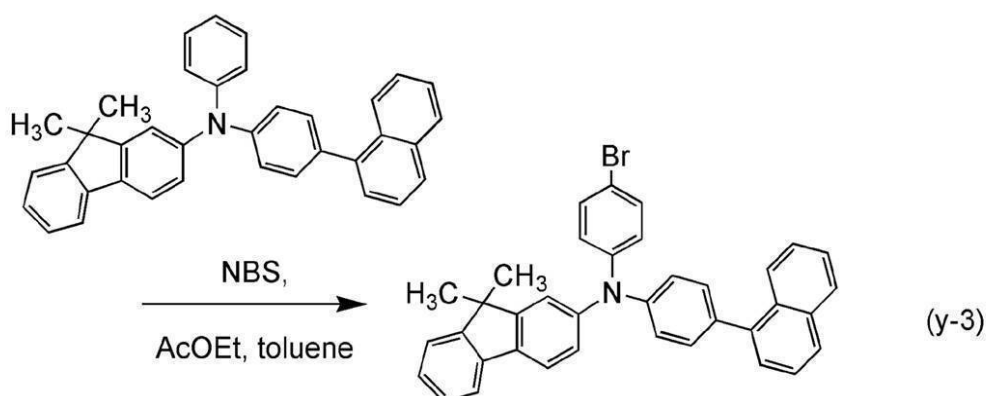
<ステップ3：N-(4-プロモフェニル)-9,9-ジメチル-N-[4-(1-ナフチル)フェニル]-9H-フルオレン-2-アミンの合成>

ステップ3の合成スキームを(y-3)に示す。

【0413】

【化36】

20



30

【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-9H-フルオレン-2-アミン59 g (0.12 mol)と、トルエン300 mL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300 mLを加えてから、N-プロモこはく酸イミド(略称; NBS)21 g (0.12 mol)を加えて、約2.5時間室温にて撹拌した。この混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液400 mLを加えて室温にて撹拌した。この混合物の有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で2回、飽和食塩水で2回洗浄した。その後、硫酸マグネシウムを加えて2時間静置し、乾燥した。この混合物を自然濾過して硫酸マグネシウムを除去した後、得られた濾液を濃縮し、黄色液体を得た。この液体をトルエンに溶かしてから、この溶液をセライト、アルミナ、フロリジールを通して精製し、淡黄色固体を得た。得られた淡黄色固体をトルエン/アセトニトリルを用いて再沈殿したところ、目的物の白色粉末を収量56 g、収率85%で得た。

40

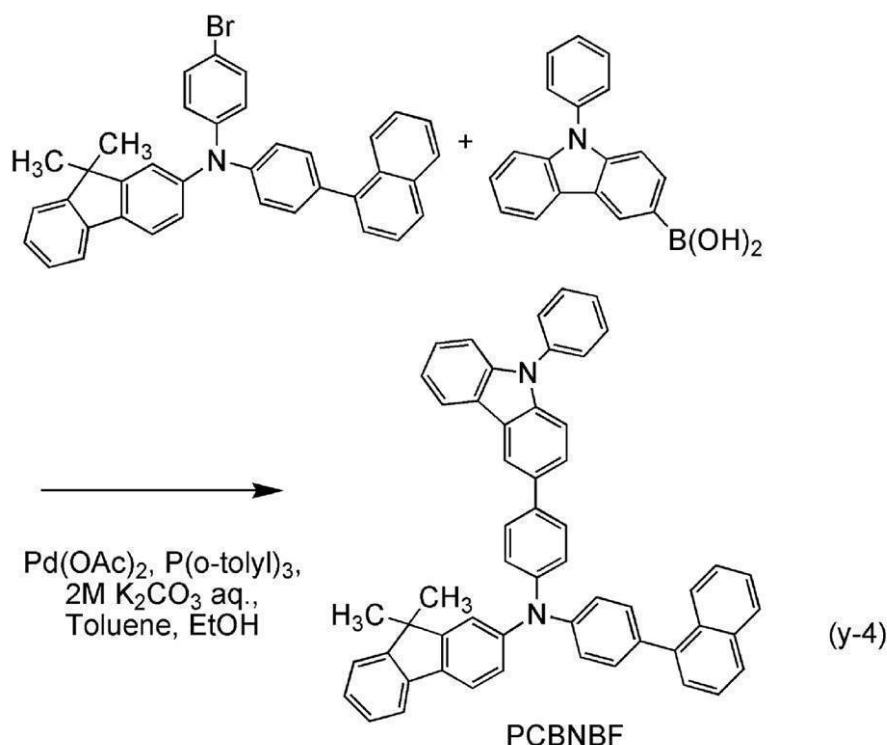
【0415】

<ステップ4：PCBNBFの合成>

ステップ4の合成スキームを(y-4)に示す。

【0416】

## 【化 3 7】



## 【0417】

1 L三口フラスコに、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]-9H-フルオレン-2-アミン51g(90mmol)と、9-フェニル-9H-カルバゾール-3-ボロン酸28g(95mmol)と、酢酸パラジウム(II)0.4mg(1.8mmol)と、トリ(オルト-トリル)ホスフィン1.4g(4.5mmol)と、トルエン300mLと、エタノール100mLと、炭酸カリウム水溶液(2.0mol/L)135mLを加えた。この混合物を減圧しながら攪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、90で1.5時間攪拌した。攪拌後、混合物を室温まで冷やしてから、吸引濾過により固体を回収した。得られた水層と有機層の混合物から有機層を取出し、濃縮して褐色固体を得た。この褐色固体をトルエン/酢酸エチル/エタノールを用いて再結晶を行い、目的物の白色粉末を得た。また、攪拌後に回収した固体を、再結晶にて得られた白色粉末とともに、トルエンに溶解してから、セライト、アルミナ、フロリジルを通して精製した。得られた溶液を濃縮し、トルエン/エタノールを用いて再結晶を行ったところ、目的の白色粉末を収量54g、収率82%で得た。

30

## 【0418】

得られた白色粉末51gをトレインサブレ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。

40

## 【0419】

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

## 【0420】

得られた物質の<sup>1</sup>H NMRデータを以下に示す。

<sup>1</sup>H NMR(CDCl<sub>3</sub>, 500MHz): = 1.50(s, 6H)、7.21(dd, J = 8.0Hz, 1.6Hz, 1H)、7.26-7.38(m, 8H)、7.41-7.44(m, 5H)、7.46-7.55(m, 6H)、7.59-7.69(m

50

、9 H)、7.85 (d、J = 8.0 Hz、1 H)、7.91 (dd、J = 7.5 Hz、1.7 Hz、1 H)、8.07 - 8.09 (m、1 H)、8.19 (d、J = 8.0 Hz、1 H)、8.37 (d、J = 1.7 Hz、1 H)。

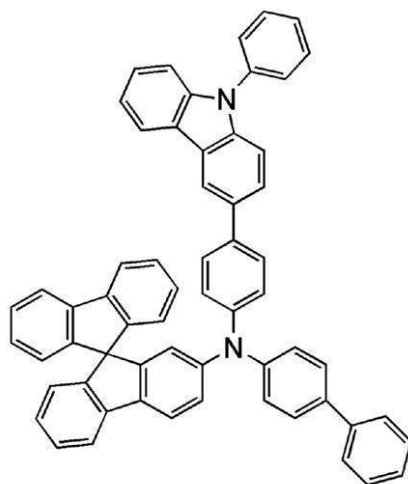
【0421】

(参考例3)

実施例3で用いた下記構造式(119)に示されるN-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン(略称:PCBBiSF)の合成方法について説明する。

【0422】

【化38】



(119)  
PCBBiSF

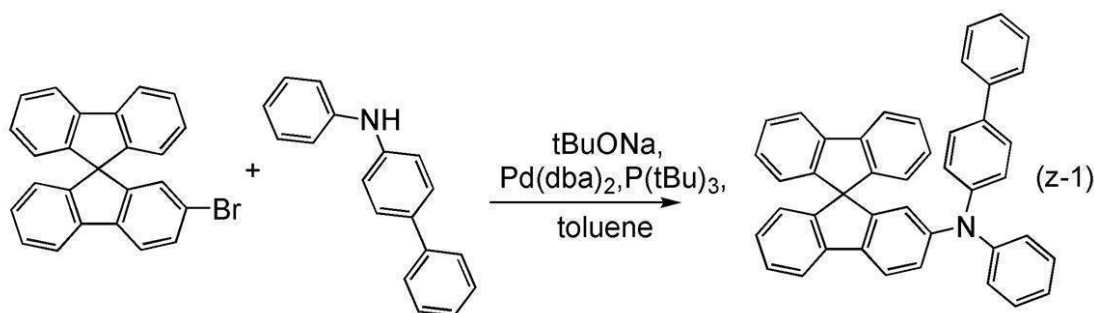
【0423】

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

ステップ1の合成スキームを(z-1)に示す。

【0424】

【化39】



【0425】

200 mL三口フラスコに、2-ブロモ-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]4.8 g (12 mmol)と、4-フェニル-ジフェニルアミン3.0 g (12 mmol)と、ナトリウムtert-ブトキシド3.5 g (37 mmol)を入れ、フラスコ内を窒素置換した。この混合物へ、脱水トルエン60 mLとトリ(tert-ブチル)ホスフィン(10%ヘキサン溶液)0.2 mLを加え、この混合物を減圧しながら攪拌することで脱気した。この混合物にビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)を70 mg (0.12 mmol)加え、窒素気流下にて110 °Cで8時間加熱攪拌した。攪拌後、この混合物に水を加え、水層をトルエンで抽出し、抽出溶液と有機層を合わせて、飽和食塩水で洗

10

20

30

40

50

浄した。有機層を硫酸マグネシウムにより乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して固体を得た。

【0426】

この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィーはトルエン：ヘキサン＝1：5、次いでトルエン：ヘキサン＝1：3を展開溶媒とし、得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られた固体をトルエン/酢酸エチルで再結晶し、白色固体を収量5.7g、収率83%で得た。

【0427】

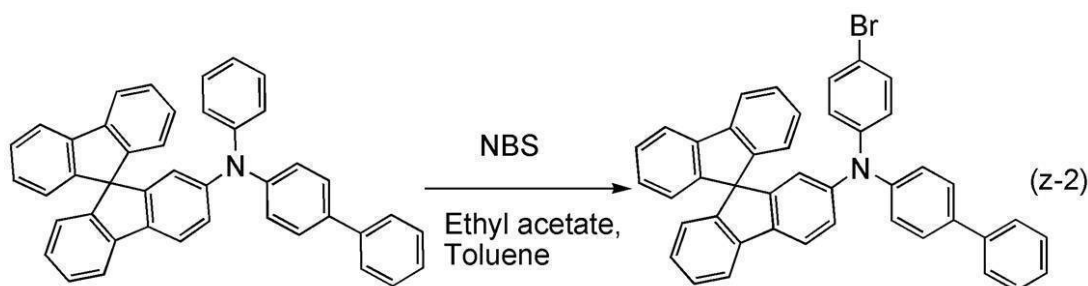
<ステップ2：N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(4-ブロモフェニル)-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミンの合成>

10

ステップ2の合成スキームを(z-2)に示す。

【0428】

【化40】



20

【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-プロモこはく酸イミド(略称；NBS)を加え、25時間攪拌した。攪拌後、この混合物を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した後、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して固体を得た。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィーはヘキサン、次いでトルエン：ヘキサン＝1：5を展開溶媒とし、得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られた固体を酢酸エチル/ヘキサンで再結晶し、白色固体を収量2.8g、収率83%で得た。

30

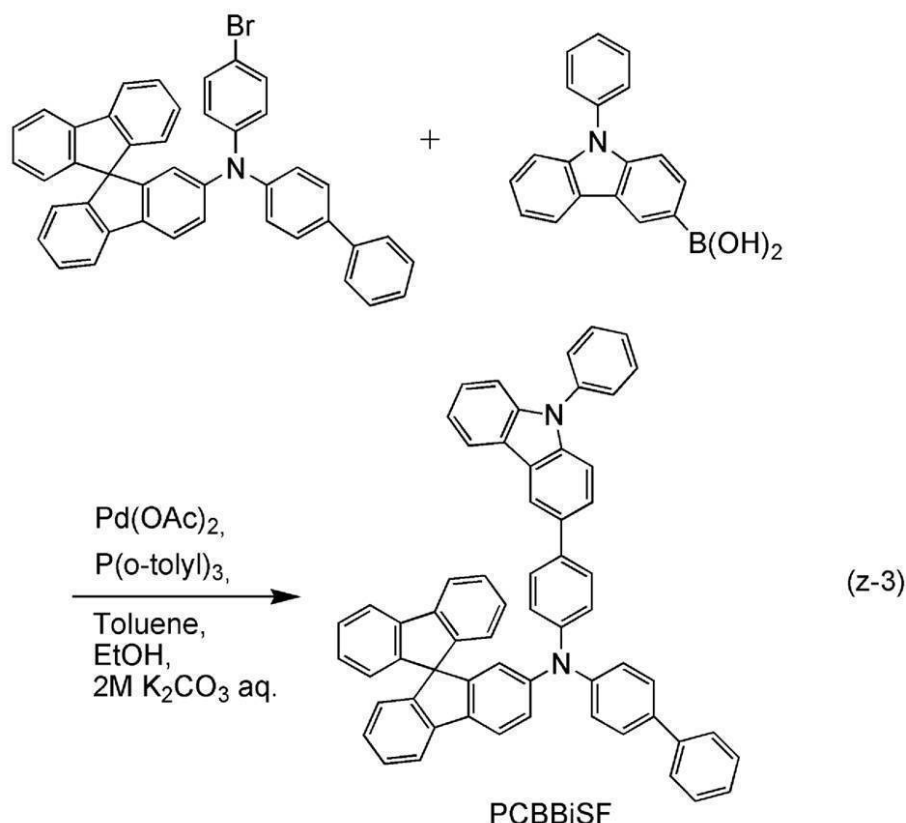
【0430】

<ステップ3：PCBBiSFの合成>

ステップ3の合成スキームを(z-3)に示す。

【0431】

## 【化 4 1】



10

20

## 【0432】

200 mL三口フラスコに、N-(1,1'-ビフェニル-4-イル)-N-(4-ブロモフェニル)-9,9'-スピロビ[9H-フルオレン]-2-アミン 2.4 g (3.8 mmol) と、9-フェニルカルバゾール-3-ボロン酸 1.3 g (4.5 mmol) と、トリ(オルト-トリル)ホスフィン 57 mg (0.19 mmol) と、炭酸カリウム 1.2 g (9.0 mmol) を入れた。この混合物に、水 5 mL と、トルエン 14 mL と、エタノール 7 mL を加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物に酢酸パラジウム 8 mg (0.038 mmol) を加え、窒素気流下、90 で 7.5 時間撹拌した。撹拌後、得られた混合物をトルエンで抽出した。得られた抽出溶液と有機層を合わせ、飽和食塩水で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。この混合物を自然濾過により濾別し、濾液を濃縮して固体を得た。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。カラムクロマトグラフィーはトルエン：ヘキサン = 1：2、次いでトルエン：ヘキサン = 2：3 を展開溶媒とし、得られたフラクションを濃縮して固体を得た。得られた固体を酢酸エチル/ヘキサンで再結晶し、目的物の白色固体を収量 2.8 g、収率 94% で得た。

30

## 【0433】

得られた固体 2.8 g をトレインサブレーション法により昇華精製した。圧力 2.9 Pa、アルゴン流量 5 mL/min の条件で、336 で加熱して行った。昇華精製後、淡黄色固体を収量 0.99 g、回収率 35% で得た。

40

## 【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  $^1\text{H}$  NMR データを以下に示す。

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

50

6.84 (d、J1 = 7.5 Hz、2H)、7.04 - 7.11 (m、5H)、7.13 - 7.17 (m、3H)、7.28 - 7.45 (m、12H)、7.46 - 7.53 (m、5H)、7.57 - 7.64 (m、5H)、7.74 - 7.77 (m、4H)、8.17 (d、J1 = 7.5 Hz、1H)、8.27 (d、J1 = 1.5 Hz、1H)。

【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6.50 ppm ~ 8.50 ppmの範囲を拡大して表したチャートである。

【0437】

また、PCBBiSFのトルエン溶液の吸収スペクトルを図25(A)に、発光スペクトルを図25(B)にそれぞれ示す。また、PCBBiSFの薄膜の吸収スペクトルを図26(A)に、発光スペクトルを図26(B)にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定方法は参考例1と同様である。図25及び図26において横軸は波長(nm)、縦軸は強度(任意単位)を表す。トルエン溶液の場合では352 nm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357 nm付近に吸収ピークが見られ、発光波長のピークは424 nm(励起波長378 nm)であった。

【符号の説明】

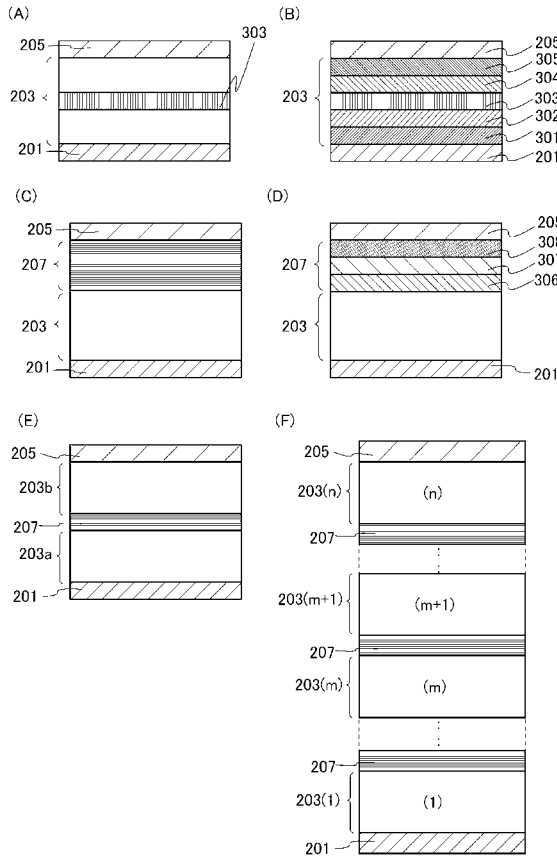
【0438】

201	第1の電極	
203	EL層	20
203a	第1のEL層	
203b	第2のEL層	
205	第2の電極	
207	中間層	
213	発光層	
221	第1の有機化合物	
222	第2の有機化合物	
223	燐光性化合物	
301	正孔注入層	
302	正孔輸送層	30
303	発光層	
304	電子輸送層	
305	電子注入層	
306	電子注入バッファ層	
307	電子リレー層	
308	電荷発生領域	
401	支持基板	
403	発光素子	
405	封止基板	
407	封止材	40
409a	第1の端子	
409b	第2の端子	
411a	光取り出し構造	
411b	光取り出し構造	
413	平坦化層	
415	空間	
417	補助配線	
419	絶縁層	
421	第1の電極	
423	EL層	50

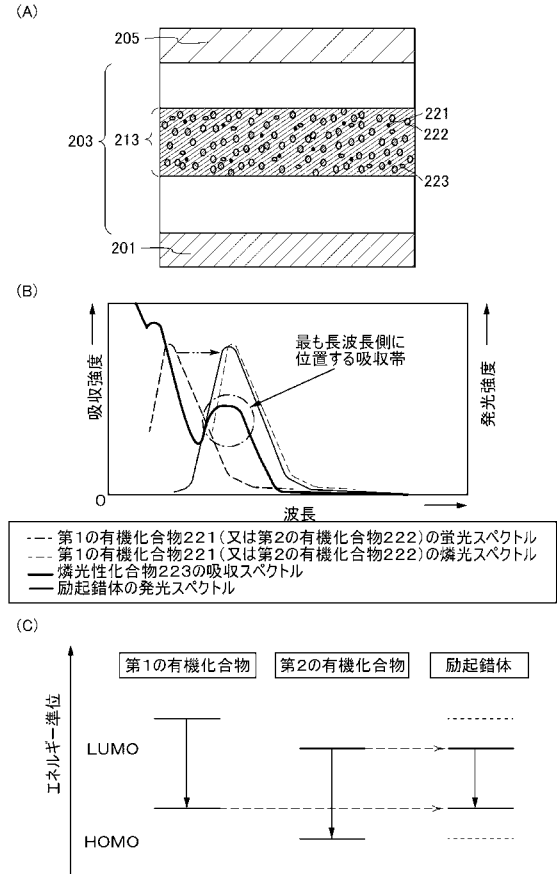
4 2 5	第 2 の電極	
5 0 1	支持基板	
5 0 3	発光素子	
5 0 5	封止基板	
5 0 7	封止材	
5 0 9	F P C	
5 1 1	絶縁層	
5 1 3	絶縁層	
5 1 5	空間	
5 1 7	配線	10
5 1 9	隔壁	
5 2 1	第 1 の電極	
5 2 3	E L 層	
5 2 5	第 2 の電極	
5 3 1	ブラックマトリクス	
5 3 3	カラーフィルタ	
5 3 5	オーバーコート層	
5 4 1 a	トランジスタ	
5 4 1 b	トランジスタ	
5 4 2	トランジスタ	20
5 4 3	トランジスタ	
5 5 1	発光部	
5 5 2	駆動回路部	
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	
1 1 1 3	発光層	30
1 1 1 4	電子輸送層	
1 1 1 5	電子注入層	
7 1 0 0	テレビジョン装置	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 2	表示部	
7 1 0 3	スタンド	
7 1 1 1	リモコン操作機	
7 2 0 0	コンピュータ	
7 2 0 1	本体	
7 2 0 2	筐体	40
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	
7 3 0 0	携帯型ゲーム機	
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	
7 3 0 3 b	表示部	50

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	10
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	操作キー	20
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	30

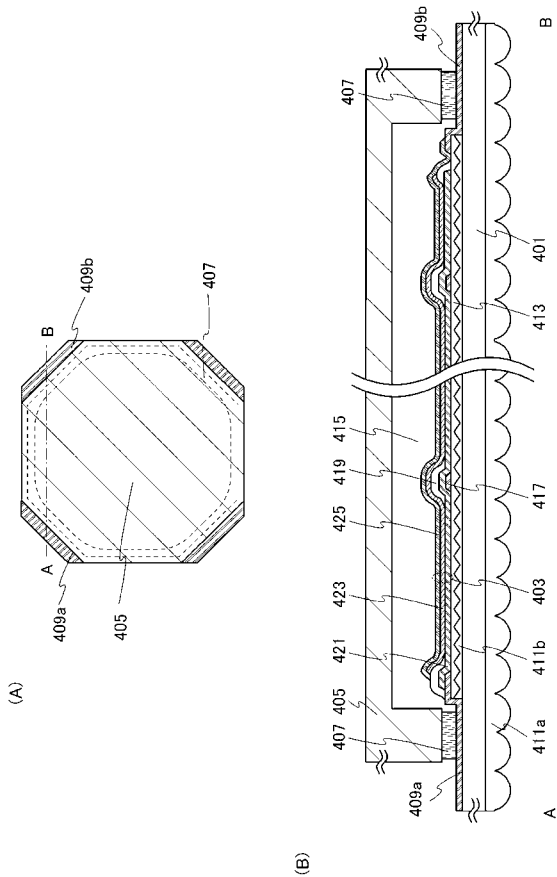
【 図 1 】



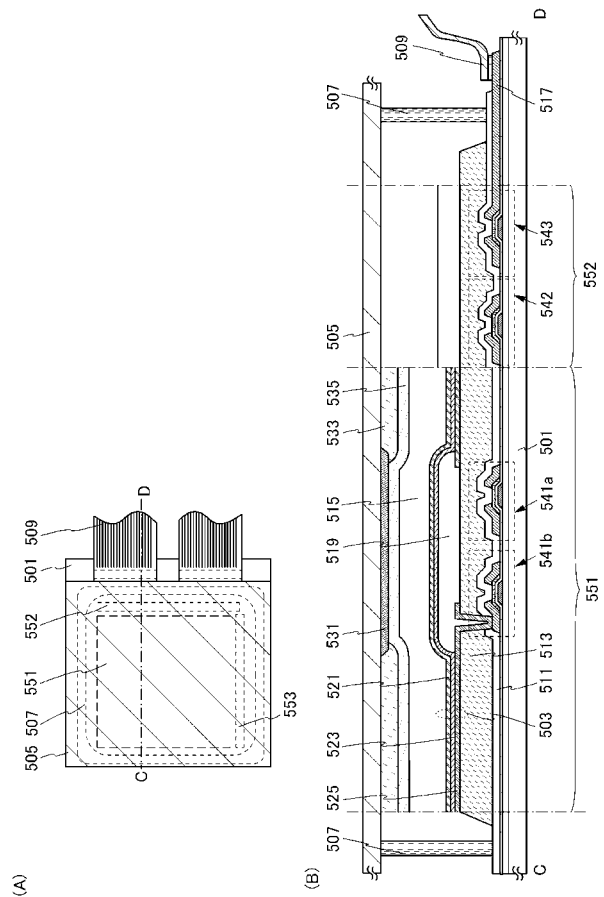
【 図 2 】



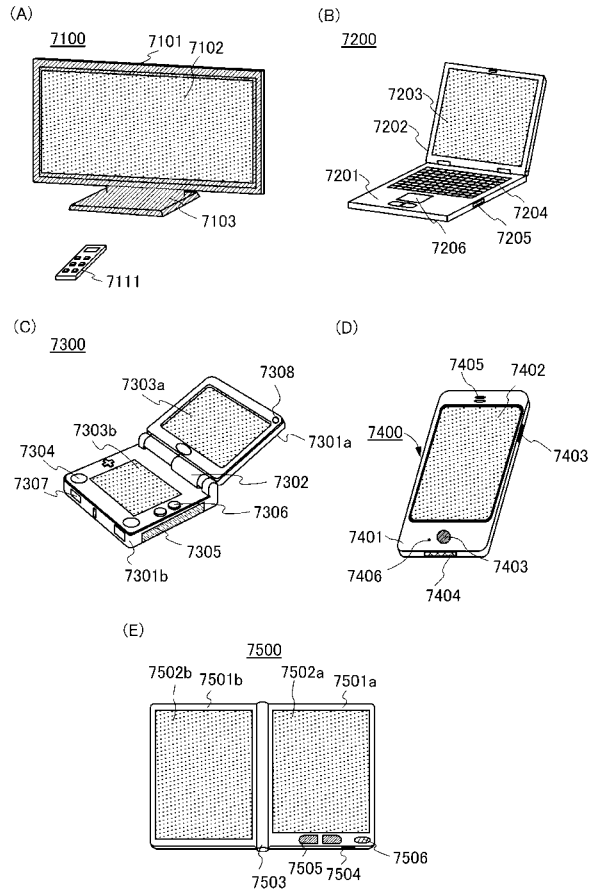
【 図 3 】



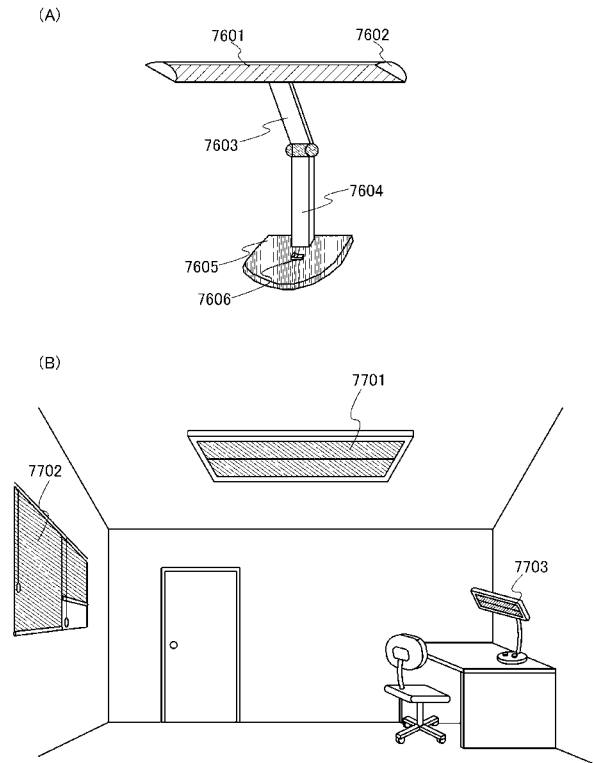
【 図 4 】



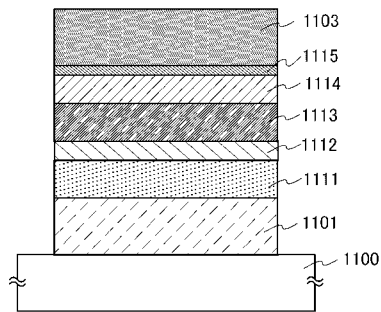
【図5】



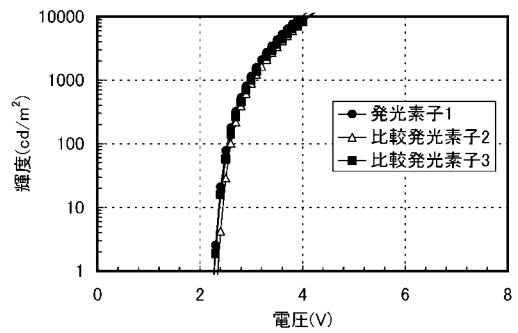
【図6】



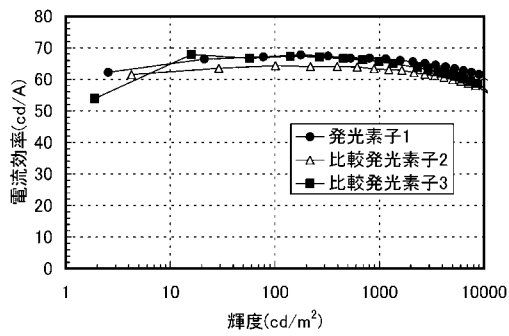
【図7】



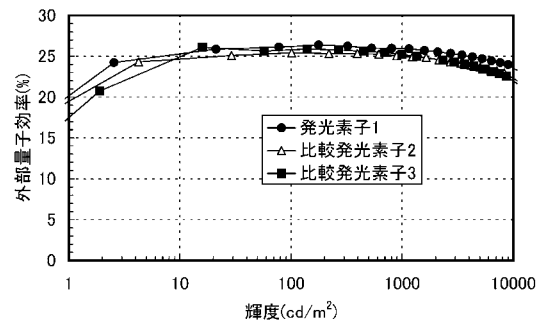
【図9】



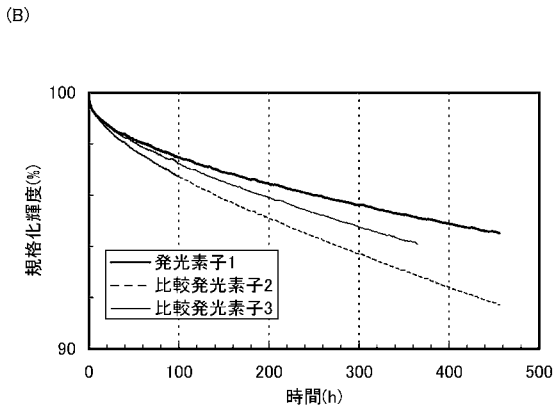
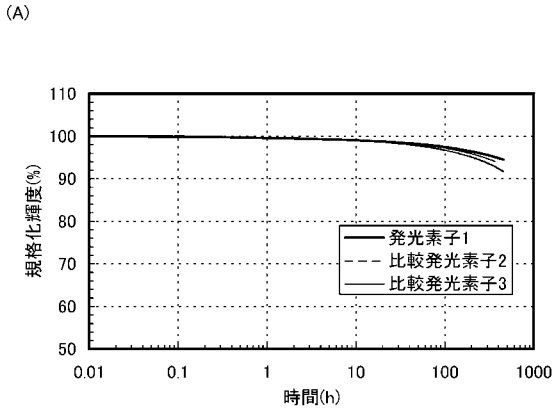
【図8】



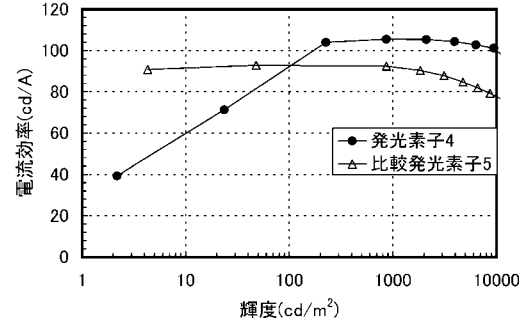
【図10】



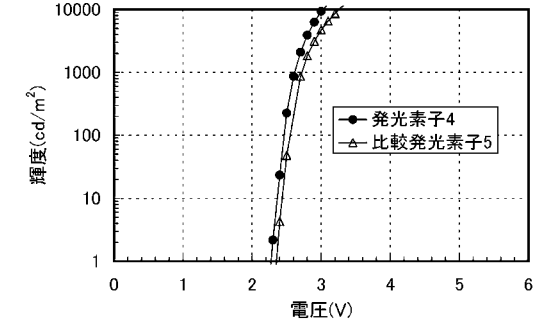
【 図 1 1 】



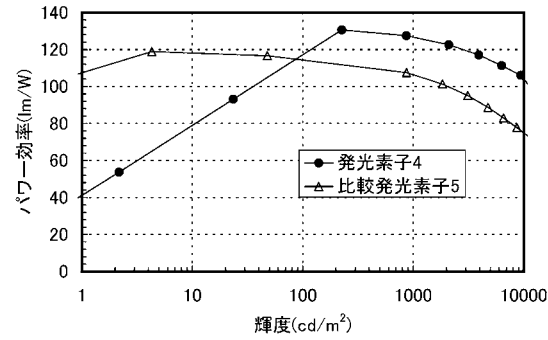
【 図 1 2 】



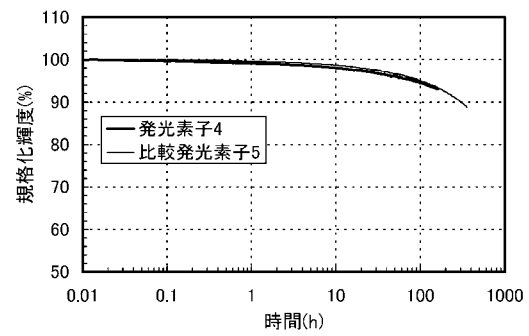
【 図 1 3 】



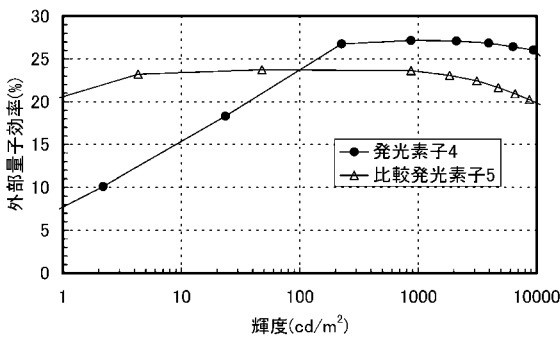
【 図 1 4 】



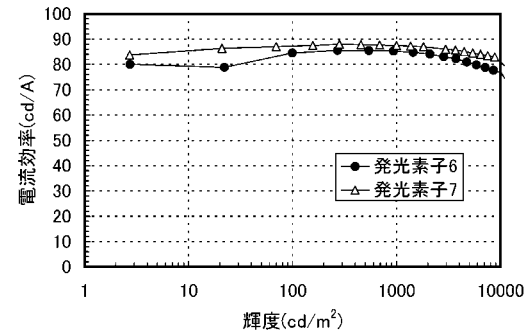
【 図 1 6 】



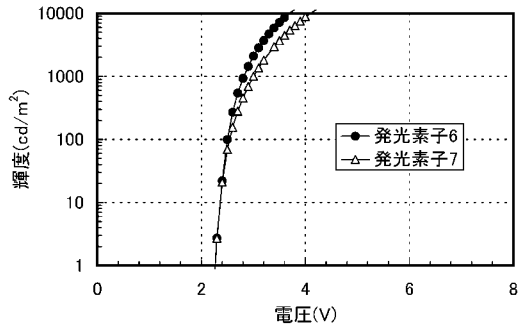
【 図 1 5 】



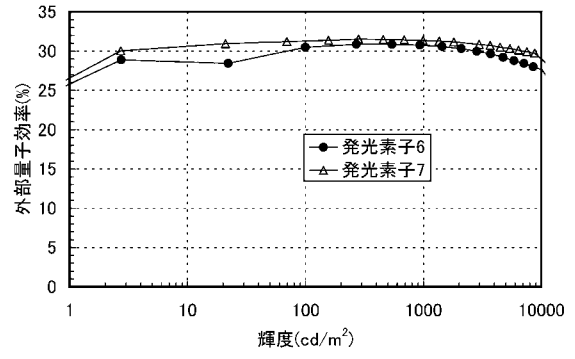
【 図 1 7 】



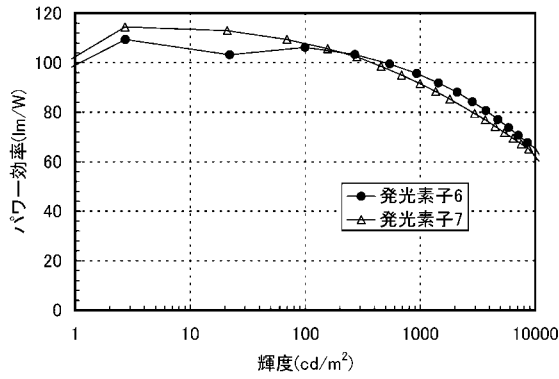
【 図 1 8 】



【 図 2 0 】

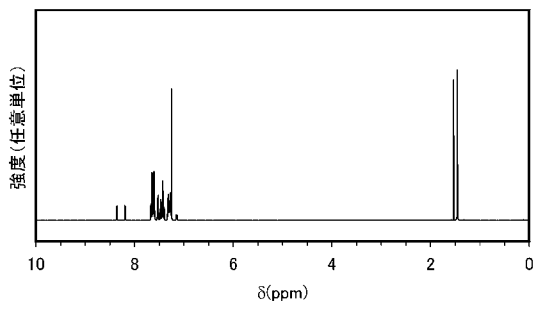


【 図 1 9 】

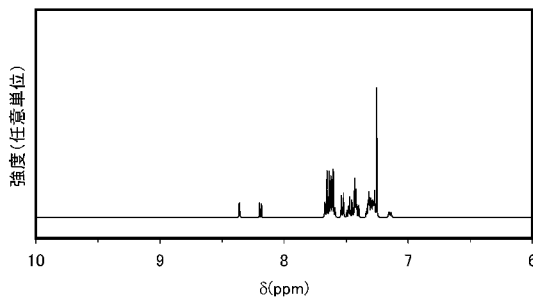


【 図 2 1 】

(A)

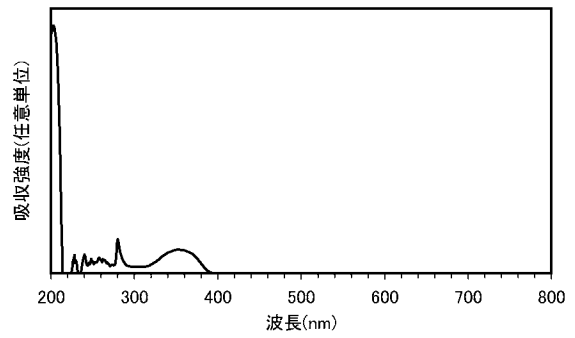


(B)

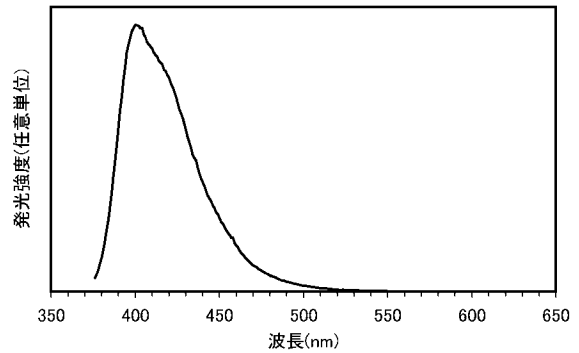


【 図 2 2 】

(A)

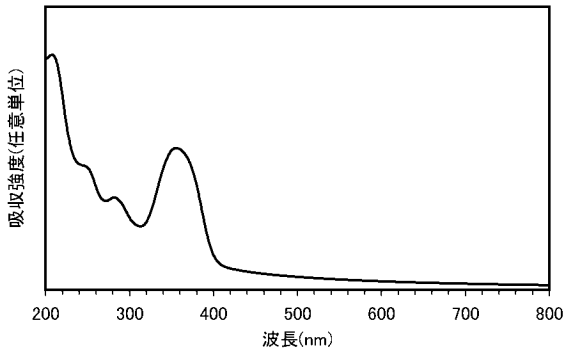


(B)

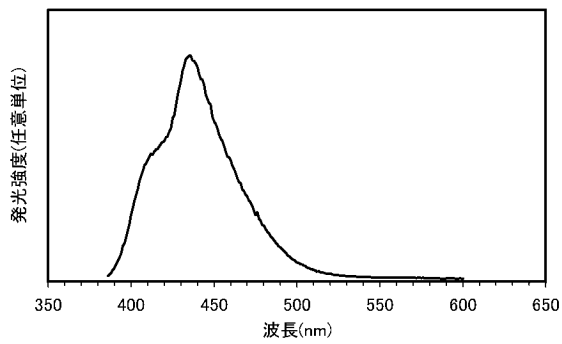


【 図 2 3 】

(A)

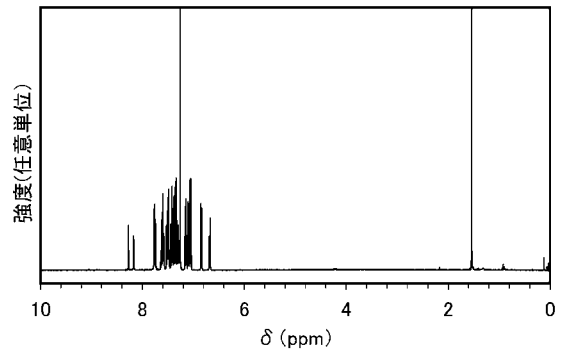


(B)

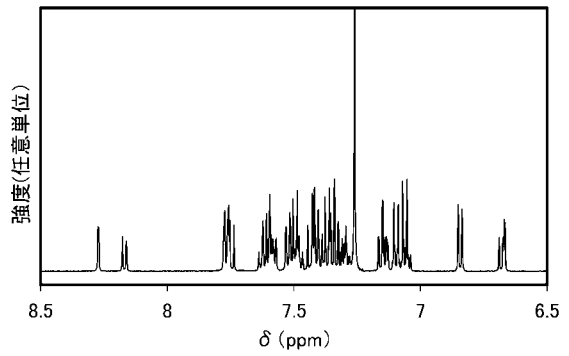


【 図 2 4 】

(A)

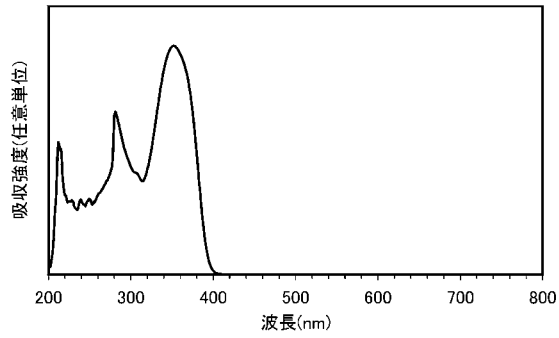


(B)

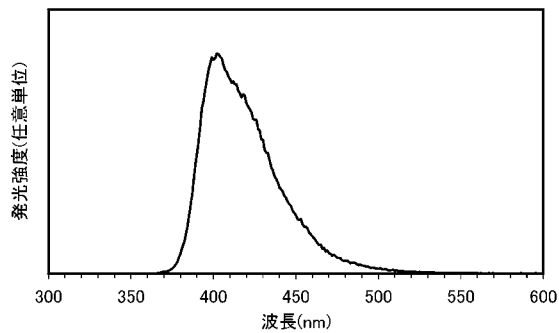


【 図 2 5 】

(A)

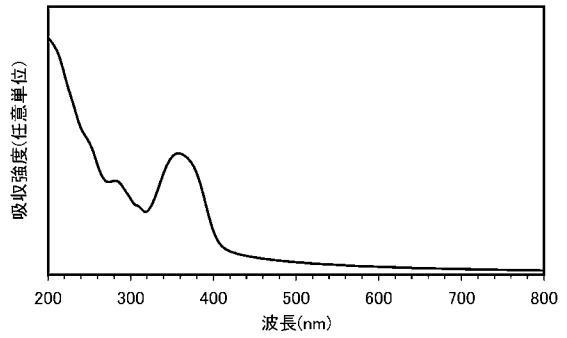


(B)

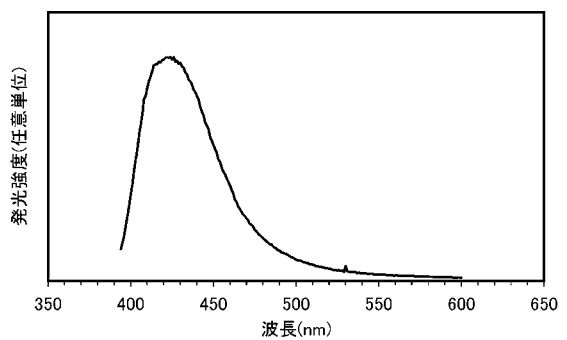


【 図 2 6 】

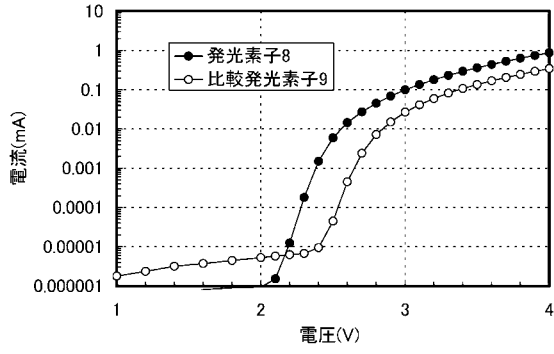
(A)



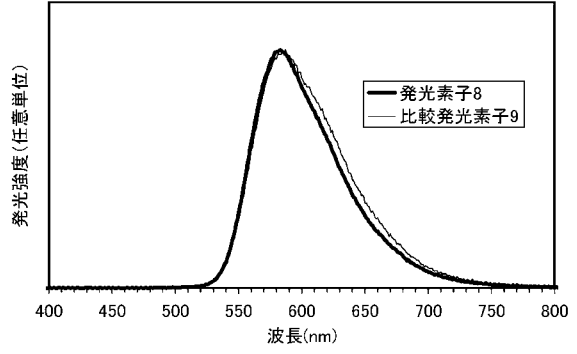
(B)



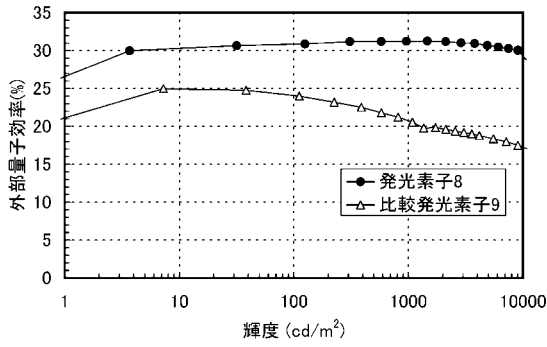
【 図 2 7 】



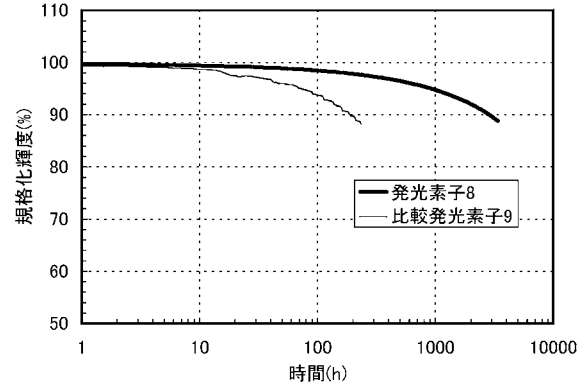
【 図 2 9 】



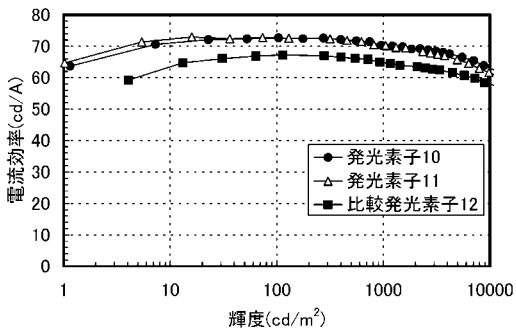
【 図 2 8 】



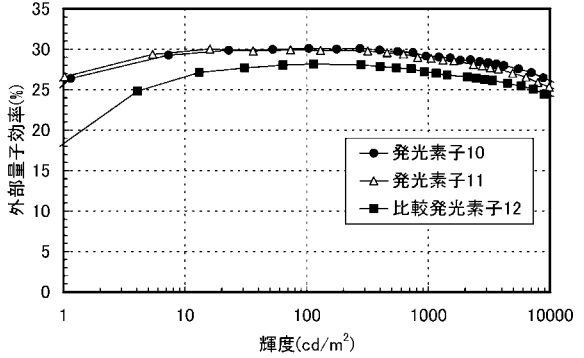
【 図 3 0 】



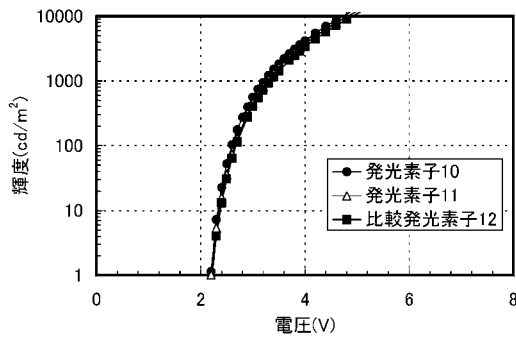
【 図 3 1 】



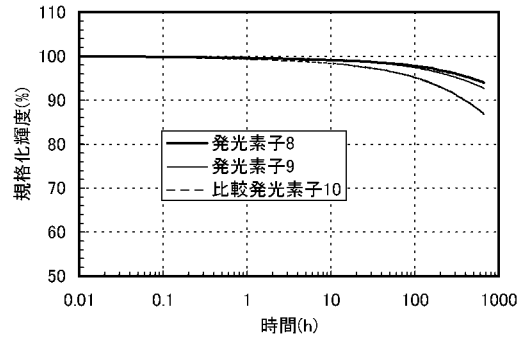
【 図 3 3 】



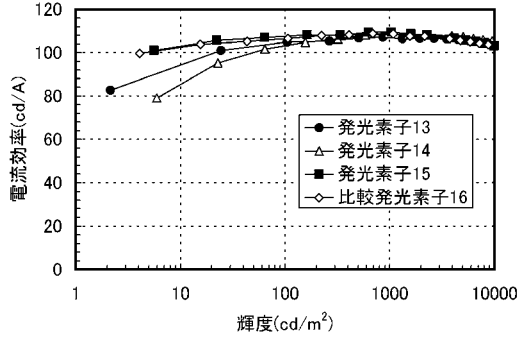
【 図 3 2 】



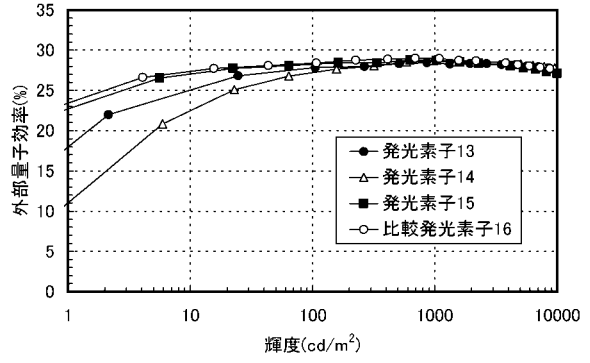
【 図 3 4 】



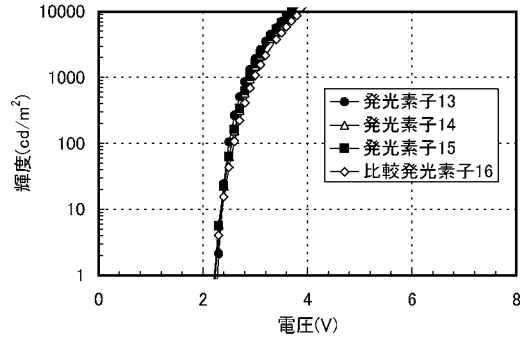
【 図 3 5 】



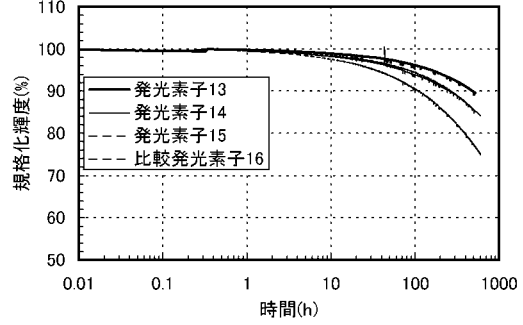
【 図 3 7 】



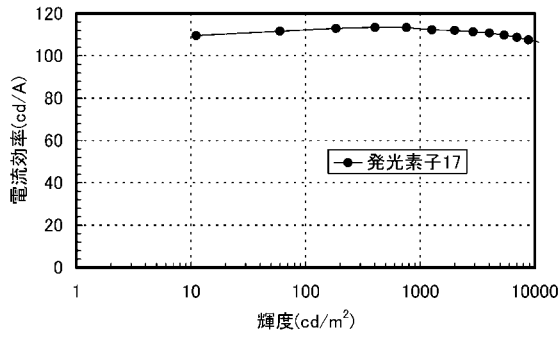
【 図 3 6 】



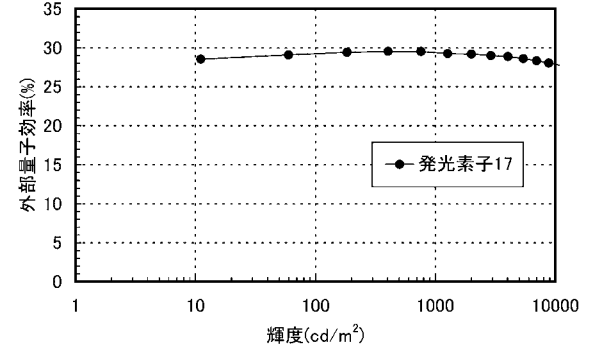
【 図 3 8 】



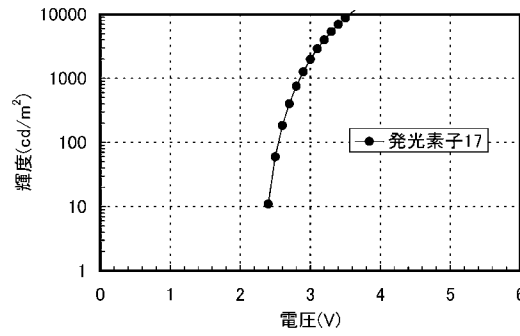
【 図 3 9 】



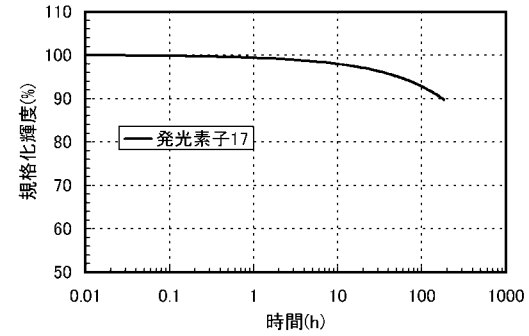
【 図 4 1 】



【 図 4 0 】



【 図 4 2 】



---

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 CC21 DD53 DD58 DD68 DD69 DD71

DD72 DD73 DD78 FF04 FF14 FF18

4C204 BB05 CB25 EB01 FB08 GB13

专利名称(译)	发光器件和发光器件用化合物		
公开(公告)号	<a href="#">JP2019024115A</a>	公开(公告)日	2019-02-14
申请号	JP2018197509	申请日	2018-10-19
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社半导体能源研究所		
申请(专利权)人(译)	半导体能源研究所有限公司		
[标]发明人	濱田孝夫 瀬尾広美 安部寛太 竹田恭子 瀬尾哲史		
发明人	濱田 孝夫 瀬尾 広美 安部 寛太 竹田 恭子 瀬尾 哲史		
IPC分类号	H01L51/50 C07D209/86		
CPC分类号	C07D209/86 H01L51/0072 H01L51/5016 H01L51/5024 H01L2251/5384 C09K11/025 C09K11/06 C09K2211/1044 H01L51/0052 H01L51/0056 H01L51/0058 H01L51/006 H01L51/0061 H01L51/0067 H01L51/0074 H01L51/5056 H01L51/5072 C09K2211/1007 C09K2211/185 H01L51/0085		
FI分类号	H05B33/22.D H05B33/14.B C07D209/86.CSP		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD58 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD72 3K107/DD73 3K107/DD78 3K107/FF04 3K107/FF14 3K107/FF18 4C204/BB05 4C204/CB25 4C204/EB01 4C204/FB08 4C204/GB13		
优先权	2012172944 2012-08-03 JP 2013045127 2013-03-07 JP		
其他公开文献	JP6606249B2		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

提供了具有长寿命的发光器件。提供一种在高亮度区域显示高发光效率的发光装置 要做。在一对电极之间设置发光层，该发光层包括第一有机化合物和第二有机化合物。第一有机化合物包括有机化合物和磷光化合物，由通式 (G0) 表示。第一有机化合物的分子量为500以上且2000以下的化合物，第二有机化合物的有机化合物是发光器件，是具有电子传输性质的化合物。通式 (G0) 中的Ar1 并且，Ar2分别独立地为苄基，螺苄基或联苯基。基团，且Ar3表示含有唑啉骨架的取代基。[选择图] 无

(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2019-24115  
(P2019-24115A)  
(43) 公開日 平成31年2月14日 (2019.2.14)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50	H05B 33/22	3K107
C07D 209/86	H05B 33/14	4C204
	C07D 209/86	CSP

審査請求 有 請求項の数 20 O L (全 87 頁)

(21) 出願番号	特願2018-197509 (P2018-197509)	(71) 出願人	000153878 株式会社半導体エネルギー研究所
(22) 出願日	平成30年10月19日 (2018.10.19)		神奈川県厚木市長谷398番地
(62) 分割の表示	特願2017-247440 (P2017-247440) の分割	(72) 発明者	濱田 孝夫 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
原出願日	平成25年7月29日 (2013.7.29)	(72) 発明者	瀬尾 広美 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
(31) 優先権主張番号	特願2012-172944 (P2012-172944)	(72) 発明者	安部 寛太 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
(32) 優先日	平成24年8月3日 (2012.8.3)	(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
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
(31) 優先権主張番号	特願2013-45127 (P2013-45127)		
(32) 優先日	平成25年3月7日 (2013.3.7)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

(54) 【発明の名称】 発光装置および発光装置用化合物

最終頁に続く