

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6800295号  
(P6800295)

(45) 発行日 令和2年12月16日(2020.12.16)

(24) 登録日 令和2年11月26日(2020.11.26)

(51) Int.Cl. F I  
H O 1 L 51/50 (2006.01) H O 5 B 33/14 B

請求項の数 10 (全 70 頁)

(21) 出願番号	特願2019-161042 (P2019-161042)	(73) 特許権者	000153878
(22) 出願日	令和1年9月4日(2019.9.4)		株式会社半導体エネルギー研究所
(62) 分割の表示	特願2016-149685 (P2016-149685) の分割		神奈川県厚木市長谷398番地
原出願日	平成24年2月14日(2012.2.14)	(72) 発明者	下垣 智子
(65) 公開番号	特開2019-204980 (P2019-204980A)		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
(43) 公開日	令和1年11月28日(2019.11.28)	(72) 発明者	瀬尾 哲史
審査請求日	令和1年10月1日(2019.10.1)		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2011-31426 (P2011-31426)	(72) 発明者	大澤 信晴
(32) 優先日	平成23年2月16日(2011.2.16)		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・地域又は機関	日本国(JP)	(72) 発明者	吉住 英子
			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】 発光素子、発光装置、電子機器、及び照明装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一対の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、  
前記ホスト材料は、複素環化合物と、芳香族アミン化合物とを混合した材料であり、  
前記ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、前記ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.2 eV以内であり、

前記ゲスト材料は燐光性化合物である発光素子

(ただし、前記複素環化合物がC O 1 1 I Iであり、前記芳香族アミン化合物がP C B A 1 B Pであり、前記ゲスト材料がI r ( d m F p p r )<sub>2</sub> ( p i c )である組み合わせ、  
前記複素環化合物がB A l qであり、前記ゲスト材料がI r ( p p y )<sub>3</sub>である組み合わせ、及び、

前記複素環化合物がT P B Iであり、前記芳香族アミン化合物がT C T Aであり、前記ゲスト材料がf a c - I r ( F<sub>2</sub> p p y )<sub>3</sub>である組み合わせ、を除く)。

【請求項2】

一対の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、  
前記ホスト材料は、複素環化合物と、芳香族アミン化合物とを混合した材料であり、  
前記ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、前記ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.1 eV以内であり、

前記ゲスト材料は燐光性化合物である発光素子  
 (ただし、前記複素環化合物がCO11IIであり、前記芳香族アミン化合物がPCBA  
 1BPであり、前記ゲスト材料がIr(dmFppr)<sub>2</sub>(pic)である組み合わせ、  
 前記複素環化合物がBA1qであり、前記ゲスト材料がIr(ppy)<sub>3</sub>である組み合  
 わせ、及び、

前記複素環化合物がTPBIであり、前記芳香族アミン化合物がCTTAであり、前記  
 ゲスト材料がfac-Ir(F<sub>2</sub>ppy)<sub>3</sub>である組み合わせ、を除く)。

【請求項3】

一対の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、  
 前記ホスト材料は、複素環化合物と、カルバゾール化合物とを混合した材料であり、  
 前記ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、前記ゲスト材料の吸収ス  
 ペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.2eV以内  
 であり、

10

前記ゲスト材料は燐光性化合物である発光素子  
 (ただし、前記複素環化合物がCO11IIであり、前記カルバゾール化合物がPCBA  
 1BPであり、前記ゲスト材料がIr(dmFppr)<sub>2</sub>(pic)である組み合わせ、  
 前記複素環化合物がBA1qであり、前記ゲスト材料がIr(ppy)<sub>3</sub>である組み合  
 わせ、

前記複素環化合物がTPBIであり、前記カルバゾール化合物がCTTAであり、前記  
 ゲスト材料がfac-Ir(F<sub>2</sub>ppy)<sub>3</sub>である組み合わせ、及び、

20

前記複素環化合物がPBDであり、前記カルバゾール化合物がPVKである組み合わせ  
 を除く)。

【請求項4】

一対の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、  
 前記ホスト材料は、複素環化合物と、カルバゾール化合物とを混合した材料であり、  
 前記ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、前記ゲスト材料の吸収ス  
 ペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.1eV以内  
 であり、

前記ゲスト材料は燐光性化合物である発光素子  
 (ただし、前記複素環化合物がCO11IIであり、前記カルバゾール化合物がPCBA  
 1BPであり、前記ゲスト材料がIr(dmFppr)<sub>2</sub>(pic)である組み合わせ、  
 前記複素環化合物がBA1qであり、前記ゲスト材料がIr(ppy)<sub>3</sub>である組み合  
 わせ、

30

前記複素環化合物がTPBIであり、前記カルバゾール化合物がCTTAであり、前記  
 ゲスト材料がfac-Ir(F<sub>2</sub>ppy)<sub>3</sub>である組み合わせ、及び、

前記複素環化合物がPBDであり、前記カルバゾール化合物がPVKである組み合わせ  
 を除く)。

【請求項5】

請求項1乃至請求項4のいずれか一項において、  
 前記発光スペクトルは、蛍光スペクトルである発光素子。

40

【請求項6】

請求項1乃至請求項5のいずれか一項において、  
 前記ゲスト材料は、有機金属錯体である発光素子。

【請求項7】

請求項1乃至請求項6のいずれか一項において、  
 前記ゲスト材料は、イリジウム錯体である発光素子。

【請求項8】

請求項1乃至請求項7のいずれか一項に記載の発光素子を有する発光装置。

【請求項9】

請求項8に記載の発光装置を備えた電子機器。

50

## 【請求項 10】

請求項 8 に記載の発光装置を備えた照明装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

有機エレクトロルミネッセンス (EL: Electroluminescence) 現象を利用した発光素子 (以下、有機 EL 素子とも記す) に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

有機 EL 素子の研究開発が盛んに行われている。有機 EL 素子の基本的な構成は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層 (以下、発光層とも記す) を挟んだものであり、薄型軽量化できる・入力信号に高速に応答できる・直流低電圧駆動が可能であるなどの特性から、次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。また、このような発光素子を用いたディスプレイは、コントラストや画質に優れ、視野角が広いという特徴も有している。さらに、有機 EL 素子は面光源であるため、液晶ディスプレイのバックライトや照明等の光源としての応用も考えられている。

10

## 【0003】

有機 EL 素子の発光機構は、キャリア注入型である。すなわち、電極間に発光層を挟んで電圧を印加することにより、電極から注入された電子およびホール (正孔) が再結合して発光物質が励起状態となり、その励起状態が基底状態に戻る際に発光する。そして、励起状態の種類としては、一重項励起状態 ( $S^*$ ) と三重項励起状態 ( $T^*$ ) が可能である。また、発光素子におけるその統計的な生成比率は、 $S^* : T^* = 1 : 3$  であると考えられている。

20

## 【0004】

発光性の有機化合物は通常、基底状態が一重項状態である。したがって、一重項励起状態 ( $S^*$ ) からの発光は、同じスピン多重度間の電子遷移であるため蛍光と呼ばれる。一方、三重項励起状態 ( $T^*$ ) からの発光は、異なるスピン多重度間の電子遷移であるため燐光と呼ばれる。ここで、蛍光を発する化合物 (以下、蛍光性化合物と記す) は室温において、通常、燐光は観測されず蛍光のみが観測される。したがって、蛍光性化合物を用いた発光素子における内部量子効率 (注入したキャリアに対して発生するフォトンの割合) の理論的限界は、 $S^* : T^* = 1 : 3$  であることを根拠に 25% とされている。

30

## 【0005】

一方、燐光を発する化合物 (以下、燐光性化合物と記す) を用いれば、内部量子効率は 100% にまで理論上は可能となる。つまり、蛍光性化合物に比べて高い発光効率を得ることが可能になる。このような理由から、高効率な発光素子を実現するために、燐光性化合物を用いた発光素子の開発が近年盛んに行われている。特に、燐光性化合物としては、その燐光量子収率の高さゆえに、イリジウム等を中心金属とする有機金属錯体が注目されており、例えば、特許文献 1 には、イリジウムを中心金属とする有機金属錯体が燐光材料として開示されている。

## 【0006】

上述した燐光性化合物を用いて発光素子の発光層を形成する場合、燐光性化合物の濃度消光や三重項 - 三重項消滅による消光を抑制するために、他の化合物からなるマトリクス中に該燐光性化合物が分散するようにして形成することが多い。この時、マトリクスとなる化合物はホスト材料、燐光性化合物のようにマトリクス中に分散される化合物はゲスト材料と呼ばれる。

40

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0007】

【特許文献 1】国際公開第 00 / 70655 号パンフレット

## 【発明の概要】

50

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0008】

しかし、一般に、有機EL素子における光取り出し効率は20%~30%程度とされている。したがって、反射電極や透明電極による光の吸収を考慮すると、燐光性化合物を用いた発光素子の外部量子効率の限界は、25%程度と考えられている。

## 【0009】

そこで、本発明の一態様は、外部量子効率が高い発光素子を提供することを目的の一とする。また、本発明の一態様は、寿命の長い発光素子を提供することを目的の一とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0010】

本発明の一態様は、一对の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルとが重なり、ホスト材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発する発光素子である。

## 【0011】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、ホスト材料の発光スペクトルと、ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長（低エネルギー）側の吸収帯とが重なり、ホスト材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発する発光素子である。

## 【0012】

上記発光素子において、最も長波長側の吸収帯が、三重項MLCT(Metal to Ligand Charge Transfer)遷移に由来する吸収を含むことが好ましい。

## 【0013】

上記発光素子において、ホスト材料の発光スペクトルとしては、蛍光スペクトルが好ましい。

## 【0014】

上記発光素子において、ゲスト材料は、有機金属錯体であることが好ましく、イリジウム錯体であることが特に好ましい。

## 【0015】

上記発光素子において、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。

## 【0016】

上記発光素子において、吸収スペクトルの最も長波長側の吸収帯のモル吸光係数が、 $5000\text{ M}^{-1}\cdot\text{cm}^{-1}$ 以上であることが好ましい。

## 【発明の効果】

## 【0017】

本発明の一態様では、外部量子効率が高い発光素子を提供することができる。また、本発明の一態様では、寿命の長い発光素子を提供することができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0018】

【図1】実施例1に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【図2】実施例の発光素子の構成を示す図。

【図3】実施例2の発光素子の電流密度-輝度特性を示す図。

【図4】実施例2の発光素子の電圧-輝度特性を示す図。

【図5】実施例2の発光素子の輝度-電流効率特性を示す図。

【図6】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7】実施例2の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図8】実施例2の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

10

20

30

40

50

- 【図 9】実施例 3 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。
- 【図 10】実施例 3 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 11】実施例 3 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 12】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 13】実施例 3 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
- 【図 14】実施例 3 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
- 【図 15】本発明の一態様の発光素子を示す図。
- 【図 16】実施例 1 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 17】実施例 4 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 18】実施例 5 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。 10
- 【図 19】実施例 5 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 20】実施例 5 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 21】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 22】実施例 5 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
- 【図 23】実施例 6 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 24】実施例 7 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。
- 【図 25】実施例 7 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 26】実施例 7 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 27】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 28】実施例 7 の発光素子の発光スペクトルを示す図。 20
- 【図 29】実施例 7 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
- 【図 30】実施例 8 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 31】実施例 9 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。
- 【図 32】実施例 9 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 33】実施例 9 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 34】実施例 9 の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。
- 【図 35】実施例 9 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
- 【図 36】実施例 9 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
- 【図 37】実施例 10 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 38】実施例 11 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。 30
- 【図 39】実施例 11 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 40】実施例 11 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 41】実施例 11 の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。
- 【図 42】実施例 11 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
- 【図 43】実施例 12 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 44】実施例 13 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。
- 【図 45】実施例 13 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 46】実施例 13 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 47】実施例 13 の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。
- 【図 48】実施例 13 の発光素子の発光スペクトルを示す図。 40
- 【図 49】実施例 14 に係る吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
- 【図 50】実施例 15 の発光素子の電流密度 - 輝度特性を示す図。
- 【図 51】実施例 15 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
- 【図 52】実施例 15 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
- 【図 53】実施例 15 の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。
- 【図 54】実施例 15 の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【発明を実施するための形態】

【0019】

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。

【0020】

(実施の形態1)

本実施の形態では、本発明の一態様の発光素子について説明する。

【0021】

本実施の形態の発光素子は、発光物質であるゲスト材料と、該ゲスト材料を分散するホスト材料とを発光層に有する。ゲスト材料としては、燐光性化合物を用いる。ホスト材料としては、1種類以上の有機化合物を用いることができる。

10

【0022】

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。

【0023】

なお、本実施の形態において、ホスト材料として用いる有機化合物の三重項励起エネルギーの準位 ( $T_1$  準位) は、ゲスト材料の  $T_1$  準位よりも高いことが好ましい。ホスト材料の  $T_1$  準位がゲスト材料の  $T_1$  準位よりも低いと、発光に寄与するゲスト材料の三重項励起エネルギーをホスト材料が消光 (クエンチ) してしまい、発光効率の低下を招くためである。

20

【0024】

<発光の素過程>

まず、燐光性化合物をゲスト材料として用いる発光素子における発光の一般的な素過程を説明する。

【0025】

(1) 電子及びホールがゲスト分子において再結合し、ゲスト分子が励起状態となる場合 (直接再結合過程)。

(1-1) ゲスト分子の励起状態が三重項励起状態のとき  
ゲスト分子は燐光を発する。

30

(1-2) ゲスト分子の励起状態が一重項励起状態のとき  
一重項励起状態のゲスト分子は三重項励起状態に項間交差し、燐光を発する。

【0026】

つまり、上記(1)の直接再結合過程においては、ゲスト分子の項間交差効率及び燐光量子収率さえ高めれば、高い発光効率を得られることになる。なお、上述した通り、ホスト分子の  $T_1$  準位は、ゲスト分子の  $T_1$  準位よりも高いことが好ましい。

【0027】

(2) 電子及びホールがホスト分子において再結合し、ホスト分子が励起状態となる場合 (エネルギー移動過程)。

(2-1) ホスト分子の励起状態が三重項励起状態のとき

40

ホスト分子の  $T_1$  準位がゲスト分子の  $T_1$  準位よりも高い場合、ホスト分子からゲスト分子に励起エネルギーが移動し、ゲスト分子が三重項励起状態となる。三重項励起状態となったゲスト分子は燐光を発する。なお、ゲスト分子の一重項励起エネルギーの準位 ( $S_1$  準位) へのエネルギー移動も形式上あり得るが、多くの場合ゲスト分子の  $S_1$  準位の方がホスト分子の  $T_1$  準位よりも高エネルギー側に位置しており、主たるエネルギー移動過程になりにくいいため、ここでは割愛する。

(2-2) ホスト分子の励起状態が一重項励起状態のとき

ホスト分子の  $S_1$  準位がゲスト分子の  $S_1$  準位および  $T_1$  準位よりも高い場合、ホスト分子からゲスト分子に励起エネルギーが移動し、ゲスト分子が一重項励起状態又は三重項励起状態となる。三重項励起状態となったゲスト分子は燐光を発する。また、一重項励起

50

状態となったゲスト分子は、三重項励起状態に項間交差し、燐光を發する。

【 0 0 2 8 】

つまり、上記 ( 2 ) のエネルギー移動過程においては、ホスト分子の三重項励起エネルギー及び一重項励起エネルギーの双方が、いかにゲスト分子に効率よく移動できるかが重要となる。

【 0 0 2 9 】

< エネルギー移動過程 >

以下では、分子間のエネルギー移動過程について詳説する。

【 0 0 3 0 】

まず、分子間のエネルギー移動の機構として、以下の2つの機構が提唱されている。ここで、励起エネルギーを与える側の分子をホスト分子、励起エネルギーを受け取る側の分子をゲスト分子と記す。

10

【 0 0 3 1 】

フェルスター機構 ( 双極子 - 双極子相互作用 )

フェルスター機構は、エネルギー移動に、分子間の直接的接触を必要としない。ホスト分子及びゲスト分子間の双極子振動の共鳴現象を通じてエネルギー移動が起こる。双極子振動の共鳴現象によってホスト分子がゲスト分子にエネルギーを受け渡し、ホスト分子が基底状態になり、ゲスト分子が励起状態になる。フェルスター機構の速度定数  $k_{h^* \rightarrow g}$  を数式 ( 1 ) に示す。

【 0 0 3 2 】

【 数 1 】

20

$$k_{h^* \rightarrow g} = \frac{9000c^4 K^2 \phi \ln 10}{128\pi^5 n^4 N \tau R^6} \int \frac{f'_h(\nu) \varepsilon_g(\nu)}{\nu^4} d\nu \cdots (1)$$

【 0 0 3 3 】

数式 ( 1 ) において、 $\phi$  は、振動数を表し、 $f'_h(\nu)$  は、ホスト分子の規格化された発光スペクトル ( 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 ) を表し、 $\varepsilon_g(\nu)$  は、ゲスト分子のモル吸光係数を表し、 $N$  は、アボガドロ数を表し、 $n$  は、媒体の屈折率を表し、 $R$  は、ホスト分子とゲスト分子の分子間距離を表し、 $\tau$  は、実測される励起状態の寿命 ( 蛍光寿命や燐光寿命 ) を表し、 $c$  は、光速を表し、 $\phi$  は、発光量子収率 ( 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量子収率、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量子収率 ) を表し、 $K^2$  は、ホスト分子とゲスト分子の遷移双極子モーメントの配向を表す係数 ( 0 ~ 4 ) である。なお、ランダム配向の場合は  $K^2 = 2 / 3$  である。

30

【 0 0 3 4 】

デクスター機構 ( 電子交換相互作用 )

デクスター機構は、ホスト分子とゲスト分子が軌道の重なりを生じる接触有効距離に近づき、励起状態のホスト分子の電子と基底状態のゲスト分子の電子の交換を通じてエネルギー移動が起こる。デクスター機構の速度定数  $k_{h^* \rightarrow g}$  を数式 ( 2 ) に示す。

40

【 0 0 3 5 】

【 数 2 】

$$k_{h^* \rightarrow g} = \left( \frac{2\pi}{h} \right) K^2 \exp\left( -\frac{2R}{L} \right) \int f'_h(\nu) \varepsilon'_g(\nu) d\nu \cdots (2)$$

【 0 0 3 6 】

数式 ( 2 ) において、 $h$  は、プランク定数であり、 $K$  は、エネルギーの次元を持つ定数であり、 $\phi$  は、振動数を表し、 $f'_h(\nu)$  は、ホスト分子の規格化された発光スペクトル

50

(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)を表し、 $\sigma_g(\lambda)$ は、ゲスト分子の規格化された吸収スペクトルを表し、 $L$ は、実効分子半径を表し、 $R$ は、ホスト分子とゲスト分子の分子間距離を表す。

【0037】

ここで、ホスト分子からゲスト分子へのエネルギー移動効率  $\Phi_{ET}$  は、数式(3)で表されると考えられる。 $k_r$ は、ホスト分子の発光過程(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、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)の速度定数を表し、 $k_n$ は、ホスト分子の非発光過程(熱失活や項間交差)の速度定数を表し、 $\tau$ は、実測されるホスト分子の励起状態の寿命を表す。

10

【0038】

【数3】

$$\Phi_{ET} = \frac{k_{h^* \rightarrow g}}{k_r + k_n + k_{h^* \rightarrow g}} = \frac{k_{h^* \rightarrow g}}{\left(\frac{1}{\tau}\right) + k_{h^* \rightarrow g}} \dots (3)$$

【0039】

まず、数式(3)より、エネルギー移動効率  $\Phi_{ET}$  を高くするためには、エネルギー移動の速度定数  $k_{h^* \rightarrow g}$  を、他の競合する速度定数  $k_r + k_n (= 1/\tau)$  に比べて遙かに大きくすればよい。そして、そのエネルギー移動の速度定数  $k_{h^* \rightarrow g}$  を大きくするためには、数式(1)及び数式(2)より、フェルスター機構、デクスター機構のどちらの機構においても、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との重なりが大きい方が良いことがわかる。

20

【0040】

ここで、本発明の一態様は、一对の電極間に、ゲスト材料及びホスト材料を含む発光層を有し、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルとが重なり、ホスト材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発する発光素子である。

30

【0041】

本発明の一態様では、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルの重なりを利用して、ホスト材料からゲスト材料へのエネルギー移動が円滑に行われるため、エネルギー移動効率が高い。したがって、本発明の一態様では、外部量子効率の高い発光素子を実現することができる。

【0042】

また、前述のエネルギー移動過程を鑑みれば、ホスト分子からゲスト分子に励起エネルギーが移動する前に、ホスト分子自体がその励起エネルギーを光又は熱として放出して失活してしまうと、発光効率や寿命が低下することになる。しかしながら、本発明の一態様では、エネルギー移動が円滑に行われるため、励起エネルギーの失活を抑制することができる。したがって、寿命の長い発光素子を実現することができる。

40

【0043】

ここで、本発明者等は、ホスト分子の発光スペクトルとゲスト分子の吸収スペクトルとの重なりを考える上で、ゲスト分子の吸収スペクトルにおける最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯が重要であると考えた。

【0044】

本実施の形態では、ゲスト材料として燐光性化合物を用いる。燐光性化合物の吸収スペクトルにおいて、最も発光に強く寄与すると考えられている吸収帯は、一重項基底状態から三重項励起状態への直接遷移に相当する吸収波長とその近傍であり、それは最も長波長側に現れる吸収帯である。このことから、ホスト材料の発光スペクトル(蛍光スペクトル及

50

び燐光スペクトル)は、燐光性化合物の吸収スペクトルの最も長波長側の吸収帯と重なることが好ましいと考えられる。

【0045】

例えば、有機金属錯体、特に発光性のイリジウム錯体において、最も長波長側の吸収帯は、500~600nm付近にブロードな吸収帯として現れる場合が多い(無論、発光波長によっては、より短波長側やより長波長側に現れる場合もある)。この吸収帯は、主として、三重項MLCT(Metal to Ligand Charge Transfer)遷移に由来する。ただし、該吸収帯には三重項<sup>\*</sup>遷移や一重項MLCT遷移に由来する吸収も一部含まれ、これらが重なって、吸収スペクトルの最も長波長側にブロードな吸収帯を形成していると考えられる。したがって、ゲスト材料に、有機金属錯体(特にイリジウム錯体)を用いるときは、このように最も長波長側に存在するブロードな吸収帯と、宿主材料の発光スペクトルが大きく重なる状態が好ましい。

10

【0046】

したがって、本発明の一態様は、一对の電極間に、ゲスト材料及び宿主材料を含む発光層を有し、宿主材料の発光スペクトルと、ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯とが重なり、宿主材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発する発光素子である。

【0047】

上記発光素子において、該吸収帯が、三重項MLCT遷移に由来する吸収を含むことが好ましい。三重項MLCT励起状態は、ゲスト材料である燐光性化合物の最低三重項励起状態であるため、燐光性化合物はこの励起状態から燐光を発する。つまり、三重項MLCT励起状態からは、発光以外の失活過程が少なく、この励起状態の存在率をできる限り多くするのが高い発光効率に繋がると考えられる。このような理由から、三重項MLCT遷移に由来する吸収を利用して、宿主材料から三重項MLCT励起状態に直接エネルギー移動するエネルギー移動過程が多いことが好ましいと言える。また、上記発光素子において、ゲスト材料は有機金属錯体、特にイリジウム錯体が好ましい。

20

【0048】

また、本発明者等は、宿主分子が一重項励起状態である場合(上記(2-2))は、三重項励起状態である場合(上記(2-1))に比べて、燐光性化合物であるゲスト分子へのエネルギー移動が起こりにくく、発光効率が低下しやすいことを見出し、課題の一として着目した。

30

【0049】

宿主材料としては、通常、蛍光性化合物が用いられるが、その蛍光寿命( )はナノ秒レベルと非常に短い( $k_r + k_n$ が大きい)。これは、一重項励起状態から基底状態(一重項)への遷移が許容遷移だからである。数式(3)から、このことはエネルギー移動効率 $\eta_T$ に対して不利に働く。このことも考慮すると、宿主材料の一重項励起状態からゲスト材料へのエネルギー移動は、総じて起こりにくい傾向にある。

【0050】

しかしながら本発明の一態様は、このような宿主材料の一重項励起状態からのゲスト材料へのエネルギー移動効率に関する問題点を克服できる。すなわち、本発明の一態様の発光素子は、一对の電極間に、ゲスト材料及び宿主材料を含む発光層を有し、宿主材料の蛍光スペクトルは、ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯と重なりを有し、重なりを利用して、宿主材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発することが好ましい。

40

【0051】

つまり、本発明の一態様の発光素子では、宿主材料の蛍光スペクトルは、ゲスト材料の吸収スペクトルにおいて最も長波長側の吸収帯と重なりを有し、該重なりを利用して、宿主材料の励起エネルギーがゲスト材料の励起エネルギーに変換されることで、燐光を発する。このような構成とすることで、一重項励起エネルギーの失活を抑制することができる。したがって、素子の効率だけでなく寿命にも影響すると考えられる宿主材料の一重

50

項励起エネルギーの失活を、本発明の一態様を適用することにより抑制することができ、寿命の長い発光素子を実現することができる。なお、このとき、ホスト材料の励起エネルギーは燐光性化合物に十分にエネルギー移動し、一重項励起状態からの蛍光発光は実質的に観察されないことが好ましい。

【0052】

なお、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルを十分に重ねるためには、発光スペクトルのピークのエネルギー値と、吸収スペクトルの最も低エネルギー側の吸収帯のピークのエネルギー値との差が0.3 eV以内であることが好ましい。より好ましくは0.2 eV以内であり、特に好ましくは0.1 eV以内である。

【0053】

さらに、ホスト材料の一重項励起状態からのエネルギー移動は、フェルスター機構が重要と考えられる。このことを考慮すると、数式(1)から、ゲスト材料の最も長波長側に位置する吸収帯のモル吸光係数は、 $2000 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上が好ましく、 $5000 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上がより好ましい。

【0054】

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。

【0055】

(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15を用いて説明する。

【0056】

図15(A)は、第1の電極103と第2の電極108との間にEL層102を有する発光素子を示した図である。図15(A)における発光素子は、第1の電極103の上に順に積層した正孔注入層701、正孔輸送層702、発光層703、電子輸送層704、電子注入層705と、さらにその上に設けられた第2の電極108から構成されている。

【0057】

第1の電極103としては、仕事関数の大きい(具体的には4.0 eV以上)金属、合金、導電性化合物、及びこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体的には、例えば、酸化インジウム-酸化スズ(ITO: Indium Tin Oxide)、珪素又は酸化珪素を含有した酸化インジウム-酸化スズ、酸化インジウム-酸化亜鉛(Indium Zinc Oxide)、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(IWZO)等が挙げられる。これらの導電性金属酸化物膜は、通常スパッタリング法により成膜されるが、ゾル-ゲル法などを応用して作製しても構わない。例えば、酸化インジウム-酸化亜鉛膜は、酸化インジウムに対し1~20 wt%の酸化亜鉛を加えたターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。また、IWZO膜は、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5 wt%、酸化亜鉛を0.1~1 wt%含有したターゲットを用いてスパッタリング法により形成することができる。この他、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。

【0058】

但し、EL層102のうち、第1の電極103に接して形成される層が、後述する有機化合物と電子受容体(アクセプター)とを混合してなる複合材料を用いて形成される場合には、第1の電極103に用いる物質は、仕事関数の大小に関わらず、様々な金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることができる。例えば、アルミニウム、銀、アルミニウムを含む合金(例えば、Al-Si)等も用いることもできる。

【0059】

第1の電極103は、例えばスパッタリング法や蒸着法(真空蒸着法を含む)等により形成することができる。

【0060】

第2の電極108は、仕事関数の小さい(好ましくは3.8 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物、及びこれらの混合物などを用いて形成することが好ましい。具体的には、

10

20

30

40

50

元素周期表の第1族または第2族に属する元素、すなわちリチウムや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、およびこれらを含む合金（例えば、Mg - Ag、Al - Li）、ユーロピウム、イッテルビウム等の希土類金属およびこれらを含む合金の他、アルミニウムや銀などを用いることができる。

【0061】

但し、EL層102のうち、第2の電極108に接して形成される層が、後述する有機化合物と電子供与体（ドナー）とを混合してなる複合材料を用いる場合には、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、ITO、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウム - 酸化スズ等様々な導電性材料を用いることができる。

【0062】

なお、第2の電極108を形成する場合には、真空蒸着法やスパッタリング法を用いることができる。また、銀ペーストなどを用いる場合には、塗布法やインクジェット法などを用いることができる。

【0063】

EL層102は、少なくとも発光層703を有する。EL層102の一部には公知の物質を用いることもでき、低分子系化合物および高分子系化合物のいずれを用いることもできる。なお、EL層102を形成する物質には、有機化合物のみからなるものだけでなく、無機化合物を一部に含む構成も含めるものとする。

【0064】

EL層102は、発光層703の他、図15(A)に示すように正孔注入性の高い物質を含んでなる正孔注入層701、正孔輸送性の高い物質を含んでなる正孔輸送層702、電子輸送性の高い物質を含んでなる電子輸送層704、電子注入性の高い物質を含んでなる電子注入層705などを適宜組み合わせることで積層することにより形成される。

【0065】

正孔注入層701は、正孔注入性の高い物質を含む層である。正孔注入性の高い物質としては、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を用いることができる。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。

【0066】

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]ピフェニル（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)ピフェニル（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等を用いることができる。

【0067】

さらに、高分子化合物（オリゴマー、 dendrimer、ポリマー等）を用いることもできる。例えば、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

10

20

30

40

50

ス(フェニル)ベンジジン](略称: Poly-TPD)などの高分子化合物が挙げられる。また、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。

【0068】

また、正孔注入層701として、有機化合物と電子受容体(アクセプター)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子受容体によって有機化合物に正孔が発生するため、正孔注入性および正孔輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した正孔の輸送に優れた材料(正孔輸送性の高い物質)であることが好ましい。

10

【0069】

複合材料に用いる有機化合物としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール誘導体、芳香族炭化水素、高分子化合物(オリゴマー、 dendリマー、ポリマー等)など、種々の化合物を用いることができる。なお、複合材料に用いる有機化合物としては、正孔輸送性の高い有機化合物であることが好ましい。具体的には、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。以下では、複合材料に用いることのできる有機化合物を具体的に列挙する。

【0070】

複合材料に用いることのできる有機化合物としては、例えば、TDATA、MTDATA、DPAB、DNTPD、DPA3B、PCzPCA1、PCzPCA2、PCzPCN1、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:NPBまたは-NPD)、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(略称:TPD)、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称:BPAPLP)等の芳香族アミン化合物や、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称:CBP)、1,3,5-トリス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]ベンゼン(略称:TCPB)、9-[4-(N-カルバゾリル)]フェニル-10-フェニルアントラセン(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)、1,4-ビス[4-(N-カルバゾリル)フェニル]-2,3,5,6-テトラフェニルベンゼン等のカルバゾール誘導体を用いることができる。

20

30

【0071】

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)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(1-ナフチル)アントラセン、9,10-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)アントラセン(略称:DPPA)、2-tert-ブチル-9,10-ビス(4-フェニルフェニル)アントラセン(略称:t-BuDBA)、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)、2-tert-ブチルアントラセン(略称:t-BuAnth)、9,10-ビス(4-メチル-1-ナフチル)アントラセン(略称:DMNA)、9,10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]-2-tert-ブチルアントラセン、9,10-ビス[2-(1-ナフチル)フェニル]アントラセン、2,3,6,7-テトラメチル-9,10-ジ(1-ナフチル)アントラセン等の芳香族炭化水素化合物を用いることができる。

40

【0072】

さらに、2,3,6,7-テトラメチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン、9,9'-ピアントリル、10,10'-ジフェニル-9,9'-ピアントリル、10,10'-ビス(2-フェニルフェニル)-9,9'-ピアントリル、10,10'-ビス[(2,3,4,5,6-ペンタフェニル)フェニル]-9,9'-ピアントリル、アントラセン、テトラセン、ルブレン、ペリレン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブ

50

チル)ペリレン、ペンタセン、コロネン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(略称:DPVBi)、9,10-ビス[4-(2,2-ジフェニルビニル)フェニル]アントラセン(略称:DPVPA)等の芳香族炭化水素化合物を用いることができる。

【0073】

また、電子受容体としては、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)、クロラニル等の有機化合物や、遷移金属酸化物を挙げることができる。また、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。中でも特に、酸化モリブデンは大気中でも安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため好ましい。

10

【0074】

なお、上述したPVK、PVTPA、PTPDMA、Poly-TPD等の高分子化合物と、上述した電子受容体を用いて複合材料を形成し、正孔注入層701に用いてもよい。

【0075】

正孔輸送層702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、NPB、TPD、BPAFLP、4,4'-ビス[N-(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DFLDPBi)、4,4'-ビス[N-(スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-イル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:BSPB)などの芳香族アミン化合物を用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質である。但し、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば、これら以外のものを用いてもよい。なお、正孔輸送性の高い物質を含む層は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が二層以上積層したものとしてもよい。

20

【0076】

また、正孔輸送層702には、CBP、CzPA、PCzPAのようなカルバゾール誘導体や、t-BuDNA、DNA、DPAnthのようなアントラセン誘導体を用いてもよい。

【0077】

また、正孔輸送層702には、PVK、PVTPA、PTPDMA、Poly-TPDなどの高分子化合物を用いることもできる。

30

【0078】

発光層703は、発光物質を含む層である。本実施の形態の発光層703は、ゲスト材料及びホスト材料を含む。ホスト材料は、複数種用いることができる。具体的には実施の形態1を参照することができる。

【0079】

ゲスト材料の燐光性化合物としては、有機金属錯体が好ましく、イリジウム錯体が特に好ましい。なお、上述のフェルスター機構によるエネルギー移動を考慮すると、燐光性化合物の最も長波長側に位置する吸収帯のモル吸光係数は、 $2000 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上が好ましく、 $5000 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上がより好ましい。このような大きなモル吸光係数を有する化合物としては、具体的には、ビス(3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)])や、(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)])、ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)])、(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>(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])などが

40

50

挙げられる。特に、 $[Ir(dppm)_2(acac)]$ のように、モル吸光係数が $5000 M^{-1} \cdot cm^{-1}$ 以上に達する材料を用いると、外部量子効率が30%程度に達する高効率な発光素子が得られる。

#### 【0080】

ホスト材料として、電子を受け取りやすい化合物（代表的には、複素環化合物）とホールを受け取りやすい化合物（代表的には、芳香族アミン化合物やカルバゾール化合物）とを混合した材料を用いることが好ましい。このような構成とすることで、発光層内でのホール輸送と電子輸送のキャリアバランスを整えることによる発光効率及び寿命の向上の効果を得ることができる。ホスト材料の具体例としては、例えば、2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：2mDBTPDBq-*II*）と4-フェニル-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：PCBA1BP）を混合した材料や、2mDBTPDBq-*II*と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）を混合した材料、あるいは2-[4-(3, 6-ジフェニル-9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン（略称：2CzPDBq-*III*）とPCBNBBを混合した材料、2-[4-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール（略称：DBTBI-*II*）と4, 4', 4''-トリス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン（略称：1'-TNATA）を混合した材料などが挙げられる。また、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）、4-(1-ナフチル)-4'-フェニルトリフェニルアミン（略称：NBA1BP）、2, 7-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]-スピロ-9, 9'-ピフルオレン（略称：DPA2SF）、9-フェニル-9H-3-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)カルバゾール（略称：PCCP）、又は1'-TNATAを、2mDBTPDBq-*II*と混合した材料もホスト材料として用いることができる。ただし、これらに限定されることなく、他の公知のホスト材料を用いることができる。

#### 【0081】

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。

#### 【0082】

電子輸送層704は、電子輸送性の高い物質を含む層である。電子輸送性の高い物質としては、Alq<sub>3</sub>、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム（略称：Almq<sub>3</sub>）、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム（略称：BeBq<sub>2</sub>）、BA1q、Zn(BOX)<sub>2</sub>、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾラト]亜鉛（略称：Zn(BTZ)<sub>2</sub>）などの金属錯体が挙げられる。また、2-(4-ピフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール（略称：PBD）、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：OXD-7）、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ピフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール（略称：TAZ）、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ピフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール（略称：p-EtTAZ）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）、4, 4'-ビス(5-メチルベンゾオキサゾール-2-イル)スチルベン（略称：BzOs）などの複素芳香族化合物も用いることができる。また、ポリ(2, 5-ピリジン-

10

20

30

40

50

ジイル) (略称: PPy)、ポリ[(9,9-ジヘキシルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(ピリジン-3,5-ジイル)] (略称: PF-PPy)、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(2,2'-ビピリジン-6,6'-ジイル)] (略称: PF-BPPy) のような高分子化合物を用いることもできる。ここに述べた物質は、主に  $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  以上の電子移動度を有する物質である。なお、正孔よりも電子の輸送性の高い物質であれば、上記以外の物質を電子輸送層として用いてもよい。

【0083】

また、電子輸送層は、単層のものだけでなく、上記物質からなる層が二層以上積層したものととしてもよい。

10

【0084】

電子注入層705は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入層705には、リチウム、セシウム、カルシウム、フッ化リチウム、フッ化セシウム、フッ化カルシウム、リチウム酸化物等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、またはそれらの化合物を用いることができる。また、フッ化エルビウムのような希土類金属化合物を用いることができる。また、上述した電子輸送層704を構成する物質を用いることもできる。

【0085】

あるいは、電子注入層705に、有機化合物と電子供与体(ドナー)とを混合してなる複合材料を用いてもよい。このような複合材料は、電子供与体によって有機化合物に電子が発生するため、電子注入性および電子輸送性に優れている。この場合、有機化合物としては、発生した電子の輸送に優れた材料であることが好ましく、具体的には、例えば上述した電子輸送層704を構成する物質(金属錯体や複素芳香族化合物等)を用いることができる。電子供与体としては、有機化合物に対し電子供与性を示す物質であればよい。具体的には、アルカリ金属やアルカリ土類金属や希土類金属が好ましく、リチウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、エルビウム、イッテルビウム等が挙げられる。また、アルカリ金属酸化物やアルカリ土類金属酸化物が好ましく、リチウム酸化物、カルシウム酸化物、バリウム酸化物等が挙げられる。また、酸化マグネシウムのようなルイス塩基を用いることもできる。また、テトラチアフルバレン(略称: TTF)等の有機化合物を用いることもできる。

20

【0086】

なお、上述した正孔注入層701、正孔輸送層702、発光層703、電子輸送層704、電子注入層705は、それぞれ、蒸着法(真空蒸着法を含む)、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。

30

【0087】

EL層は、図15(B)に示すように、第1の電極103と第2の電極108との間に複数積層されていても良い。この場合、積層された第1のEL層800と第2のEL層801との間には、電荷発生層803を設けることが好ましい。電荷発生層803は上述の複合材料で形成することができる。また、電荷発生層803は複合材料からなる層と他の材料からなる層との積層構造でもよい。この場合、他の材料からなる層としては、電子供与性物質と電子輸送性の高い物質とを含む層や、透明導電膜からなる層などを用いることができる。このような構成を有する発光素子は、エネルギーの移動や消光などの問題が起こり難く、材料の選択の幅が広がることで高い発光効率と長い寿命とを併せ持つ発光素子とすることが容易である。また、一方のEL層で燐光発光、他方で蛍光発光を得ることも容易である。この構造は上述のEL層の構造と組み合わせて用いることができる。

40

【0088】

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

50

## 【0089】

EL層102は、図15(C)に示すように、第1の電極103と第2の電極108との間に、正孔注入層701、正孔輸送層702、発光層703、電子輸送層704、電子注入バッファ層706、電子リレー層707、及び第2の電極108と接する複合材料層708を有していても良い。

## 【0090】

第2の電極108と接する複合材料層708を設けることで、特にスパッタリング法を用いて第2の電極108を形成する際に、EL層102が受けるダメージを低減することができるため、好ましい。複合材料層708は、前述の、正孔輸送性の高い有機化合物にアクセプター性物質を含有させた複合材料を用いることができる。

10

## 【0091】

さらに、電子注入バッファ層706を設けることで、複合材料層708と電子輸送層704との間の注入障壁を緩和することができるため、複合材料層708で生じた電子を電子輸送層704に容易に注入することができる。

## 【0092】

電子注入バッファ層706には、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、およびこれらの化合物（アルカリ金属化合物（酸化リチウム等の酸化物、ハロゲン化物、炭酸リチウムや炭酸セシウム等の炭酸塩を含む）、アルカリ土類金属化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む）、または希土類金属の化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む））等の電子注入性の高い物質を用いることが可能である。

20

## 【0093】

また、電子注入バッファ層706が、電子輸送性の高い物質とドナー性物質を含んで形成される場合には、電子輸送性の高い物質に対して質量比で、0.001以上0.1以下の比率でドナー性物質を添加することが好ましい。なお、ドナー性物質としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、およびこれらの化合物（アルカリ金属化合物（酸化リチウム等の酸化物、ハロゲン化物、炭酸リチウムや炭酸セシウム等の炭酸塩を含む）、アルカリ土類金属化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む）、または希土類金属の化合物（酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む））の他、テトラチアナフタセン（略称：TTN）、ニッケロセン、デカメチルニッケロセン等の有機化合物を用いることもできる。なお、電子輸送性の高い物質としては、先に説明した電子輸送層704の材料と同様の材料を用いて形成することができる。

30

## 【0094】

さらに、電子注入バッファ層706と複合材料層708との間に、電子リレー層707を形成することが好ましい。電子リレー層707は、必ずしも設ける必要は無いが、電子輸送性の高い電子リレー層707を設けることで、電子注入バッファ層706へ電子を速やかに送ることが可能となる。

## 【0095】

複合材料層708と電子注入バッファ層706との間に電子リレー層707が挟まれた構造は、複合材料層708に含まれるアクセプター性物質と、電子注入バッファ層706に含まれるドナー性物質とが相互作用を受けにくく、互いの機能を阻害しにくい構造である。したがって、駆動電圧の上昇を防ぐことができる。

40

## 【0096】

電子リレー層707は、電子輸送性の高い物質を含み、該電子輸送性の高い物質のLUMO準位は、複合材料層708に含まれるアクセプター性物質のLUMO準位と、電子輸送層704に含まれる電子輸送性の高い物質のLUMO準位との間となるように形成する。また、電子リレー層707がドナー性物質を含む場合には、当該ドナー性物質のドナー準位も複合材料層708におけるアクセプター性物質のLUMO準位と、電子輸送層704に含まれる電子輸送性の高い物質のLUMO準位との間となるようにする。具体的なエネルギー準位の数値としては、電子リレー層707に含まれる電子輸送性の高い物質のLUMO準位は-5.0eV以上、好ましくは-5.0eV以上-3.0eV以下とするとよ

50

い。

【0097】

電子リレー層707に含まれる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。

【0098】

電子リレー層707に含まれる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) 及びPhO-VOPc (Vanadyl 2,9,16,23-tetraphenoxy-29H,31H-phthalocyanine)のいずれかを用いることが好ましい。

10

【0099】

電子リレー層707に含まれる金属-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(電子を受容しやすい性質)を有するため、電子の移動(授受)がより容易になる。また、金属-酸素の二重結合を有する金属錯体は安定であると考えられる。したがって、金属-酸素の二重結合を有する金属錯体を用いることにより発光素子を低電圧でより安定に駆動することが可能になる。

【0100】

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。具体的には、VOPc (Vanadyl phthalocyanine)、SnOPc (Phthalocyanine tin (IV) oxide complex) 及びTiOPc (Phthalocyanine titanium oxide complex)のいずれかは、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。

20

【0101】

なお、上述した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い。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。そのため、発光素子を形成する上で扱いやすいという利点を有する。また、溶媒に可溶であるため、成膜に用いる装置のメンテナンスが容易になるという利点を有する。

30

【0102】

電子リレー層707はさらにドナー性物質を含んでいても良い。ドナー性物質としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属及びこれらの化合物(アルカリ金属化合物(酸化リチウムなどの酸化物、ハロゲン化物、炭酸リチウムや炭酸セシウムなどの炭酸塩を含む)、アルカリ土類金属化合物(酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む)、又は希土類金属の化合物(酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を含む))の他、テトラチアナフタセン(略称:TTN)、ニッケロセン、デカメチルニッケロセンなどの有機化合物を用いることができる。電子リレー層707にこれら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。

40

【0103】

電子リレー層707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は上記した材料の他、複合材料層708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。具体的なエネルギー準位としては、-5.0 eV以上、好ましくは-5.0 eV以上-3.0 eV以下の範囲にLUMO準位を有する物質を用いることが好ましい。このような物質としては例えば、ペリレン誘導体や、含窒素縮合芳香族化合物などが挙げられる。なお、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707を形成する為に用いる材料として、好ましい材料である。

50

## 【0104】

ペリレン誘導体の具体例としては、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：Hex PTC）等が挙げられる。

## 【0105】

また、含窒素縮合芳香族化合物の具体例としては、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）、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）等が挙げられる。

10

## 【0106】

その他にも、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> 酪酸メチルエステル）等を用いることができる。

20

## 【0107】

なお、電子リレー層707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ドナー性物質との共蒸着などの方法によって電子リレー層707を形成すれば良い。

## 【0108】

正孔注入層701、正孔輸送層702、発光層703、及び電子輸送層704は前述の材料を用いてそれぞれ形成すれば良い。

30

## 【0109】

以上により、本実施の形態のEL層102を作製することができる。

## 【0110】

上述した発光素子は、第1の電極103と第2の電極108との間に生じた電位差により電流が流れ、EL層102において正孔と電子とが再結合することにより発光する。そして、この発光は、第1の電極103または第2の電極108のいずれか一方または両方を通して外部に取り出される。従って、第1の電極103または第2の電極108のいずれか一方、または両方が可視光に対する透光性を有する電極となる。

## 【0111】

なお、第1の電極103と第2の電極108との間に設けられる層の構成は、上記のものに限定されない。発光領域と金属とが近接することによって生じる消光を防ぐように、第1の電極103及び第2の電極108から離れた部位に正孔と電子とが再結合する発光領域を設けた構成であれば上記以外のものでもよい。

40

## 【0112】

つまり、層の積層構造については特に限定されず、電子輸送性の高い物質、正孔輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、正孔注入性の高い物質、バイポーラ性の物質（電子及び正孔の輸送性の高い物質）、又は正孔ブロック材料等から成る層を、発光層と自由に組み合わせ構成すればよい。

## 【0113】

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

50

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。

【0114】

以上のように、本発明の一態様の発光素子を作製することができる。

【0115】

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。

【実施例1】

【0116】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子に用いることができるゲスト材料及びホスト材料について図1及び図16を用いて説明する。

10

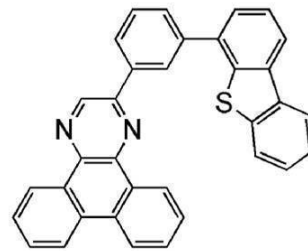
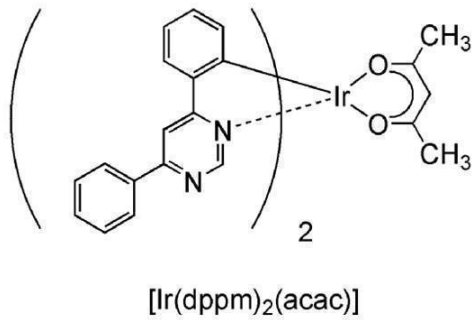
【0117】

本実施例で用いるゲスト材料は、(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)])、ビス(3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)])、及び(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>(acac)]の3種類である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2-[3-(ジベンゾチオフエン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称:2mDBTPDBq-II)と、4-フェニル-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:PCBA1BP)との混合材料である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。

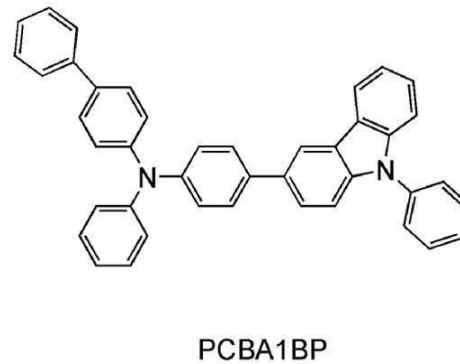
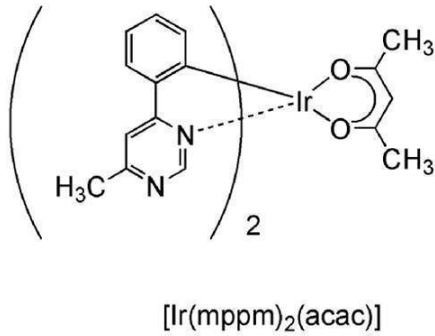
20

【0118】

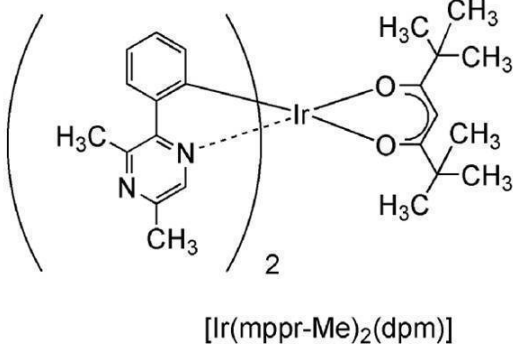
## 【化1】



10



20



30

## 【0119】

ゲスト材料の吸収スペクトル、及びホスト材料の発光スペクトルの測定結果

## &lt;吸収スペクトル&gt;

図1(A)、図16に $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$ のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(以下、吸収スペクトルと記す)を吸収スペクトル1として示す。同様に、吸収スペクトル2として、 $[\text{Ir}(\text{mppr-Me})_2(\text{dpm})]$ の吸収スペクトルを、吸収スペクトル3として、 $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$ の吸収スペクトルを示す。

40

## 【0120】

それぞれの吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計((株)日本分光製 V550型)を用い、ジクロロメタン溶液を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

## 【0121】

## &lt;発光スペクトル&gt;

また、図1(A)、図16に、2mDBTPDBq-IIとPCBA1BPの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトル)を示す。図1(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数( $\text{M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ )及び発光強度(任意単位)を示す。図16において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数

50

( $M^{-1} \cdot cm^{-1}$ ) 及び発光強度 (任意単位) を示す。

【0122】

図1(A)、図16より、吸収スペクトル1~3は、それぞれ、発光スペクトルと重なりを有することがわかった。したがって、本実施例で用いたゲスト材料のいずれか一と、本実施例のホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルの重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。

【0123】

ここで、図1(A)、図16において、吸収スペクトルの最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯(発光に強く寄与すると考えられる吸収帯)のピークと、発光スペクトルのピークに着目する。吸収スペクトル1~3の該ピークのうち、発光スペクトルのピークと最も近い位置に、吸収スペクトル1のピークがあり、発光スペクトルのピークと最も遠い位置に、吸収スペクトル3のピークがある。

【0124】

具体的には、図16において、吸収スペクトル1のピークと発光スペクトルのピークとの差は0.02 eVであり、吸収スペクトル2のピークと発光スペクトルのピークとの差は0.12 eVであり、吸収スペクトル3のピークと発光スペクトルのピークとの差は0.23 eVであった。

【0125】

次に、図1(A)において、吸収スペクトルの最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯のピークでのモル吸光係数に着目する。吸収スペクトル1~3のうち、吸収スペクトル1のモル吸光係数が最も大きく、吸収スペクトル2のモル吸光係数が最も小さい。

【0126】

つまり、吸収スペクトル1~3のうち、吸収スペクトル1が、最も長波長(低エネルギー)側の吸収帯において、ピークが発光スペクトルのピークと最も近い、かつ、ピークのモル吸光係数が最も大きいと言える。

【0127】

以上より、吸収スペクトル1と発光スペクトルは、重なりが特に大きいことがわかる。よって、2mDBTPDBq-IIIとPCBA1BPの混合材料をホスト材料、 $[Ir(dppm)_2(acac)]$ をゲスト材料に用いた発光素子は、該混合材料の発光スペクトルと $[Ir(dppm)_2(acac)]$ 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、エネルギー移動効率が特に高いことが示唆された。

【0128】

ゲスト材料の吸収スペクトルの計算結果

次に、上記測定で得られた $[Ir(dppm)_2(acac)]$ 及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ の吸収スペクトル(図1(A)における吸収スペクトル1及び2)を、計算により再現することを試みた。

【0129】

$[Ir(dppm)_2(acac)]$ 及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ の吸収スペクトルを求めるために、それぞれの分子の基底状態における最安定構造を用いて、励起エネルギー及び振動子強度を求めた。そして、算出した振動子強度をもとに、吸収スペクトルを得た。具体的な計算方法を以下に記す。

【0130】

密度汎関数法(DFT)を用いて、 $[Ir(dppm)_2(acac)]$ 及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ の基底状態における最安定構造を計算した。さらに、時間依存密度汎関数(TD-DFT)を用いて、 $[Ir(dppm)_2(acac)]$ 及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ の励起エネルギーと振動子強度を求め、この結果から吸収スペクトルを計算した。DFTの全エネルギーは、ポテンシャルエネルギー、電子間静電エネルギー、電子の運動エネルギー、及び複雑な電子間の相互作用を全て含む交換相関エネルギーの和で表される。DFTでは、交換相関相互作用を電子密度で表現され

10

20

30

40

50

た一電子ポテンシャルの汎関数（関数の関数の意）で近似しているため、計算は高精度である。ここでは、混合汎関数である B3PW91 を用いて、交換と相関エネルギーに係る各パラメータの重みを規定した。また、基底関数として、LanL2DZ を Ir 原子に、6-311（それぞれの原子価軌道に三つの短縮関数を用いた triple split valence 基底系の基底関数）を Ir 原子以外に適用した。上述の基底関数により、例えば、水素原子であれば、1s ~ 3s の軌道が考慮され、また、炭素原子であれば、1s ~ 4s、2p ~ 4p の軌道が考慮されることになる。さらに、計算精度向上のため、分極基底系として、水素原子には p 関数を、水素原子以外には d 関数を加えた。

【0131】

なお、量子化学計算プログラムとしては、Gaussian 09 を使用した。計算は、

10

【0132】

図1(B)に、計算から得られた吸収スペクトルを示す。また、比較として、先に示した測定から得られた吸収スペクトルを示す。具体的には、 $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$  の測定から得られた吸収スペクトルを、吸収スペクトル1として示し、計算から得られた吸収スペクトルを吸収スペクトル1'として示す。また、 $[\text{Ir}(\text{mppr}-\text{Me})_2(\text{dpm})]$  の測定から得られた吸収スペクトルを、吸収スペクトル2として示し、計算から得られた吸収スペクトルを吸収スペクトル2'として示す。図1(B)において、横軸は、波長 (nm) を示し、縦軸は、モル吸光係数 ( $\text{M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ) 及び発光強度 (任意単位) を示す。

20

【0133】

図1(B)に示す通り、測定から得た吸収スペクトル1、2の形状と、計算から得た吸収スペクトル1'、2'の形状は、ほぼ一致した。特に、吸収スペクトル1、2で見られた以下の2つの傾向が、吸収スペクトル1'、2'においても確認できた。

傾向1) 吸収スペクトル2(2')のピーク波長よりも、吸収スペクトル1(1')のピーク波長の方が、発光スペクトルのピーク波長と近い位置にある。

傾向2) 吸収スペクトルの最も長波長側の吸収帯のピーク波長のモル吸光係数は、吸収スペクトル1(1')の方が、吸収スペクトル2(2')よりも大きい。

【実施例2】

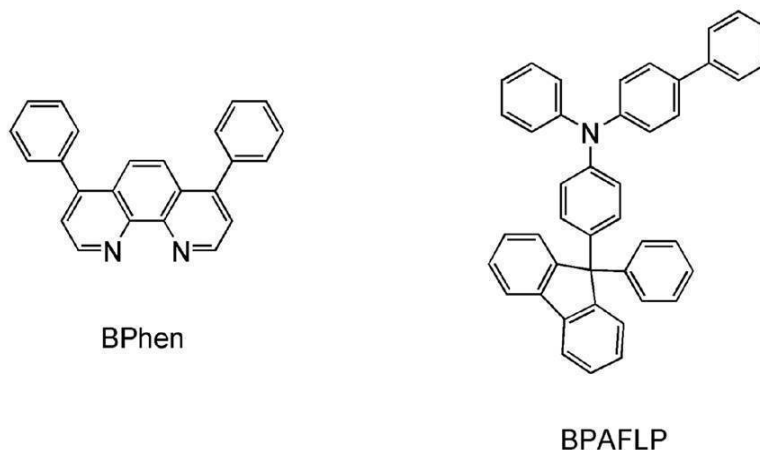
【0134】

30

本実施例では、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。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

【0135】

【化2】



40

【0136】

以下に、本実施例の発光素子1乃至発光素子3の作製方法を示す。

【0137】

50

(発光素子1)

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

【0138】

次に、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。

【0139】

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、基板1100を30分程度放冷した。

【0140】

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、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)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、BPALPと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=BPALP:酸化モリブデン)となるように調節した。

【0141】

次に、正孔注入層1111上に、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。

【0142】

さらに、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、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、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP及び $[Ir(dppm)_2(acac)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBA1BP: $[Ir(dppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

【0143】

次に、発光層1113上に2mDBTPDBq-IIを膜厚10nmとなるよう成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0144】

次に、第1の電子輸送層1114a上に、バソフェナントロリン(略称:BPheN)を膜厚20nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0145】

さらに、第2の電子輸送層1114b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。

【0146】

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。

【0147】

(発光素子2)

発光素子2の発光層1113は、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、及び $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBA1BP: $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ )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。

【0148】

10

20

30

40

50

【発光素子3】

発光素子3の発光層1113は、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、及び[Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP及び[Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(mppm)<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。

【0149】

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。

【0150】

以上により得られた発光素子1乃至発光素子3の素子構造を表1に示す。

【0151】

【表1】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子1	ITO 110nm	BPAFLP:MoO <sub>x</sub> (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子2	ITO 110nm	BPAFLP:MoO <sub>x</sub> (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子3	ITO 110nm	BPAFLP:MoO <sub>x</sub> (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(mppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0152】

これらの発光素子を、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封止する作業を行った後、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。

【0153】

発光素子1乃至発光素子3の電流密度-輝度特性を図3に示す。図3において、横軸は電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)を、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、電圧-輝度特性を図4に示す。図4において、横軸は電圧(V)を、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝度-電流効率特性を図5に示す。図5において、横軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図6に示す。図6において、横軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は外部量子効率(%)を示す。

【0154】

また、発光素子1乃至発光素子3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。

【0155】

【表2】

	電圧(V)	電流密度(mA/cm <sup>2</sup> )	色度(x,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	1.3	(0.56, 0.44)	840	65	68	26
発光素子2	3.0	1.6	(0.55, 0.45)	1000	63	66	24
発光素子3	3.0	1.3	(0.44, 0.55)	940	77	76	20

【0156】

また、発光素子1乃至発光素子3に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図7に示す。図7において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、表2に示す通り、840cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子1のCIE色度座標は(x

10

20

30

40

50

$(x, y) = (0.56, 0.44)$  であり、 $1000 \text{ cd/m}^2$  の輝度の時の発光素子 2 の CIE 色度座標は  $(x, y) = (0.55, 0.45)$  であり、 $940 \text{ cd/m}^2$  の輝度の時の発光素子 3 の CIE 色度座標は  $(x, y) = (0.44, 0.55)$  であった。この結果から、発光素子 1 は、 $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$  に由来する発光が得られ、発光素子 2 は、 $[\text{Ir}(\text{mppr-Me})_2(\text{dpm})]$  に由来する発光が得られ、発光素子 3 は、 $[\text{Ir}(\text{mpm})_2(\text{acac})]$  に由来する発光が得られたことがわかった。

【0157】

表 2 及び図 3 乃至図 6 からわかるように、発光素子 1 乃至発光素子 3 は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

10

【0158】

本実施例の発光素子では、実施例 1 に示した宿主材料及びゲスト材料を発光層に用いた。実施例 1 より、発光素子 1 乃至発光素子 3 に用いたそれぞれのゲスト材料の吸収スペクトルは、宿主材料の発光スペクトルと重なりを有する。本実施例の発光素子は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

【0159】

また、発光素子 1 は、発光素子 2 及び発光素子 3 に比べて、外部量子効率が高い値を示した。実施例 1 の結果では、発光素子 1 に用いたゲスト材料の吸収スペクトルの最も低エネルギー側の吸収帯において、ピークが発光スペクトルのピークと最も近い（ピークの差は  $0.02 \text{ eV}$ ）、かつ、ピーク波長のモル吸光係数が最も大きかった（ $> 5000 \text{ M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ）。これらから、発光素子 1 はエネルギー移動効率が特に高いため、外部量子効率が高い値を示したと示唆される。

20

【0160】

また、発光素子 2 は、発光素子 3 に比べて、外部量子効率が高い値を示した。実施例 1 の結果では、吸収スペクトル 3 のピーク波長よりも、吸収スペクトル 2 のピーク波長は、発光スペクトルのピーク波長と近い位置にあった。これにより、発光素子 2 と発光素子 3 の外部量子効率特性に差が生じたと示唆される。

【0161】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

30

【0162】

次に、発光素子 1 乃至発光素子 3 の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 8 に示す。図 8 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（ $\text{h}$ ）を示す。

【0163】

信頼性試験は、初期輝度を  $5000 \text{ cd/m}^2$  に設定し、電流密度一定の条件で発光素子 1 乃至発光素子 3 をそれぞれ駆動した。

【0164】

発光素子 1 は、470 時間後の輝度が、初期輝度の  $85\%$  の値であった。また、発光素子 2 は、470 時間後の輝度が、初期輝度の  $72\%$  の値であった。また、発光素子 3 は、280 時間後の輝度が、初期輝度の  $72\%$  の値であった。

40

【0165】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、寿命が長い素子を実現できることが示された。

【実施例 3】

【0166】

本実施例では、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。本実施例で用いる材料は、先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

【0167】

50

以下に、本実施例の発光素子 4 の作製方法を示す。

【0168】

(発光素子 4)

まず、ガラス基板 1100 上に、ITO をスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第 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。

【0169】

次に、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 °C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 370 秒行った。

【0170】

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 °C で 30 分間の真空焼成を行った後、基板 1100 を 30 分程度放冷した。

【0171】

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、BPAFLP 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、40 nm とし、BPAFLP と酸化モリブデンの比率は、重量比で 4 : 2 (= BPAFLP : 酸化モリブデン) となるように調節した。

【0172】

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

【0173】

さらに、2mDBTPDBq - II、PCBA1BP、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、2mDBTPDBq - II、PCBA1BP 及び  $[Ir(dppm)_2(acac)]$  の重量比は、0.8 : 0.2 : 0.1 (= 2mDBTPDBq - II : PCBA1BP :  $[Ir(dppm)_2(acac)]$ ) となるように調節した。また、発光層 1113 の膜厚は 40 nm とした。

【0174】

次に、発光層 1113 上に 2mDBTPDBq - II を膜厚 15 nm となるよう成膜し、第 1 の電子輸送層 1114a を形成した。

【0175】

次に、第 1 の電子輸送層 1114a 上に、BPhen を膜厚 15 nm となるように成膜し、第 2 の電子輸送層 1114b を形成した。

【0176】

さらに、第 2 の電子輸送層 1114b 上に、LiF を 1 nm の膜厚で蒸着し、電子注入層 1115 を形成した。

【0177】

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 4 を作製した。

【0178】

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。

【0179】

以上により得られた発光素子 4 の素子構造を表 3 に示す。

【0180】

10

20

30

40

【表 3】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子4	ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.1) 40nm	2mDBTPDBq-II 15nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

## 【0181】

発光素子4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封止する作業を行った後、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

## 【0182】

発光素子4の電流密度-輝度特性を図9に示す。図9において、横軸は電流密度( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )を、縦軸は輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )を表す。また、電圧-輝度特性を図10に示す。図10において、横軸は電圧(V)を、縦軸は輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )を表す。また、輝度-電流効率特性を図11に示す。図11において、横軸は輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )を、縦軸は電流効率( $\text{cd}/\text{A}$ )を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図12に示す。図12において、横軸は、輝度( $\text{cd}/\text{m}^2$ )を、縦軸は外部量子効率(%)を示す。

## 【0183】

また、発光素子4における輝度 $1100\text{cd}/\text{m}^2$ 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4に示す。

20

## 【0184】

【表 4】

	電圧(V)	電流密度( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	色度(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(%)
発光素子4	3.0	1.4	(0.57, 0.43)	76	70	31

## 【0185】

また、発光素子4に $0.1\text{mA}$ の電流を流した際の発光スペクトルを、図13に示す。図13において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、表4に示す通り、 $1100\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度の時の発光素子4のCIE色度座標は(x, y) = (0.57, 0.43)であった。この結果から、発光素子4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。

30

## 【0186】

表4及び図9乃至図12からわかるように、発光素子4は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。特に、 $1100\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度の時の外部量子効率が31%と極めて高い値を示した。先に記したとおり、外部量子効率の限界は25%程度と言われている。しかしながら、今回の結果はそれを上回っている。

40

## 【0187】

本実施例の発光素子では、実施例1に示した宿主材料及びゲスト材料を発光層に用いた。実施例1より、発光素子4に用いたゲスト材料の吸収スペクトルは、宿主材料の発光スペクトルと重なりを有する。本実施例の発光素子は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

## 【0188】

また、実施例1の結果では、発光素子4に用いたゲスト材料の吸収スペクトルの最も長波長側の吸収帯において、ピーク波長が発光スペクトルのピーク波長と近い(ピークの差は $0.02\text{eV}$ )、かつ、ピーク波長のモル吸光係数が大きかった( $>5000\text{M}^{-1}\cdot\text{cm}^{-1}$ )。これらから、発光素子4はエネルギー移動効率が特に高いため、外部量子効率が従来にはない高い値を示したと考えられる。

50

## 【0189】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

## 【0190】

次に、発光素子4の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図14に示す。図14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。

## 【0191】

信頼性試験は、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発光素子4を駆動した。

## 【0192】

170時間後の輝度について、発光素子4は、初期輝度の95%を保っていた。

## 【0193】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、信頼性の高い素子を実現できることが示された。

## 【実施例4】

## 【0194】

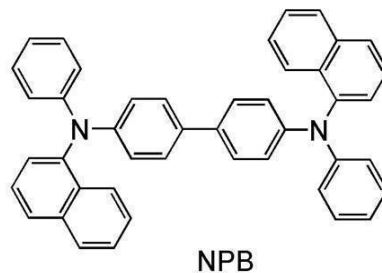
本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができるゲスト材料及びホスト材料の一例について図17を用いて説明する。

## 【0195】

本実施例で用いるゲスト材料は、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2mDBTPDBq-IIと、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)との混合材料である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

## 【0196】

## 【化3】



## 【0197】

<吸収スペクトル>

図17(A)(B)に[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルa)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計((株)日本分光製 V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.093 mmol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

## 【0198】

<発光スペクトル>

また、図17(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIとNPBの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルa)を示す。図17(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>・cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。図17(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>・cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。

## 【0199】

図17(A)の吸収スペクトルaから、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]が、520

10

20

30

40

50

nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

【0200】

発光スペクトルaのピークは、吸収スペクトルaにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。具体的には、吸収スペクトルaにおける該吸収帯のピーク(515nm)と発光スペクトルaのピークの差は0.09eVであった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

10

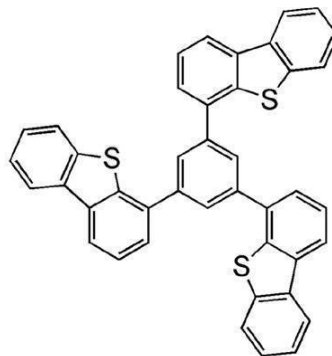
【実施例5】

【0201】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

【0202】

【化4】



DBT3P-II

20

【0203】

以下に、本実施例の発光素子5の作製方法を示す。

【0204】

(発光素子5)

まず、ガラス基板1100上に、ITOをスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

30

【0205】

次に、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。

【0206】

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、基板1100を30分程度放冷した。

40

【0207】

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、4,4',4''-トリ(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。

【0208】

50

次に、正孔注入層 1 1 1 1 上に、B P A F L P を 2 0 n m の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 1 1 1 2 を形成した。

【 0 2 0 9 】

さらに、2 m D B T P D B q - I I、N P B、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、2 m D B T P D B q - I I、N P B 及び [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] の重量比は、0 . 8 : 0 . 2 : 0 . 0 5 ( = 2 m D B T P D B q - I I : N P B : [ I r ( d p p m )<sub>2</sub> ( a c a c ) ] ) となるように調節した。また、発光層 1 1 1 3 の膜厚は 4 0 n m とした。

【 0 2 1 0 】

次に、発光層 1 1 1 3 上に 2 m D B T P D B q - I I を膜厚 1 0 n m となるよう成膜し、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a を形成した。

10

【 0 2 1 1 】

次に、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a 上に、B P h e n を膜厚 2 0 n m となるように成膜し、第 2 の電子輸送層 1 1 1 4 b を形成した。

【 0 2 1 2 】

さらに、第 2 の電子輸送層 1 1 1 4 b 上に、L i F を 1 n m の膜厚で蒸着し、電子注入層 1 1 1 5 を形成した。

【 0 2 1 3 】

最後に、陰極として機能する第 2 の電極 1 1 0 3 として、アルミニウムを 2 0 0 n m 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 5 を作製した。

20

【 0 2 1 4 】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【 0 2 1 5 】

以上により得られた発光素子 5 の素子構造を表 5 に示す。

【 0 2 1 6 】

【表 5】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子 5	ITSO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:NPB:[Ir(dppm) <sub>2</sub> (acac)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

30

【 0 2 1 7 】

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封止する作業を行った後、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 2 1 8 】

発光素子 5 の電流密度 - 輝度特性を図 1 8 に示す。図 1 8 において、横軸は電流密度 ( m A / c m<sup>2</sup> ) を、縦軸は輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図 1 9 に示す。図 1 9 において、横軸は電圧 ( V ) を、縦軸は輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図 2 0 に示す。図 2 0 において、横軸は輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) を、縦軸は電流効率 ( c d / A ) を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 2 1 に示す。図 2 1 において、横軸は、輝度 ( c d / m<sup>2</sup> ) を、縦軸は外部量子効率 ( % ) を示す。

40

【 0 2 1 9 】

また、発光素子 5 における輝度 1 1 0 0 c d / m<sup>2</sup> のときの電圧 ( V )、電流密度 ( m A / c m<sup>2</sup> )、C I E 色度座標 ( x、y )、電流効率 ( c d / A )、パワー効率 ( l m / W )、外部量子効率 ( % ) を表 6 に示す。

【 0 2 2 0 】

【表 6】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部 量子効率 (%)
発光素子5	2.9	1.5	(0.57, 0.43)	75	81	29

## 【0221】

また、発光素子5に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図22に示す。図22において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、表6に示す通り、1100cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子5のCIE色度座標は(x, y) = (0.57, 0.43)であった。この結果から、発光素子5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。

10

## 【0222】

表6及び図18乃至図21からわかるように、発光素子5は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

## 【0223】

発光素子5は、実施例4に示した2mDBTPDBq-Ir、NPB及び[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]を発光層に用いた。実施例4より、2mDBTPDBq-IrとNPBの混合材料の発光スペクトルは、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子5は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

20

## 【0224】

また、実施例4の結果では、発光素子5に用いたゲスト材料の吸収スペクトルの最も長波長側の吸収帯において、ピークが宿主材料の発光スペクトルのピークと近い、かつ、ピークのモル吸光係数が大きかった(>5000M<sup>-1</sup>・cm<sup>-1</sup>)。これらから、発光素子5はエネルギー移動効率が特に高いため、外部量子効率が従来にはない高い値を示したと考えられる。

## 【0225】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

30

## 【実施例6】

## 【0226】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができる、ゲスト材料及び宿主材料の一例について図23を用いて説明する。

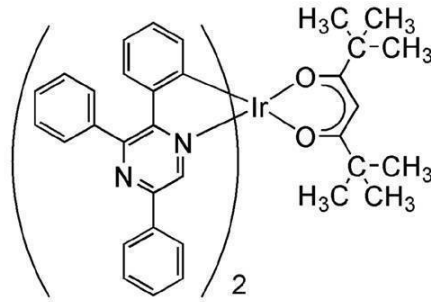
## 【0227】

本実施例で用いるゲスト材料は、ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)(ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)])である。また、本実施例で用いる宿主材料は、2mDBTPDBq-IrとNPBとの混合材料である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

40

## 【0228】

## 【化5】

[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)]

10

## 【0229】

## &lt;吸収スペクトル&gt;

図23(A)(B)に[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)]のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルb)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計(株)日本分光製V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.094 mmol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

## 【0230】

## &lt;発光スペクトル&gt;

また、図23(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIとNPBの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルb)を示す。図23(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>・cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。図23(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>・cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。

20

## 【0231】

図23(A)の吸収スペクトルbから、[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)]が、530 nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

## 【0232】

発光スペクトルbのピークは、吸収スペクトルbにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。具体的には、吸収スペクトルbにおける該吸収帯のピーク(530 nm付近のショルダーピーク)と発光スペクトルbのピークの差は0.01 eVであった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

30

## 【実施例7】

## 【0233】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料は先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

40

## 【0234】

以下に、本実施例の発光素子6の作製方法を示す。

## 【0235】

## (発光素子6)

発光素子6の発光層1113は、2mDBTPDBq-II、NPB及び[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、NPB及び[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:NPB:[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40 nmとした。発光層1113以外は、実施例5に示した発光素子5と同様に作製した。

50

【 0 2 3 6 】

以上により得られた発光素子 6 の素子構造を表 7 に示す。

【 0 2 3 7 】

【表 7】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子 6	ITO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:NPB:[Ir(tppr) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【 0 2 3 8 】

発光素子 6 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封止する作業を行った後、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 2 3 9 】

発光素子 6 の電流密度 - 輝度特性を図 2 4 に示す。図 2 4 において、横軸は電流密度 (mA/cm<sup>2</sup>) を、縦軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図 2 5 に示す。図 2 5 において、横軸は電圧 (V) を、縦軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>) を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図 2 6 に示す。図 2 6 において、横軸は輝度 (cd/m<sup>2</sup>) を、縦軸は電流効率 (cd/A) を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 2 7 に示す。図 2 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 (%) を示す。

【 0 2 4 0 】

また、発光素子 6 における輝度 1100 cd/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 8 に示す。

【 0 2 4 1 】

【表 8】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)	外部 量子効率 (%)
発光素子6	3.3	4.1	(0.66, 0.34)	26	25	22

【 0 2 4 2 】

また、発光素子 6 に 0.1 mA の電流を流した際の発光スペクトルを、図 2 8 に示す。図 2 8 において、横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。また、表 8 に示す通り、1100 cd/m<sup>2</sup> の輝度の時の発光素子 6 の CIE 色度座標は (x, y) = (0.66, 0.34) であった。この結果から、発光素子 6 は、[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)] に由来する赤色発光が得られたことがわかった。

【 0 2 4 3 】

表 8 及び図 2 4 乃至図 2 7 からわかるように、発光素子 6 は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

【 0 2 4 4 】

発光素子 6 では、実施例 6 に示した 2mDBTPDBq-II、NPB 及び [Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)] を発光層に用いた。実施例 6 より、2mDBTPDBq-II と NPB の混合材料の発光スペクトルは、[Ir(tppr)<sub>2</sub>(dpm)] の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子 6 は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

【 0 2 4 5 】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

10

20

30

40

50

## 【0246】

次に、発光素子6の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図29に示す。図29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。

## 【0247】

信頼性試験は、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発光素子6を駆動した。

## 【0248】

発光素子6は、98時間後の輝度が、初期輝度の87%であった。この結果から、発光素子6は、寿命の長い素子であることがわかった。

10

## 【0249】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、信頼性の高い素子を実現できることが示された。

## 【実施例8】

## 【0250】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができる、ゲスト材料及びホスト材料の一例について図30を用いて説明する。

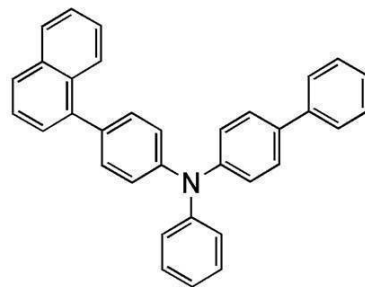
## 【0251】

本実施例で用いるゲスト材料は、[Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac)]である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2mDBTPDBq-IIとPCBA1BPの混合材料、及び2mDBTPDBq-IIと4-(1-ナフチル)-4'-フェニルトリフェニルアミン(略称：NBA1BP)の混合材料の2種類である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

20

## 【0252】

## 【化6】



αNBA1BP

30

## 【0253】

## &lt;吸収スペクトル&gt;

図30(A)(B)に[Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac)]のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルc)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計((株)日本分光製 V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.10 mol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

40

## 【0254】

## &lt;発光スペクトル&gt;

また、図30(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIとPCBA1BPの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルc-1)、及び2mDBTPDBq-IIとNBA1BPの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルc-2)を示す。図30(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>·cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。図30(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>·cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。

50

## 【0255】

図30(A)の吸収スペクトルcから、 $[Ir(mppm)_2(acac)]$ が、490nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

## 【0256】

発光スペクトルc-1及び発光スペクトルc-2のピークは、吸収スペクトルcにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とどちらかのホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

10

## 【0257】

ここで、発光スペクトルc-2は、発光スペクトルc-1よりも短波長(高エネルギー)側にピークを有する。そして、発光スペクトルc-2のピークは、発光スペクトルc-1のピークに比べて、該吸収帯と近い位置に存在する。具体的には、吸収スペクトルcにおける該吸収帯のピーク(490nm付近のショルダーピーク)と発光スペクトルc-1のピークの差は0.15eVであり、吸収スペクトルcにおける該吸収帯のピーク(490nm付近のショルダーピーク)と発光スペクトルc-2のピークの差は0.01eVであった。

## 【0258】

発光スペクトルc-1と発光スペクトルc-2のピークの差は、PCBA1BPとNBA1BPのHOMO準位の差によるものと考えられる。具体的には、PCBA1BPのHOMO準位が-5.43eVであるのに対し、NBA1BPのHOMO準位は-5.52eVであった(いずれもサイクリックボルタンメトリ(CV)測定により算出した値)。PCBA1BPに比べてNBA1BPは、HOMO準位が低い(深い)ため、発光スペクトルc-2のピークは、発光スペクトルc-1よりも短波長(高エネルギー)になったと考えられる。

20

## 【実施例9】

## 【0259】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料は先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

30

## 【0260】

以下に、本実施例の発光素子7及び発光素子8の作製方法を示す。

## 【0261】

(発光素子7)

まず、ガラス基板1100上に、ITOをスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

## 【0262】

次に、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。

40

## 【0263】

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、基板1100を30分程度放冷した。

## 【0264】

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、BPALP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、B

50

P A F L Pと酸化モリブデンの比率は、重量比で4 : 2 (= B P A F L P : 酸化モリブデン)となるように調節した。

【0265】

次に、正孔注入層1111上に、B P A F L P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。

【0266】

さらに、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、及び $[Ir(mppm)_2(acac)]$ 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、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP及び $[Ir(mppm)_2(acac)]$ の重量比は、0.8 : 0.2 : 0.05 (= 2mDBTPDBq-II : PCBA1BP :  $[Ir(mppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

10

【0267】

次に、発光層1113上に2mDBTPDBq-IIを膜厚10nmとなるよう成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0268】

次に、第1の電子輸送層1114a上に、BPhenを膜厚20nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0269】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

20

【0270】

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7を作製した。

【0271】

(発光素子8)

発光素子8の発光層1113は、2mDBTPDBq-II、NBA1BP及び $[Ir(mppm)_2(acac)]$ を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、NBA1BP及び $[Ir(mppm)_2(acac)]$ の重量比は、0.8 : 0.2 : 0.05 (= 2mDBTPDBq-II : NBA1BP :  $[Ir(mppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。発光層1113以外は、発光素子7と同様に作製した。

30

【0272】

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。

【0273】

以上により得られた発光素子7及び発光素子8の素子構造を表9に示す。

【0274】

【表9】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子7	ITSO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP: $[Ir(mppm)_2(acac)]$ (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子8	ITSO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II: $\alpha$ -NBA1BP: $[Ir(mppm)_2(acac)]$ (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

40

【0275】

これらの発光素子を、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封止する作業を行った後、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。

【0276】

50

発光素子7及び発光素子8の電流密度 - 輝度特性を図31に示す。図31において、横軸は電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ ) を、縦軸は輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) を表す。また、電圧 - 輝度特性を図32に示す。図32において、横軸は電圧 (V) を、縦軸は輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図33に示す。図33において、横軸は輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) を、縦軸は電流効率 ( $\text{cd}/\text{A}$ ) を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図34に示す。図34において、横軸は、輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ ) を、縦軸は外部量子効率 (%) を示す。

【0277】

また、発光素子7及び発光素子8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10に示す。

【0278】

【表10】

	電圧(V)	電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	色度 (x, 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7	3.2	1.6	(0.43, 0.56)	1100	69	68	20
発光素子8	3.0	1.1	(0.43, 0.56)	860	75	79	21

【0279】

また、発光素子7及び発光素子8に  $0.1 \text{ mA}$  の電流を流した際の発光スペクトルを、図35に示す。図35において、横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。また、表10に示す通り、 $1100 \text{ cd}/\text{m}^2$  の輝度の時の発光素子7のCIE色度座標は (x, y) = (0.43, 0.56) であり、 $860 \text{ cd}/\text{m}^2$  の輝度の時の発光素子8のCIE色度座標は (x, y) = (0.43, 0.56) であった。この結果から、発光素子7及び発光素子8は、 $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$  に由来する黄緑色発光が得られたことがわかった。

【0280】

表10及び図31乃至図34からわかるように、発光素子7及び発光素子8は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

【0281】

発光素子7及び発光素子8は、実施例8に示したPCBA1BP又はNBA1BPと、2mDBTPDBq-IIと、 $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$  と、を発光層に用いた。実施例8より、2mDBTPDBq-IIと、PCBA1BP又はNBA1BPとの混合材料の発光スペクトルは、 $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$  の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子7及び発光素子8は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

【0282】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

【0283】

次に、発光素子7及び発光素子8の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図36に示す。図36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。

【0284】

信頼性試験は、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発光素子7及び発光素子8を駆動した。

【0285】

発光素子7は、260時間後の輝度が、初期輝度の  $74\%$  であった。また、発光素子8は

10

20

30

40

50

、260時間後の輝度が、初期輝度の75%であった。この結果から、発光素子7及び発光素子8は、寿命の長い素子であることがわかった。

【0286】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、信頼性の高い素子を実現できることが示された。

【実施例10】

【0287】

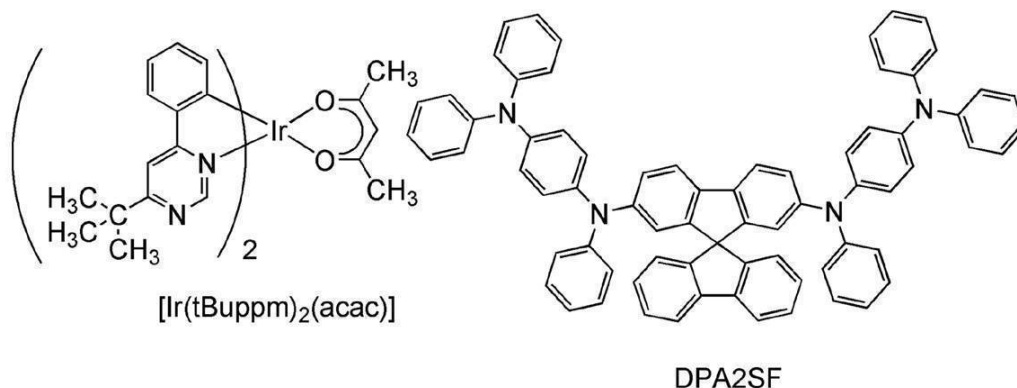
本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができる、ゲスト材料及びホスト材料の一例について図37を用いて説明する。

【0288】

本実施例で用いるゲスト材料は、(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>(acac)])である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2mDBTPDBq-IIとNPBとの混合材料、及び2mDBTPDBq-IIと2,7-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]-スピロ-9,9'-ビフルオレン(略称:DPA2SF)との混合材料の2種類である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

【0289】

【化7】



【0290】

<吸収スペクトル>

図37(A)(B)に[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルd)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計(株)日本分光製V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.093mmol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

【0291】

<発光スペクトル>

また、図37(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIとDPA2SFの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルd-1)、及び2mDBTPDBq-IIとNPBの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルd-2)を示す。図37(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>·cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。図37(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数(M<sup>-1</sup>·cm<sup>-1</sup>)及び発光強度(任意単位)を示す。

【0292】

図37(A)の吸収スペクトルdから、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]が、490nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

【0293】

発光スペクトルd-1及び発光スペクトルd-2のピークは、吸収スペクトルdにおいて

10

20

30

40

50

発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とどちらかのホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

【0294】

ここで、発光スペクトルd-2は、発光スペクトルd-1よりも短波長（高エネルギー）側にピークを有する。そして、発光スペクトルd-2のピークは、発光スペクトルd-1のピークに比べて、該吸収帯と近い位置に存在する。以上のことから、図37において、吸収スペクトルdの発光に強く寄与する吸収帯と最も重なりが大きい発光スペクトルは、発光スペクトルd-2であることがわかった。具体的には、吸収スペクトルdにおける該吸収帯のピークと発光スペクトルd-1のピークの差は0.39 eVであり、吸収スペクトルdにおける該吸収帯のピークと発光スペクトルd-2のピークの差は0.19 eVであった。

10

【0295】

発光スペクトルd-1と発光スペクトルd-2のピークの差は、DPA2SFとNPBのHOMO準位の差によるものと考えられる。具体的には、DPA2SFのHOMO準位が-5.09 eVであるのに対し、NPBのHOMO準位は-5.38 eVであった（いずれもCV測定により算出した値）。DPA2SFに比べて、NPBはHOMO準位が低い（深い）ため、発光スペクトルd-2のピークは、発光スペクトルd-1よりも短波長（高エネルギー）になったと考えられる。

20

【0296】

以上のことから、2mDBTPDBq-IIとNPBの混合材料、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]とを共に発光層に用いた発光素子は、2mDBTPDBq-IIとDPA2SFの混合材料、及び[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]とを共に発光層に用いた発光素子に比べて、ホスト材料の発光スペクトルとゲスト材料の吸収スペクトルとのより大きな重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

30

【実施例11】

【0297】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料は先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

【0298】

以下に、本実施例の発光素子9及び発光素子10の作製方法を示す。

【0299】

（発光素子9）

まず、ガラス基板1100上に、ITOをスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第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。

40

【0300】

次に、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。

【0301】

その後、10<sup>-4</sup> Pa程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、170 で30分間の真空焼成を行った後、基板1100を30分程度放冷した。

【0302】

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が形成された基板1100を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、10<sup>-4</sup> P

50

a程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、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。

【0303】

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

【0304】

さらに、2mDBTPDBq-II、DPA2SF、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、2mDBTPDBq-II、DPA2SF及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:DPA2SF: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。

10

【0305】

次に、発光層1113上に2mDBTPDBq-IIを膜厚10nmとなるよう成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0306】

次に、第1の電子輸送層1114a上に、BPhenを膜厚20nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

20

【0307】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

【0308】

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9を作製した。

【0309】

(発光素子10)

発光素子10の発光層1113は、2mDBTPDBq-II、NPB及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、NPB及び $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:NPB: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は40nmとした。発光層1113以外は、発光素子9と同様に作製した。

30

【0310】

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。

【0311】

以上により得られた発光素子9及び発光素子10の素子構造を表11に示す。

【0312】

【表11】

40

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子9	ITSO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:DPA2SF: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子10	ITSO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:NPB: $[Ir(tBuppm)_2(acac)]$ (=0.8:0.2:0.05) 40nm	2mDBTPDBq-II 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0313】

これらの発光素子を、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封止する作業を行った後、発光素子の動作特性について測定を行った。なお

50

、測定は室温（25℃に保たれた雰囲気）で行った。

【0314】

発光素子9及び発光素子10の電流密度 - 輝度特性を図38に示す。図38において、横軸は電流密度（mA/cm<sup>2</sup>）を、縦軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を表す。また、電圧 - 輝度特性を図39に示す。図39において、横軸は電圧（V）を、縦軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図40に示す。図40において、横軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図41に示す。図41において、横軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）を、縦軸は外部量子効率（%）を示す。

【0315】

また、発光素子9及び発光素子10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12に示す。

【0316】

【表12】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 (x, 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9	2.9	1.7	(0.43, 0.56)	890	52	56	15
発光素子10	2.8	1.0	(0.42, 0.57)	820	84	95	23

【0317】

また、発光素子9及び発光素子10に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図42に示す。図42において、横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。また、表12に示す通り、890cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子9のCIE色度座標は（x、y）＝（0.43、0.56）であり、820cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子10のCIE色度座標は（x、y）＝（0.42、0.57）であった。この結果から、発光素子9及び発光素子10は、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]に由来する黄緑色発光が得られたことがわかった。

【0318】

表12及び図38乃至図41からわかるように、発光素子9及び発光素子10は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

【0319】

発光素子9及び発光素子10は、実施例10に示したDPA2SF又はNPBと、2mDBTPDBq - IIと、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]と、を発光層に用いた。実施例10より、2mDBTPDBq - IIと、DPA2SF又はNPBとの混合材料の発光スペクトルは、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子9及び発光素子10は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。特に、2mDBTPDBq - IIとNPBの混合材料の発光スペクトルは、2mDBTPDBq - IIとDPA2SFの混合材料の発光スペクトルに比べて、該吸収帯との重なりが大きい。したがって、発光素子10は、該大きな重なりを利用してエネルギー移動をするため、発光素子9に比べてエネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。また、実施例10の結果を合わせて参照することで、発光層において、ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、ゲスト材料の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は、0.3eV以内であると好ましいことがわかる。

【0320】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

## 【実施例 12】

## 【0321】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができる、ゲスト材料及びホスト材料の一例について図43を用いて説明する。

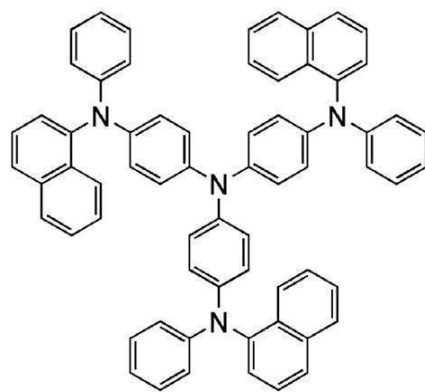
## 【0322】

本実施例で用いるゲスト材料は、 $[\text{Ir}(\text{mppr}-\text{Me})_2(\text{dpm})]$ である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2mDBTPDBq-IIと4,4',4''-トリス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(略称:1'-TNATA)との混合材料、及び2-[4-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール(略称:DBTBIIm-II)と1'-TNATAとの混合材料の2種類である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

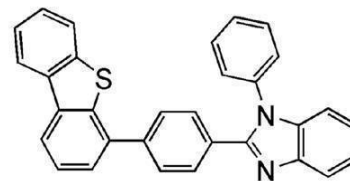
10

## 【0323】

## 【化8】



1'-TNATA



DBTBIIm-II

20

## 【0324】

## &lt;吸収スペクトル&gt;

図43(A)(B)に $[\text{Ir}(\text{mppr}-\text{Me})_2(\text{dpm})]$ のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルe)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計(株)日本分光製V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.093mmol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

30

## 【0325】

## &lt;発光スペクトル&gt;

また、図43(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIと1'-TNATAの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルe-1)、及びDBTBIIm-IIと1'-TNATAの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルe-2)を示す。図43(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数( $\text{M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ )及び発光強度(任意単位)を示す。図43(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数( $\text{M}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ )及び発光強度(任意単位)を示す。

40

## 【0326】

図43(A)の吸収スペクトルeから、 $[\text{Ir}(\text{mppr}-\text{Me})_2(\text{dpm})]$ が、520nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

## 【0327】

発光スペクトルe-1及び発光スペクトルe-2のピークは、吸収スペクトルeにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とどちらかのホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホ

50

スト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

【0328】

ここで、発光スペクトル e - 2 は、発光スペクトル e - 1 よりも短波長（高エネルギー）側にピークを有する。そして、発光スペクトル e - 2 のピークは、発光スペクトル e - 1 のピークに比べて、該吸収帯と近い位置に存在する。以上のことから、図 43 において、吸収スペクトル e の発光に強く寄与する吸収帯と最も重なりが大きい発光スペクトルは、発光スペクトル e - 2 であることがわかった。具体的には、吸収スペクトル e における該吸収帯のピーク（520 nm 付近のショルダーピーク）と発光スペクトル e - 1 のピークの差は 0.35 eV であり、吸収スペクトル e における該吸収帯のピーク（520 nm 付近のショルダーピーク）と発光スペクトル e - 2 のピークの差は 0.01 eV であった。

10

【0329】

発光スペクトル e - 1 と発光スペクトル e - 2 のピークの差は、2 m D B T P D B q - I I と D B T B I m - I I の L U M O 準位の差によるものと考えられる。具体的には、2 m D B T P D B q - I I の L U M O 準位が - 2.95 eV であるのに対し、D B T B I m - I I の L U M O 準位は - 2.52 eV であった（いずれも C V 測定により算出した値）。2 m D B T P D B q - I I に比べて、D B T B I m - I I は L U M O 準位が高い（浅い）ため、H O M O 準位が高い 1' - T N A T A と混合しても、混合材料の発光スペクトルのピークは長波長になりすぎなかった（つまり、発光スペクトル e - 2 が、発光スペクトル e - 1 に比べて短波長側にピークを有した）と考えられる。

20

【0330】

以上のことから、D B T B I m - I I と 1' - T N A T A の混合材料、及び [ I r ( m p p r - M e )<sub>2</sub> ( d p m ) ] を用いた発光素子は、2 m D B T P D B q - I I と 1' - T N A T A の混合材料、及び [ I r ( m p p r - M e )<sub>2</sub> ( d p m ) ] を用いた発光素子に比べて、該混合材料の発光スペクトルと燐光性化合物の吸収スペクトルとのより大きな重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率がより高いことが示唆された。したがって、外部量子効率がより高い発光素子を得られることが示唆された。

【実施例 13】

【0331】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料は先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

30

【0332】

以下に、本実施例の発光素子 11 及び発光素子 12 の作製方法を示す。

【0333】

（発光素子 11）

まず、ガラス基板 1100 上に、I T S O をスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第 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。

【0334】

次に、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、U V オゾン処理を 370 秒行った。

40

【0335】

その後、10<sup>-4</sup> Pa 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、170 で 30 分間の真空焼成を行った後、基板 1100 を 30 分程度放冷した。

【0336】

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 が形成された基板 1100 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、10<sup>-4</sup> Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 1101 上に、B P A F L P と酸化モリブデン ( V I

50

)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、BPAFLPと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=BPAFLP:酸化モリブデン)となるように調節した。

【0337】

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

【0338】

さらに、2mDBTPDBq-II、1'-TNATA、及び[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]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、2mDBTPDBq-II、1'-TNATA及び[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:1'-TNATA:[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は20nmとした。

【0339】

次に、発光層1113上に2mDBTPDBq-IIを膜厚30nmとなるよう成膜し、第1の電子輸送層1114aを形成した。

【0340】

次に、第1の電子輸送層1114a上に、BPhenを膜厚20nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0341】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

【0342】

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11を作製した。

【0343】

(発光素子12)

発光素子12の発光層1113は、DBTBIIm-II、1'-TNATA及び[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]を共蒸着することで形成した。ここで、DBTBIIm-II、1'-TNATA及び[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=DBTBIIm-II:1'-TNATA:[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は20nmとした。

【0344】

発光素子12の第1の電子輸送層1114aは、DBTBIIm-IIを膜厚30nmとなるように成膜することで形成した。発光層1113及び第1の電子輸送層1114a以外は、発光素子11と同様に作製した。

【0345】

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。

【0346】

以上により得られた発光素子11及び発光素子12の素子構造を表13に示す。

【0347】

【表13】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子11	ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:1'-TNATA:[Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	2mDBTPDBq-II 30nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子12	ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	DBTBIIm-II:1'-TNATA:[Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	DBTBIIm-II 30nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

10

20

30

40

50

【0348】

これらの発光素子を、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封止する作業を行った後、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。

【0349】

発光素子11及び発光素子12の電流密度-輝度特性を図44に示す。図44において、横軸は電流密度（mA/cm<sup>2</sup>）を、縦軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を表す。また、電圧-輝度特性を図45に示す。図45において、横軸は電圧（V）を、縦軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を表す。また、輝度-電流効率特性を図46に示す。図46において、横軸は輝度（cd/m<sup>2</sup>）を、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図47に示す。図47において、横軸は、輝度（cd/m<sup>2</sup>）を、縦軸は外部量子効率（%）を示す。

10

【0350】

また、発光素子11及び発光素子12における輝度860cd/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14に示す。

【0351】

【表14】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 (x, 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11	3.1	2.9	(0.53, 0.46)	860	29	30	11
発光素子12	3.8	1.5	(0.53, 0.46)	860	58	48	21

20

【0352】

また、発光素子11及び発光素子12に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図48に示す。図48において、横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。また、表14に示す通り、860cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子11及び発光素子12のCIE色度座標は（x，y）＝（0.53，0.46）であった。この結果から、発光素子11及び発光素子12は、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]に由来する橙色発光が得られたことがわかった。

30

【0353】

表14及び図44乃至図47からわかるように、発光素子11及び発光素子12は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

【0354】

発光素子11及び発光素子12は、実施例12に示した2mDBTPDBq-II又はDBTBIm-IIと、1'-TNATAと、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]とを発光層に用いた。実施例12より、2mDBTPDBq-II又はDBTBIm-IIと、1'-TNATAとの混合材料の発光スペクトルは、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子11及び発光素子12は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。特に、DBTBIm-IIと1'-TNATAの混合材料の発光スペクトルは、2mDBTPDBq-IIと1'-TNATAの混合材料の発光スペクトルに比べて、該吸収帯との重なりが大きい。したがって、発光素子12は、該大きな重なりを利用してエネルギー移動をするため、発光素子11に比べてエネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。また、実施例12の結果を合わせて参照することで、発光層において、ホスト材料の発光スペクトルのピークのエネルギー値と、ゲスト材料の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は、0.3eV以内であると好ましいことがわかる。

40

50

## 【0355】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

## 【実施例14】

## 【0356】

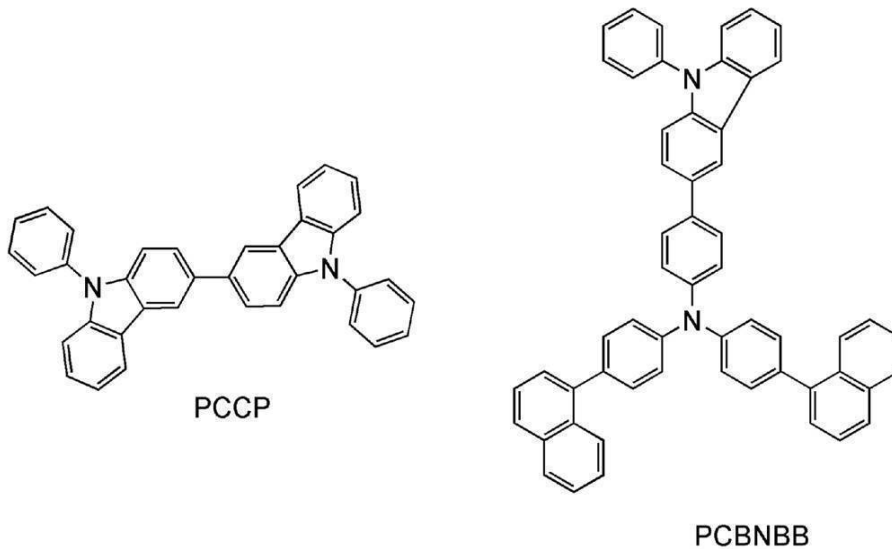
本実施例では、本発明の一態様の発光素子に適用することができる、ゲスト材料及びホスト材料の一例について図49を用いて説明する。

## 【0357】

本実施例で用いるゲスト材料は、 $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ である。また、本実施例で用いるホスト材料は、2mDBTPDBq-IIとPCBNBBとの混合材料、及び2mDBTPDBq-IIと9-フェニル-9H-3-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)カルバゾール(略称:PCCP)との混合材料の2種類である。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の化学式は省略する。

## 【0358】

## 【化9】



## 【0359】

## &lt;吸収スペクトル&gt;

図49(A)(B)に $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ のジクロロメタン溶液の紫外可視吸収スペクトル(吸収スペクトルf)を示す。吸収スペクトルの測定には、紫外可視分光光度計((株)日本分光製 V550型)を用い、ジクロロメタン溶液(0.093mmol/L)を石英セルに入れ、室温で測定を行った。

## 【0360】

## &lt;発光スペクトル&gt;

また、図49(A)(B)に、2mDBTPDBq-IIとPCBNBBの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルf-1)、及び2mDBTPDBq-IIとPCCPの混合材料の薄膜の発光スペクトル(発光スペクトルf-2)を示す。図49(A)において、横軸は、波長(nm)を示し、縦軸は、モル吸光係数( $M^{-1} \cdot cm^{-1}$ )及び発光強度(任意単位)を示す。図49(B)において、横軸は、エネルギー(eV)を示し、縦軸は、モル吸光係数( $M^{-1} \cdot cm^{-1}$ )及び発光強度(任意単位)を示す。

## 【0361】

図49(A)の吸収スペクトルfから、 $[Ir(mppr-Me)_2(dpm)]$ が、500nm付近にブロードな吸収帯を有することがわかる。この吸収帯が、発光に強く寄与する吸収帯であると考えられる。

## 【0362】

発光スペクトル f - 1 及び発光スペクトル f - 2 のピークは、吸収スペクトル f において発光に強く寄与すると考えられる吸収帯と重なりが大きいことがわかった。よって、本実施例で用いたゲスト材料とどちらかのホスト材料とを共に発光層に用いた発光素子は、ホスト材料の発光スペクトルと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、エネルギー移動効率が高いことが示唆された。したがって、外部量子効率が高い発光素子を得られることが示唆された。

【0363】

また、本実施例から、ホスト材料としては、芳香族アミン系の化合物を含む混合材料だけでなく、カルバゾール化合物を含む混合材料も用いることができると示唆された。

【実施例15】

【0364】

本実施例では、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。本実施例で用いた材料は先の実施例で用いた材料であるため、化学式は省略する。

【0365】

以下に、本実施例の発光素子13及び発光素子14の作製方法を示す。

【0366】

(発光素子13)

まず、ガラス基板1100上に、ITOをスパッタリング法にて成膜し、陽極として機能する第1の電極1101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。

【0367】

次に、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。

【0368】

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、基板1100を30分程度放冷した。

【0369】

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、BPAFLP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、BPAFLPと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=BPAFLP:酸化モリブデン)となるように調節した。

【0370】

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

【0371】

さらに、2mDBTPDBq-II、PCBNBB、及び $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ 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、2mDBTPDBq-II、PCBNBB及び $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBNBB: $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ )となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は20nmとした。

【0372】

次に、発光層1113上に2mDBTPDBq-II、PCBNBB、及び $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ を共蒸着し、発光層1113上に第1の電子輸送層1114aを形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、PCBNBB及び $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBNBB: $[Ir(mppr-Me)_2(dp)]$ )となるように調節し

10

20

30

40

50

た。また、第1の電子輸送層1114aの膜厚は40nmとした。

【0373】

次に、第1の電子輸送層1114a上に、BPhenを膜厚10nmとなるように成膜し、第2の電子輸送層1114bを形成した。

【0374】

さらに、第2の電子輸送層1114b上に、LiFを1nmの膜厚で蒸着し、電子注入層1115を形成した。

【0375】

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13を作製した。

10

【0376】

(発光素子14)

発光素子14の発光層1113は、2mDBTPDBq-II:PCBNBB: [Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]を共蒸着することで形成した。ここで、2mDBTPDBq-II、PCCP及び[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]の重量比は、0.8:0.2:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCCP:[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)])となるように調節した。また、発光層1113の膜厚は20nmとした。発光層1113以外は、発光素子13と同様に作製した。

【0377】

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。

20

【0378】

以上により得られた発光素子13及び発光素子14の素子構造を表15に示す。

【0379】

【表15】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	第1の電子輸送層	第2の電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子13	ITSO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBNBB: [Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBNBB: [Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子14	ITSO 110nm	BPAFLP:MoOx (=4:2) 40nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCCP: [Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBNBB: [Ir(mppr-Me) <sub>2</sub> (dpm)] (=0.8:0.2:0.05) 40nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm

30

【0380】

これらの発光素子を、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封止する作業を行った後、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。

【0381】

発光素子13及び発光素子14の電流密度-輝度特性を図50に示す。図50において、横軸は電流密度(mA/cm<sup>2</sup>)を、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、電圧-輝度特性を図51に示す。図51において、横軸は電圧(V)を、縦軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を表す。また、輝度-電流効率特性を図52に示す。図52において、横軸は輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図53に示す。図53において、横軸は、輝度(cd/m<sup>2</sup>)を、縦軸は外部量子効率(%)を示す。

40

【0382】

また、発光素子13及び発光素子14における輝度1200cd/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16に示す。

【0383】

50

【表 16】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	色度 (x, 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	3.0	1.7	(0.54, 0.45)	1200	67	70	24
発光素子14	3.0	1.7	(0.54, 0.46)	1200	69	72	24

## 【0384】

また、発光素子13及び発光素子14に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図54に示す。図54において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。また、表16に示す通り、1200cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子13のCIE色度座標は(x, y) = (0.54, 0.45)であり、1200cd/m<sup>2</sup>の輝度の時の発光素子14のCIE色度座標は(x, y) = (0.54, 0.46)であった。この結果から、発光素子13及び発光素子14は、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]に由来する橙色発光が得られたことがわかった。

10

## 【0385】

表16及び図50乃至図53からわかるように、発光素子13及び発光素子14は、電流効率、パワー効率、外部量子効率がそれぞれ高い値を示した。

## 【0386】

発光素子13及び発光素子14は、実施例14に示した2mDBTPDBq-IIと、PCBNBB又はPCCPと、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]と、を発光層に用いた。実施例14より、2mDBTPDBq-IIと、PCBNBB又はPCCPとの混合材料の発光スペクトルは、[Ir(mppr-Me)<sub>2</sub>(dpm)]の吸収スペクトルにおいて発光に強く寄与すると考えられる吸収帯との重なりが大きい。発光素子13及び発光素子14は、該重なりを利用してエネルギー移動をするため、エネルギー移動効率が高く、外部量子効率が高いと考えられる。

20

## 【0387】

また、本実施例から、発光層のホスト材料として、芳香族アミン系の化合物(PCBNBB)を含む混合材料でなく、カルバゾール化合物(PCCP)を含む混合材料を用いても、外部量子効率が高い発光素子を得られることがわかった。

30

## 【0388】

以上の結果から、本発明の一態様を適用することで、外部量子効率の高い素子を実現できることが示された。

## 【0389】

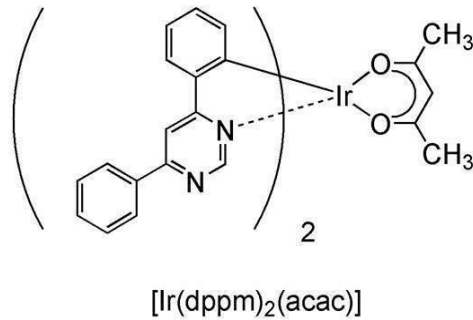
(参考例1)

上記実施例で用いた有機金属錯体、(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)(別名:ビス[2-(6-フェニル-4-ピリミジニル-N3)フェニル-C](2,4-ペンタンジオナト-<sup>2</sup>O, O')イリジウム(III))(略称:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)])の合成例を示す。なお、[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acac)]の構造を以下に示す。

40

## 【0390】

【化10】



10

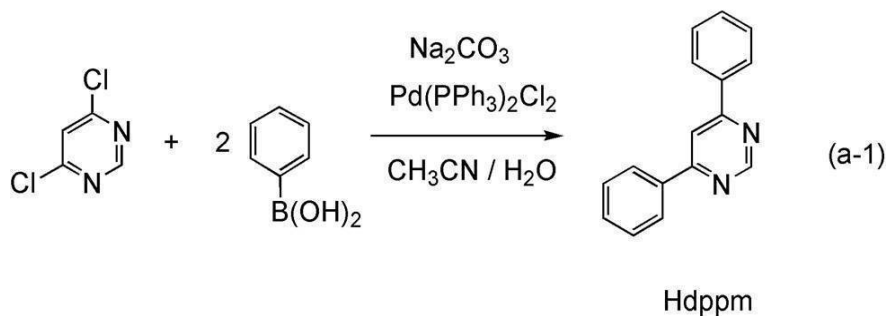
【0391】

<ステップ1；4，6 - ジフェニルピリミジン（略称：H d p p m）の合成>  
 まず、4，6 - ジクロロピリミジン 5.02 g、フェニルボロン酸 8.29 g、炭酸ナトリウム 7.19 g、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド(略称：Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>) 0.29 g、水 20 mL、アセトニトリル 20 mL を、還流管を付けたナスフラスコに入れ、内部をアルゴン置換した。この反応容器にマイクロ波(2.45 GHz 100 W)を60分間照射することで加熱した。ここで更にフェニルボロン酸 2.08 g、炭酸ナトリウム 1.79 g、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 0.070 g、水 5 mL、アセトニトリル 5 mL をフラスコに入れ、再度マイクロ波(2.45 GHz 100 W)を60分間照射することで加熱した。その後この溶液に水を加え、ジクロロメタンにて有機層を抽出した。得られた抽出液を水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥させた。乾燥した後の溶液を濾過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を、ジクロロメタンを展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、ピリミジン誘導体 H d p p m を得た(黄白色粉末、収率 38%)。なお、マイクロ波の照射は、マイクロ波合成装置(CEM社製 Discover)を用いた。以下にステップ1の合成スキーム(a-1)を示す。

20

【0392】

【化11】



30

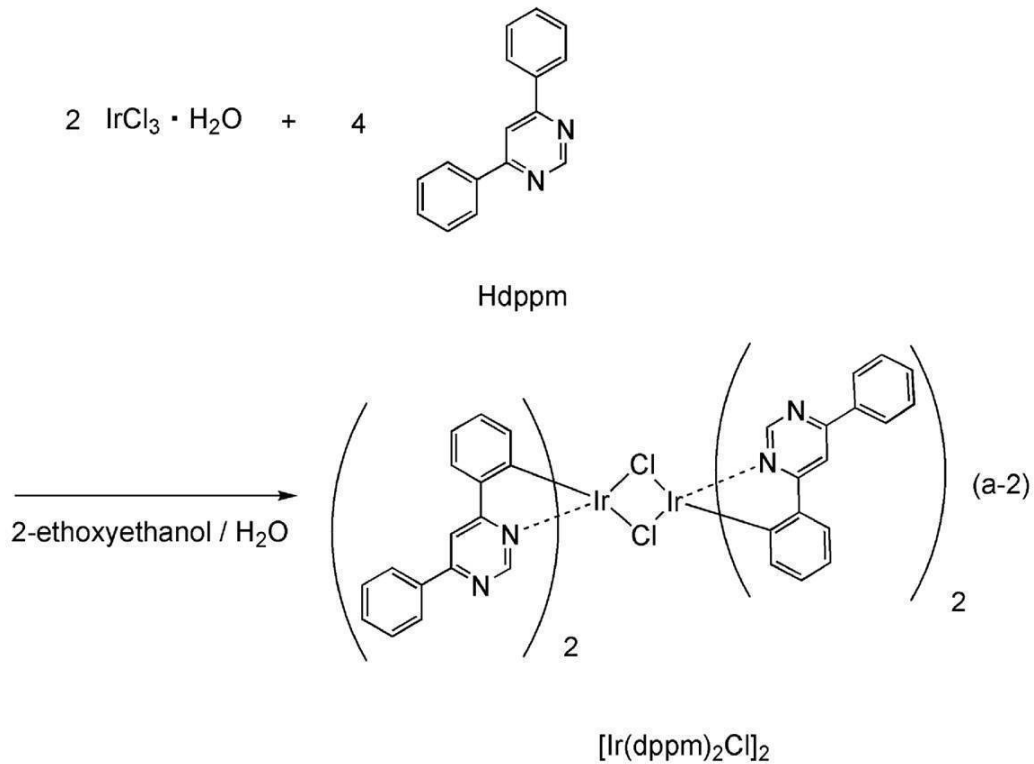
【0393】

<ステップ2；ジ-μ-クロロ-ビス[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>Cl]<sub>2</sub>)の合成>  
 次に、2 - エトキシエタノール 15 mL、水 5 mL、上記ステップ1で得た Hdppm 1.10 g、塩化イリジウム水和物(IrCl<sub>3</sub>·H<sub>2</sub>O) 0.69 g を、還流管を付けたナスフラスコに入れ、ナスフラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波(2.45 GHz 100 W)を1時間照射し、反応させた。溶媒を留去した後、得られた残渣をエタノールで濾過し、次いで洗浄し、複核錯体 [Ir(dppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub> を得た(赤褐色粉末、収率 88%)。以下にステップ2の合成スキーム(a-2)を示す。

40

【0394】

## 【化 1 2】



## 【 0 3 9 5】

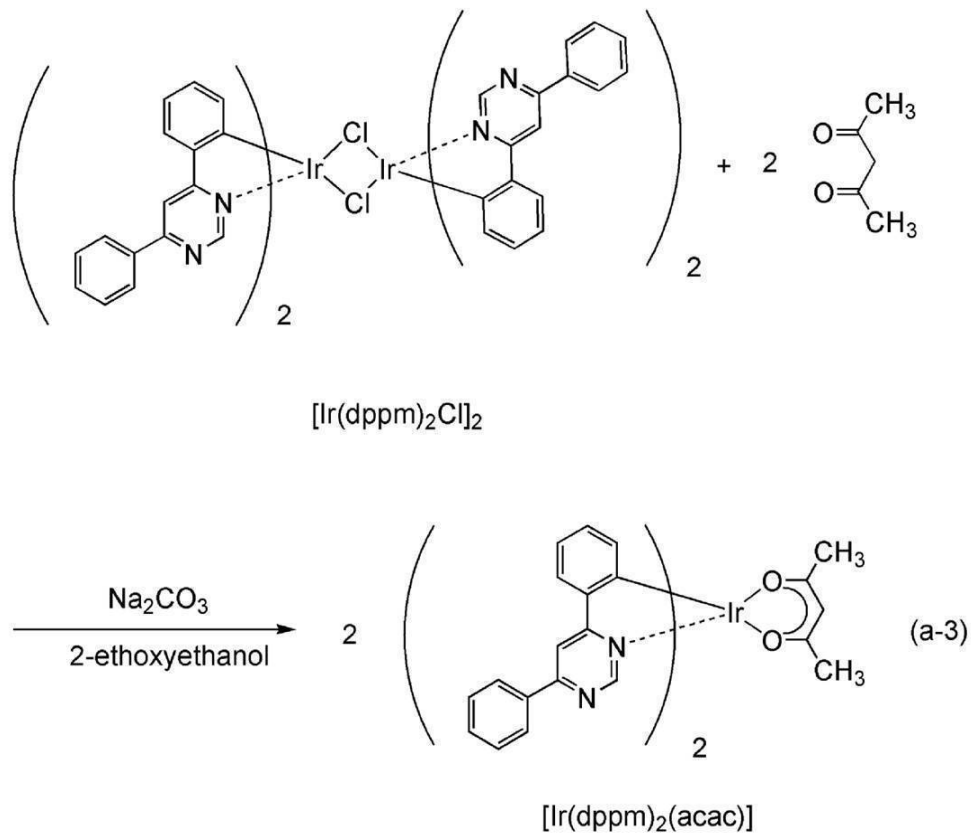
<ステップ 3 ; (アセチルアセトナト)ビス(4,6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(dppm)<sub>2</sub>(acaac)])の合成>

さらに、2-エトキシエタノール40mL、上記ステップ2で得た[Ir(dppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub>1.44g、アセチルアセトン0.30g、炭酸ナトリウム1.07gを、還流管を付けたナスフラスコに入れ、ナスフラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波(2.45GHz 120W)を60分間照射し、反応させた。溶媒を留去し、得られた残渣をジクロロメタンに溶解して濾過し、不溶物を除去した。得られた濾液を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥させた。乾燥した後の溶液を濾過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を、ジクロロメタン：酢酸エチル=50：1(体積比)を展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。その後、ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒にて再結晶することにより、目的物である橙色粉末を得た(収率32%)。以下にステップ3の合成スキーム(a-3)を示す。

30

## 【 0 3 9 6】

## 【化 1 3】



10

20

## 【0397】

上記ステップ3で得られた橙色粉末の核磁気共鳴分光法 ( $^1\text{H}$  NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、有機金属錯体  $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$  が得られたことがわかった。

## 【0398】

$^1\text{H}$  NMR. ( $\text{CDCl}_3$ ): 1.83 (s, 6H), 5.29 (s, 1H), 6.48 (d, 2H), 6.80 (t, 2H), 6.90 (t, 2H), 7.55 - 7.63 (m, 6H), 7.77 (d, 2H), 8.17 (s, 2H), 8.24 (d, 4H), 9.17 (s, 2H).

30

## 【0399】

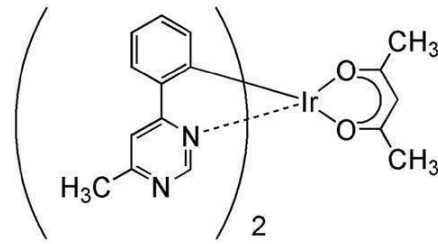
(参考例2)

上記実施例で用いた有機金属錯体、(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)(別名:ビス[2-(6-メチル-4-ピリミジニル-N3)フェニル-C](2,4-ペンタンジオナト- $^2\text{O}$ ,  $\text{O}'$ )イリジウム(III))(略称:  $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$ )の合成例を示す。なお、 $[\text{Ir}(\text{mppm})_2(\text{acac})]$ の構造を以下に示す。

40

## 【0400】

## 【化14】

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

10

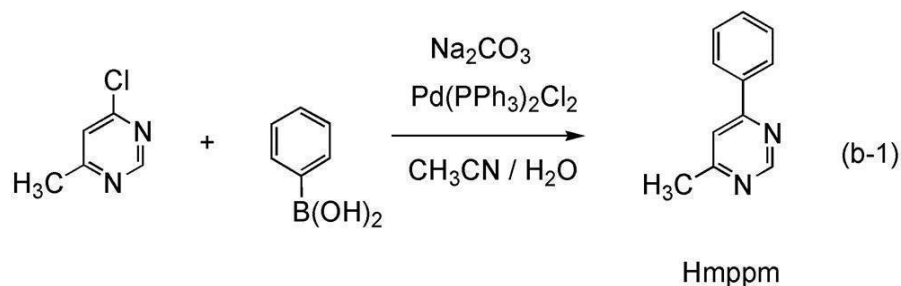
## 【0401】

<ステップ1；4-メチル-6-フェニルピリミジン（略称：Hm p p m）の合成>  
 まず、4-クロロ-6-メチルピリミジン 4.90 g、フェニルボロン酸 4.80 g、炭酸ナトリウム 4.03 g、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド（略称：Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>）0.16 g、水 20 mL、アセトニトリル 10 mL を、還流管を付けたナスフラスコに入れ、内部をアルゴン置換した。この反応容器にマイクロ波（2.45 GHz 100 W）を60分間照射することで加熱した。ここでさらにフェニルボロン酸 2.28 g、炭酸ナトリウム 2.02 g、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 0.082 g、水 5 mL、アセトニトリル 10 mL をフラスコに入れ、再度マイクロ波（2.45 GHz 100 W）を60分間照射することで加熱した。その後この溶液に水を加え、ジクロロメタンにて抽出した。得られた抽出液を飽和炭酸ナトリウム水溶液、水、次いで飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥させた。乾燥した後の溶液を濾過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を、ジクロロメタン：酢酸エチル = 9：1（体積比）を展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、目的のピリミジン誘導体 Hm p p m を得た（橙色油状物、収率 46%）。なお、マイクロ波の照射はマイクロ波合成装置（CEM社製 Discover）を用いた。以下にステップ1の合成スキーム（b-1）を示す。

20

## 【0402】

## 【化15】



30

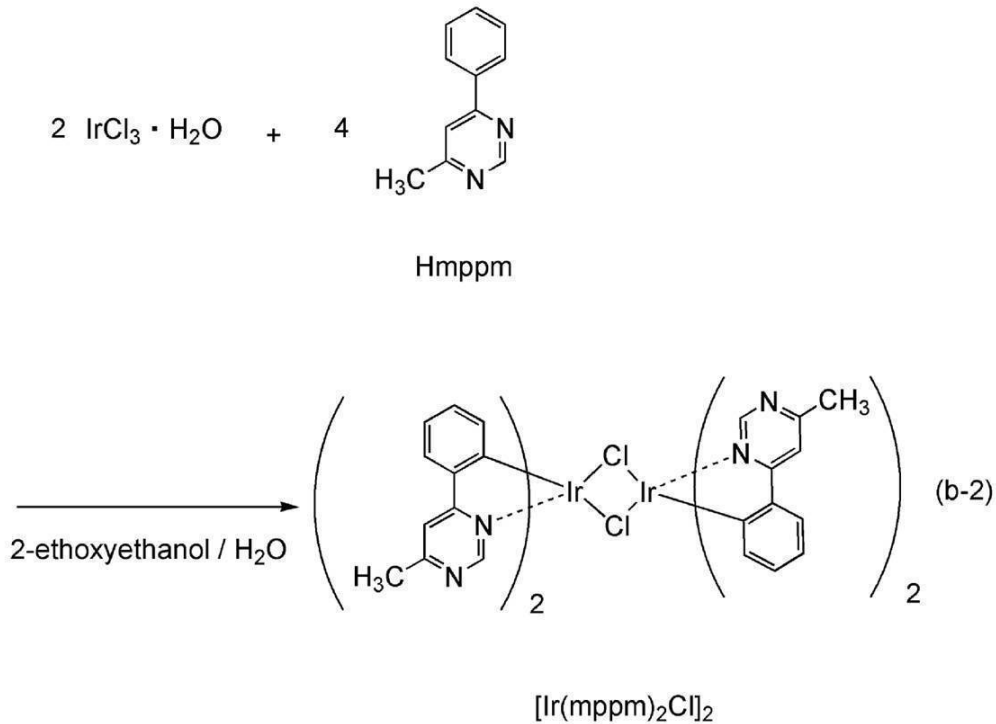
## 【0403】

<ステップ2；ジ-μ-クロロ-ビス[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>Cl]<sub>2</sub>）の合成>  
 次に、2-エトキシエタノール 15 mL、水 5 mL、上記ステップ1で得た Hm p p m 1.51 g、塩化イリジウム水和物（IrCl<sub>3</sub>・H<sub>2</sub>O）1.26 g を、還流管を付けたナスフラスコに入れ、ナスフラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波（2.45 GHz 100 W）を1時間照射し、反応させた。溶媒を留去した後、得られた残渣をエタノールで洗浄し、濾過することにより複核錯体 [Ir(mppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub> を得た（暗緑色粉末、収率 77%）。以下にステップ2の合成スキーム（b-2）を示す。

40

## 【0404】

## 【化16】



## 【0405】

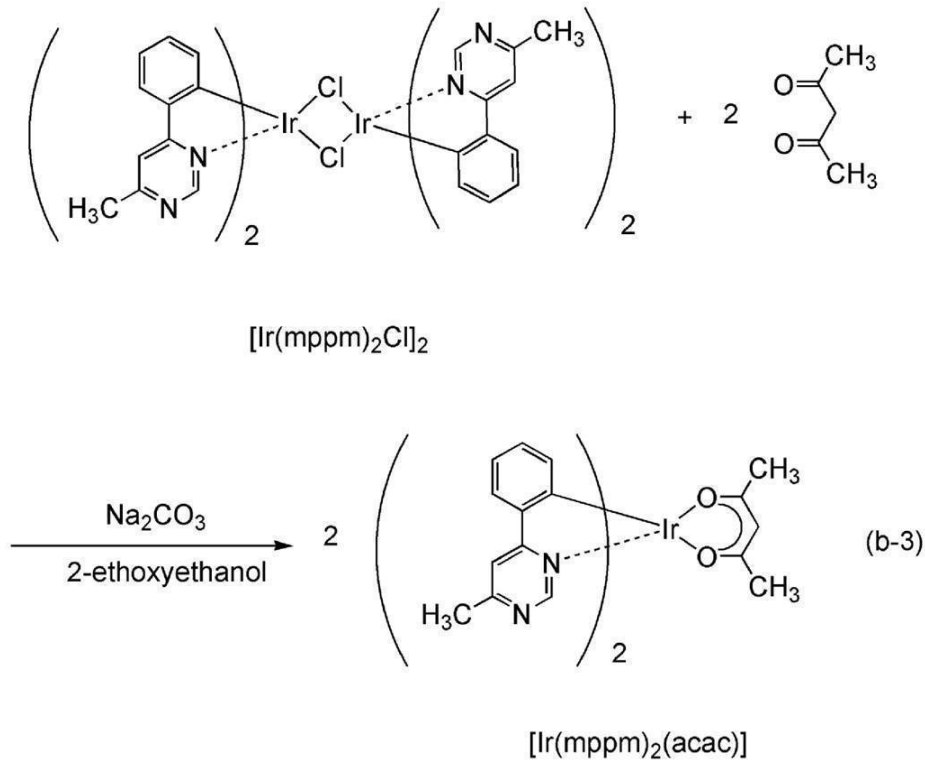
<ステップ3；(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称：[Ir(mppm)<sub>2</sub>(acaac)] )の合成>

さらに、2-エトキシエタノール40mL、上記ステップ2で得た複核錯体[Ir(mppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub>1.84g、アセチルアセトン0.48g、炭酸ナトリウム1.73gを、還流管を付けたナスフラスコに入れ、ナスフラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波(2.45GHz 120W)を60分間照射し、反応させた。溶媒を留去し、得られた残渣をジクロロメタンに溶解して濾過し、不溶物を除去した。得られた濾液を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥させた。乾燥した後の溶液を濾過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を、ジクロロメタン：酢酸エチル=4：1(体積比)を展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。その後、ジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒にて再結晶することにより、目的物を黄色粉末として得た(収率22%)。以下にステップ3の合成スキーム(b-3)を示す。

30

## 【0406】

## 【化17】



10

20

## 【0407】

上記ステップ3で得られた黄色粉末の核磁気共鳴分光法 (<sup>1</sup>H NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、有機金属錯体 [Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac)] が得られたことがわかった。

## 【0408】

<sup>1</sup>H NMR. (CDCl<sub>3</sub>): 1.78 (s, 6H), 2.81 (s, 6H), 5.24 (s, 1H), 6.37 (d, 2H), 6.77 (t, 2H), 6.85 (t, 2H), 7.61 - 7.63 (m, 4H), 8.97 (s, 2H).

30

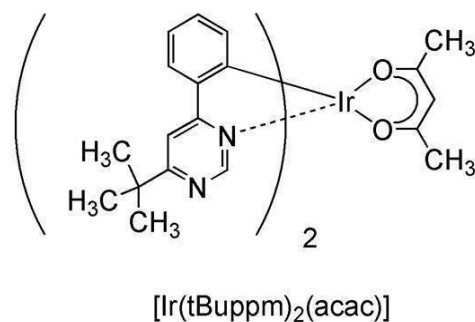
## 【0409】

(参考例3)

上記実施例で用いた有機金属錯体、(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)(別名:ビス[2-(6-tert-ブチル-4-ピリミジニル-N3)フェニル-C](2,4-ペンタンジオナト-<sup>2</sup>O,O')イリジウム(III))(略称:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)])の合成例を示す。なお、[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の構造を以下に示す。

## 【0410】

## 【化18】



40

## 【0411】

50

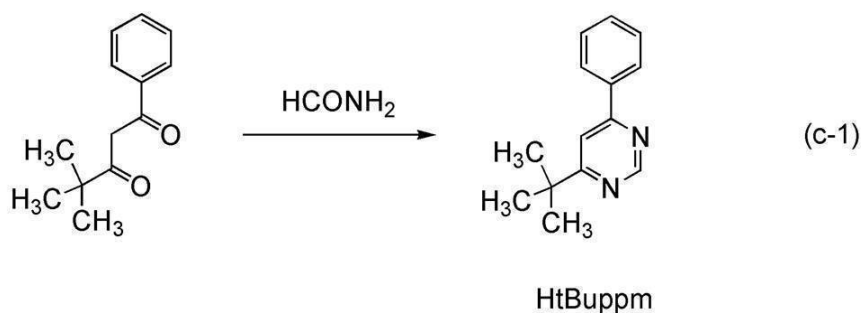
<ステップ1; 4-tert-ブチル-6-フェニルピリミジン(略称:HtBuppm)の合成>

まず、4,4-ジメチル-1-フェニルペンタン-1,3-ジオン22.5gとホルムアミド50gを、還流管を付けたナスフラスコに入れ、内部を窒素置換した。この反応容器を加熱することで反応溶液を5時間還流させた。その後、この溶液を水酸化ナトリウム水溶液に注ぎ、ジクロロメタンにて有機層を抽出した。得られた有機層を水、飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムにて乾燥させた。乾燥した後の溶液を濾過した。この溶液の溶媒を留去した後、得られた残渣を、ヘキサン:酢酸エチル=10:1(体積比)を展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、ピリミジン誘導体HtBuppmを得た(無色油状物、収率14%)。ステップ1の合成スキームを下記(c-1)に示す。

10

【0412】

【化19】



20

【0413】

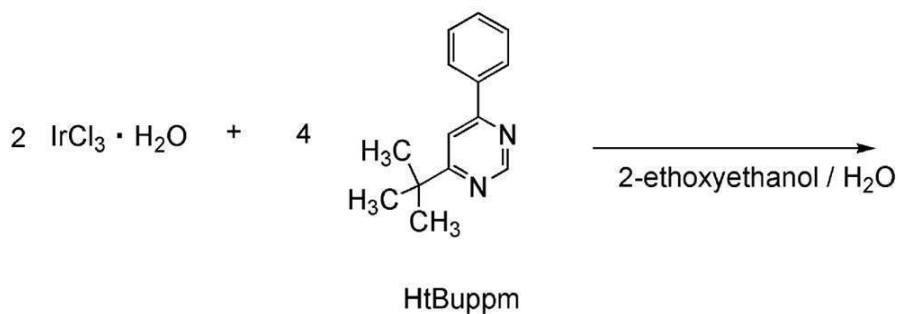
<ステップ2; ジ-μ-クロロ-ビス[ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)](略称:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub>)の合成>

次に、2-エトキシエタノール15mLと水5mL、上記ステップ1で得たHtBuppm1.49g、塩化イリジウム水和物(IrCl<sub>3</sub>·H<sub>2</sub>O)1.04gを、還流管を付けたナスフラスコに入れ、フラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波(2.45GHz 100W)を1時間照射し、反応させた。溶媒を留去した後、得られた残渣をエタノールで吸引濾過、洗浄し、複核錯体[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub>を得た(黄緑色粉末、収率73%)。ステップ2の合成スキームを下記(c-2)に示す。

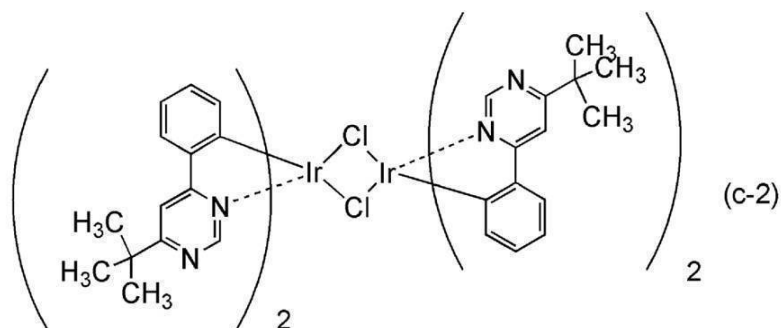
30

【0414】

【化20】



10



20



【0415】

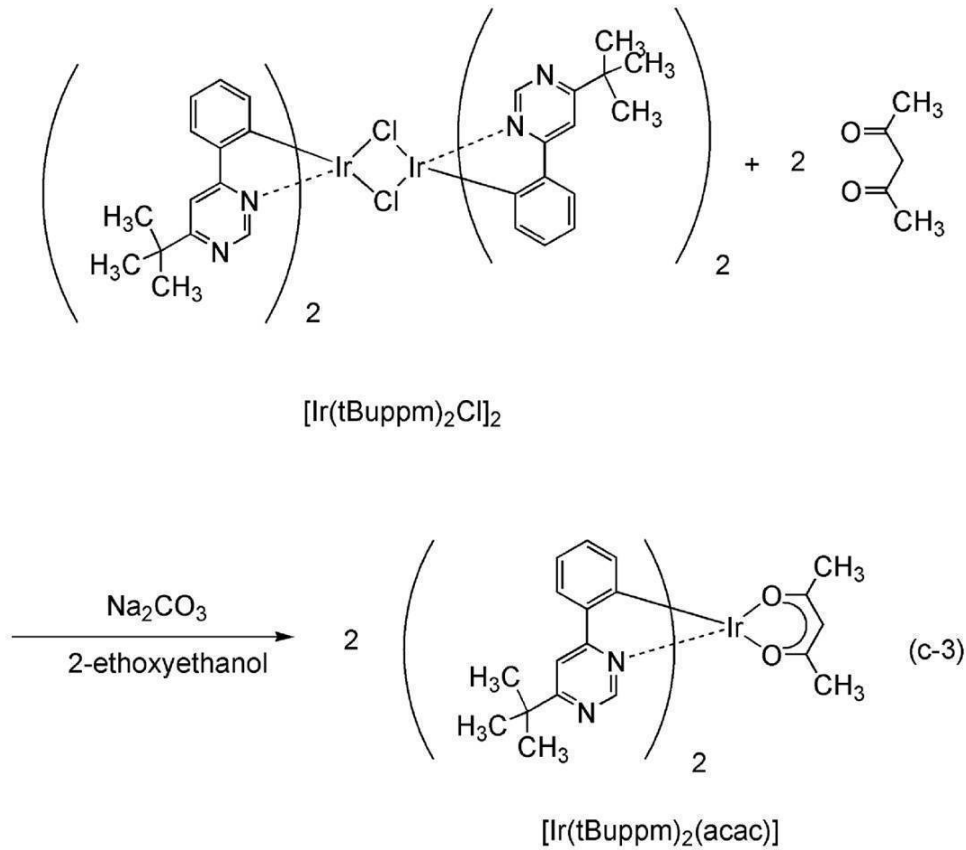
<ステップ3；(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称：[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac)]の合成>

さらに、2-エトキシエタノール40mL、上記ステップ2で得た複核錯体[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub> 1.61g、アセチルアセトン0.36g、炭酸ナトリウム1.27gを、還流管を付けたナスフラスコに入れ、フラスコ内をアルゴン置換した。その後、マイクロ波(2.45GHz 120W)を60分間照射し、反応させた。溶媒を留去し、得られた残渣をエタノールで吸引濾過し、水、エタノールで洗浄した。この固体をジクロロメタンに溶解させ、セライト(和光純薬工業株式会社、カタログ番号：531-16855)、アルミナ、セライトの順で積層した濾過補助剤を通して濾過した。溶媒を留去して得られた固体をジクロロメタンとヘキサンの混合溶媒にて再結晶することにより、目的物を黄色粉末として得た(収率68%)。ステップ3の合成スキームを下記(c-3)に示す。

30

【0416】

## 【化21】



10

20

## 【0417】

上記ステップ3で得られた黄色粉末の核磁気共鳴分光法 ( $^1\text{H}$  NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、有機金属錯体  $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$  が得られたことがわかった。

## 【0418】

$^1\text{H}$  NMR. ( $\text{CDCl}_3$ ): 1.50 (s, 18H), 1.79 (s, 6H), 5.26 (s, 1H), 6.33 (d, 2H), 6.77 (t, 2H), 6.85 (t, 2H), 7.70 (d, 2H), 7.76 (s, 2H), 9.02 (s, 2H).

30

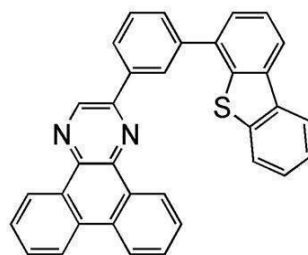
## 【0419】

(参考例4)

上記実施例で用いた2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f, h]キノキサリン(略称: 2mDBTPDBq-II)の合成方法について説明する。

## 【0420】

## 【化22】



2mDBTPDBq-II

40

## 【0421】

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

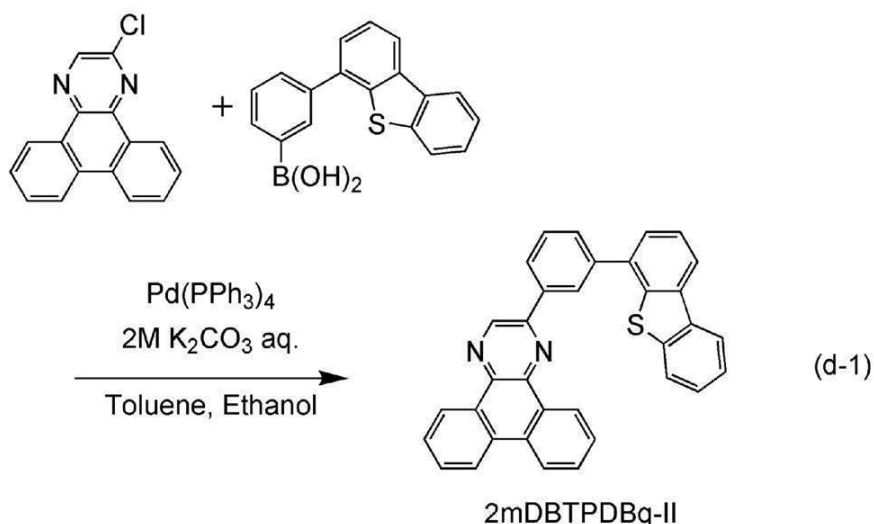
50

リン（略称：2mDBTPDBq-II）の合成

2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン（略称：2mDBTPDBq-II）の合成スキームを(d-1)に示す。

【0422】

【化23】



10

【0423】

2 L三口フラスコに2-クロロジベンゾ[f,h]キノキサリン5.3g(20mmol)、3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニルボロン酸6.1g(20mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)460mg(0.4mmol)、トルエン300mL、エタノール20mL、2Mの炭酸カリウム水溶液20mLを加えた。この混合物を、減圧下で攪拌することで脱気し、三口フラスコ内を窒素置換した。この混合物を窒素気流下、100で7.5時間攪拌した。室温まで冷ました後、得られた混合物を濾過して白色の濾物を得た。得られた濾物を水、エタノールの順で洗浄した後、乾燥させた。得られた固体を約600mLの熱トルエンに溶かし、セライト、フロリジェルを通して吸引濾過し、無色透明の濾液を得た。得られた濾液を濃縮し、約700mLのシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した。クロマトグラフィーは、熱トルエンを展開溶媒に用いて行った。ここで得られた固体にアセトンとエタノールを加えて超音波を照射した後、生じた懸濁物を濾取して乾燥させたところ、白色粉末を収量7.85g、収率80%で得た。

20

30

【0424】

上記目的物は、熱トルエンには比較的可溶であったが、冷めると析出しやすい材料であった。また、アセトン、エタノールなど他の有機溶剤には難溶であった。そのため、この溶解性の差を利用して、上記の様に、簡便な方法で収率よく合成することができた。具体的には、反応終了後、室温に戻して析出させた固体を濾取することで、大部分の不純物を簡便に除くことができた。また、熱トルエンを展開溶媒とした、カラムクロマトグラフィーにより、析出しやすい目的物も簡便に精製することができた。

40

【0425】

得られた白色粉末4.0g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5.0Pa、アルゴン流量5mL/minの条件で、白色粉末を300で加熱して行った。昇華精製後、目的物の白色粉末を収量3.5g、収率88%で得た。

【0426】

核磁気共鳴分光法(<sup>1</sup>H NMR)によって、この化合物が目的物である2-[3-(ジベンゾチオフェン-4-イル)フェニル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称：2mDBTPDBq-II)であることを確認した。

【0427】

得られた物質の<sup>1</sup>H NMRデータを以下に示す。

50

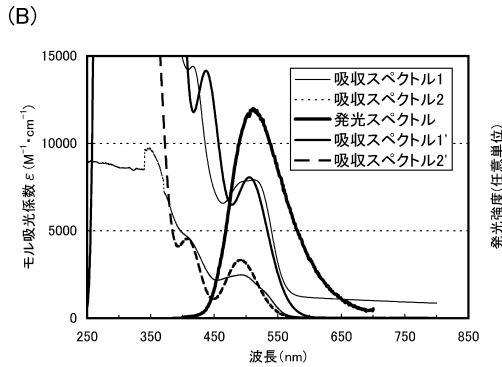
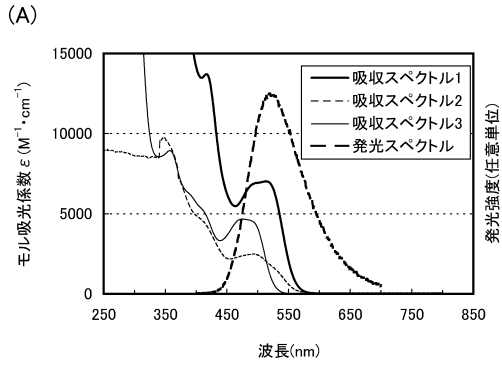
$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ , 300 MHz): (ppm) = 7.45 - 7.52 (m, 2H)、7.59 - 7.65 (m, 2H)、7.71 - 7.91 (m, 7H)、8.20 - 8.25 (m, 2H)、8.41 (d,  $J = 7.8$  Hz, 1H)、8.65 (d,  $J = 7.5$  Hz, 2H)、8.77 - 8.78 (m, 1H)、9.23 (dd,  $J = 7.2$  Hz, 1.5 Hz, 1H)、9.42 (dd,  $J = 7.8$  Hz, 1.5 Hz, 1H)、9.48 (s, 1H)。

## 【符号の説明】

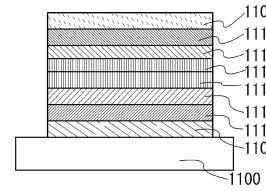
## 【0428】

102	EL層	
103	第1の電極	10
108	第2の電極	
701	正孔注入層	
702	正孔輸送層	
703	発光層	
704	電子輸送層	
705	電子注入層	
706	電子注入バッファ層	
707	電子リレー層	
708	複合材料層	
800	第1のEL層	20
801	第2のEL層	
803	電荷発生層	
1100	基板	
1101	第1の電極	
1103	第2の電極	
1111	正孔注入層	
1112	正孔輸送層	
1113	発光層	
1114 a	第1の電子輸送層	
1114 b	第2の電子輸送層	30
1115	電子注入層	

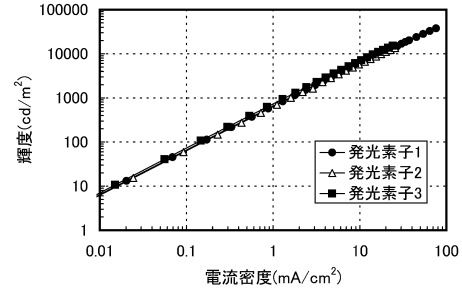
【図1】



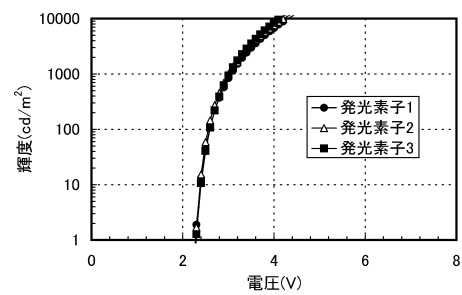
【図2】



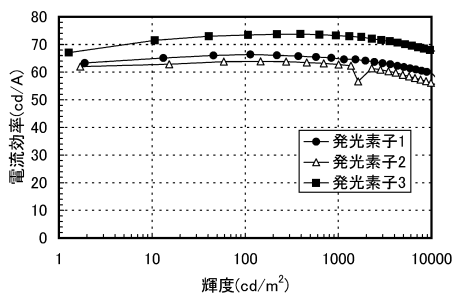
【図3】



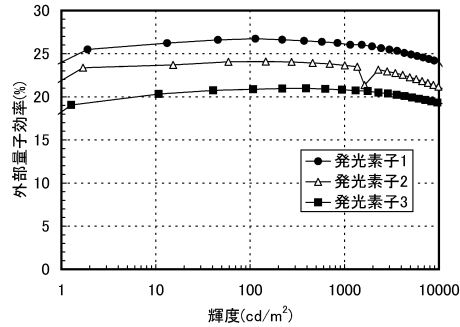
【図4】



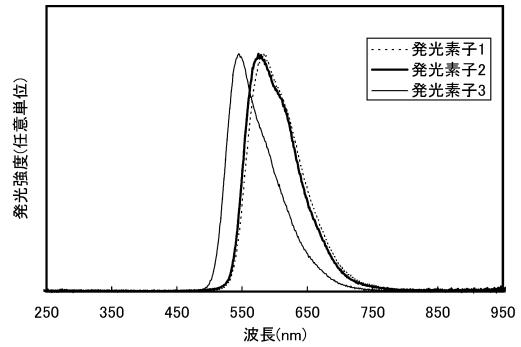
【図5】



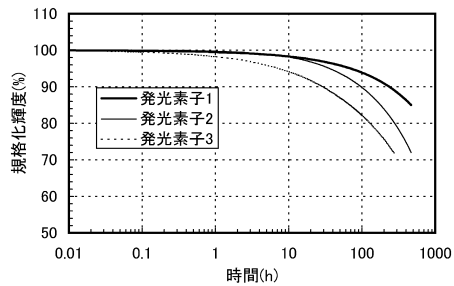
【図6】



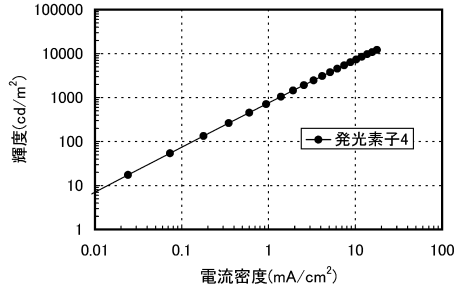
【図7】



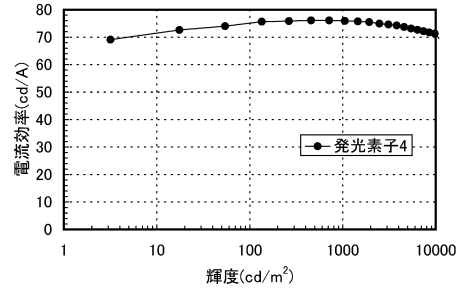
【図8】



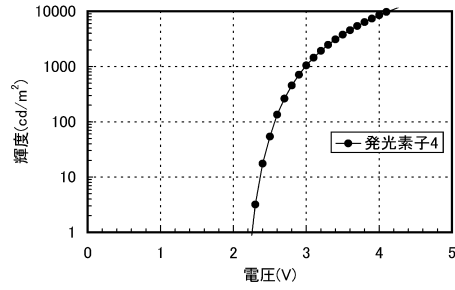
【図9】



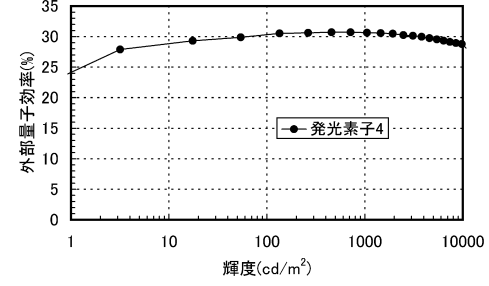
【図11】



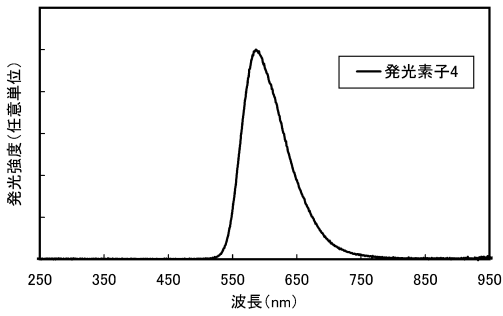
【図10】



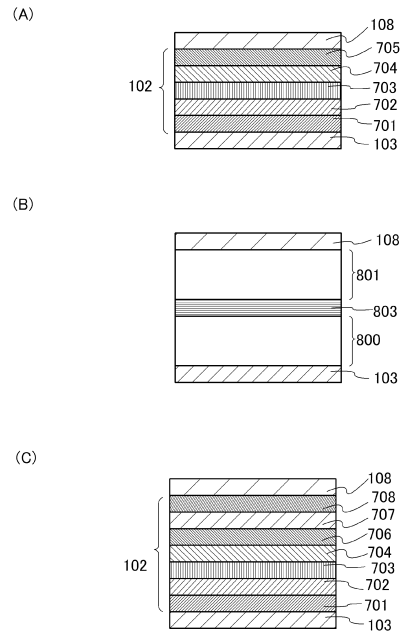
【図12】



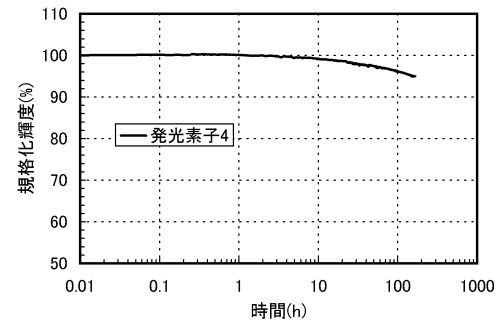
【図13】



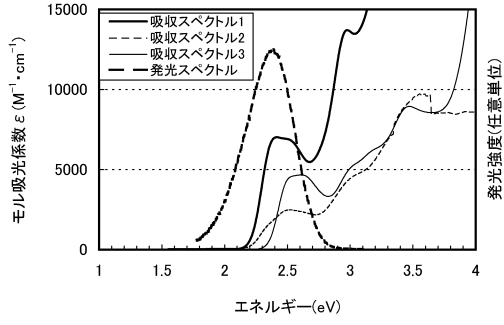
【図15】



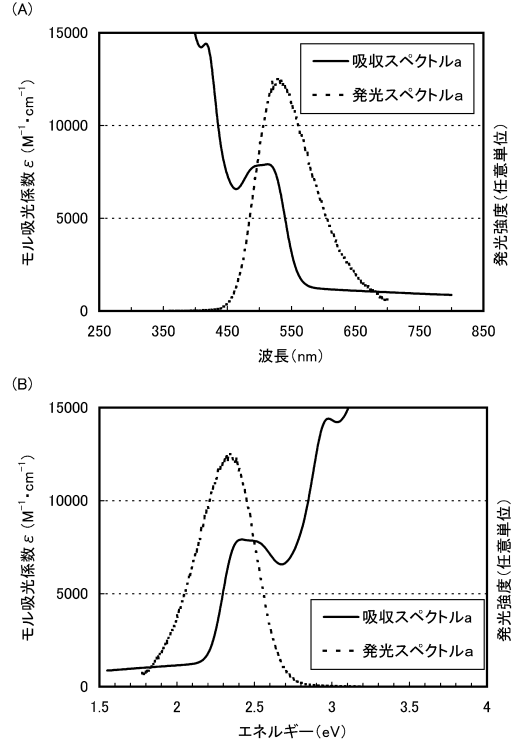
【図14】



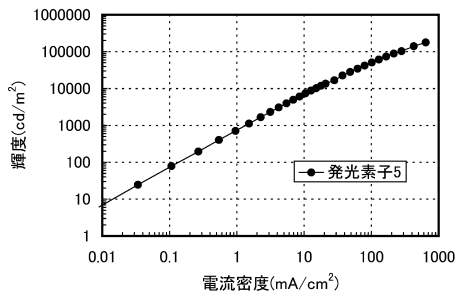
【図16】



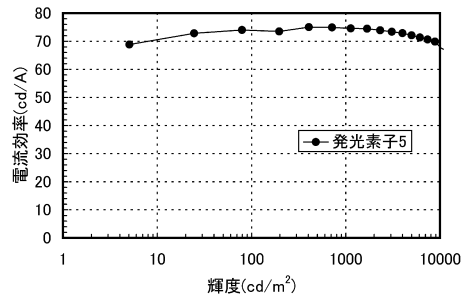
【図17】



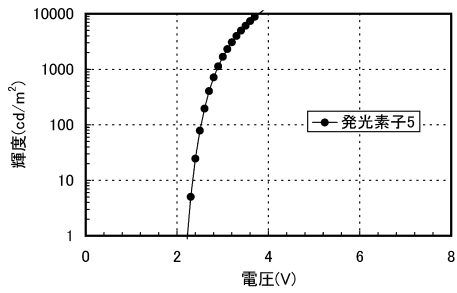
【図18】



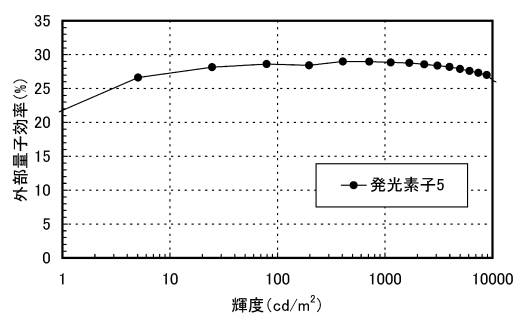
【図20】



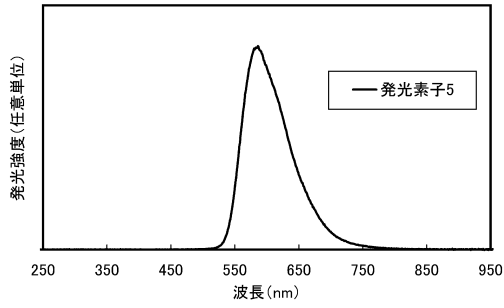
【図19】



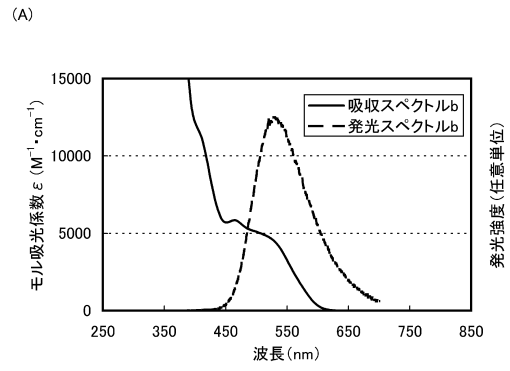
【図21】



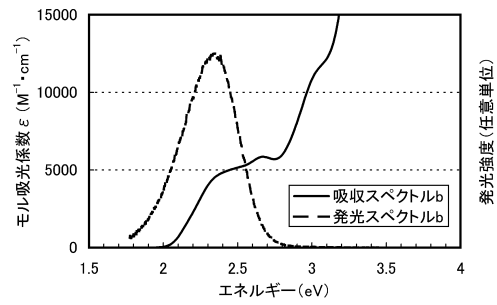
【図 2 2】



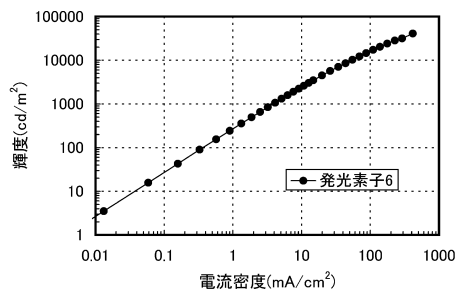
【図 2 3】



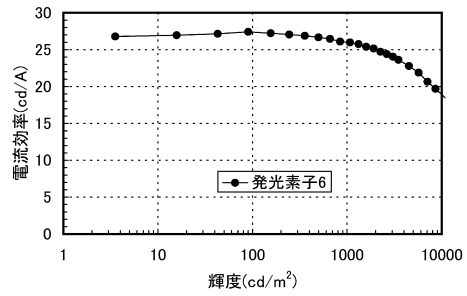
(B)



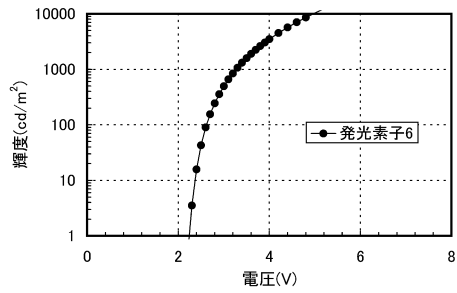
【図 2 4】



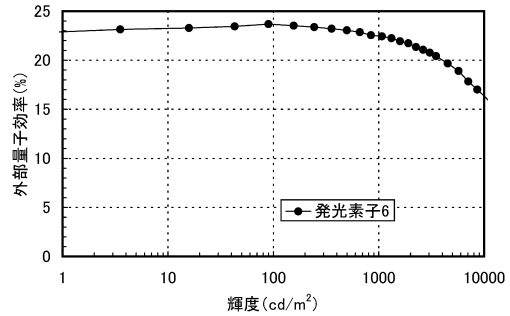
【図 2 6】



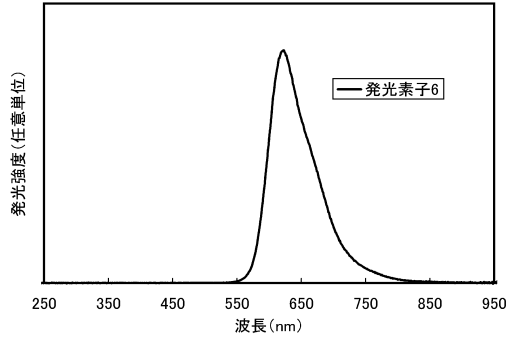
【図 2 5】



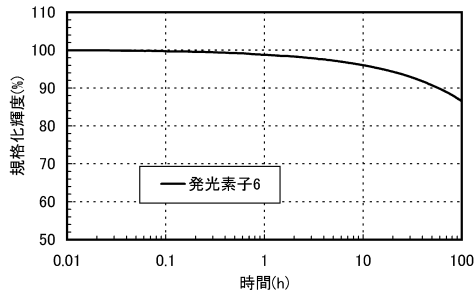
【図 2 7】



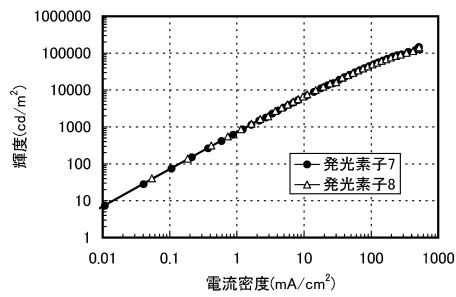
【図 28】



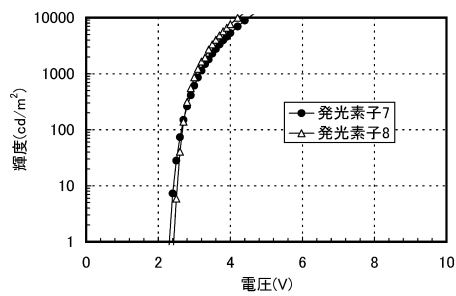
【図 29】



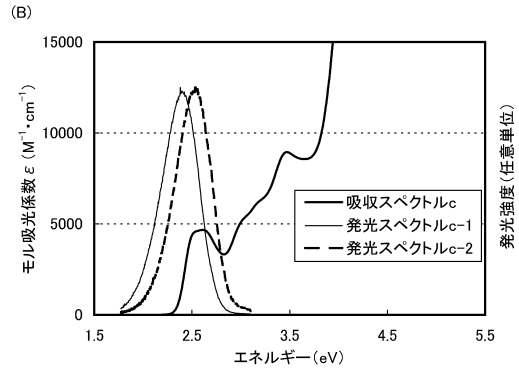
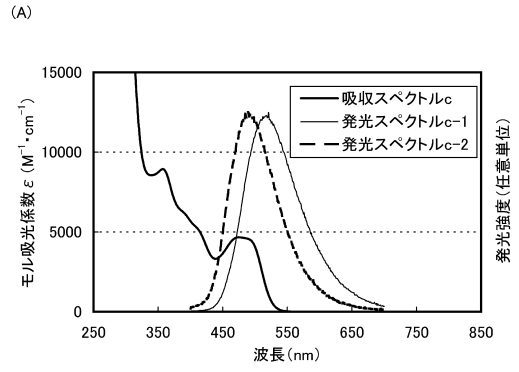
【図 31】



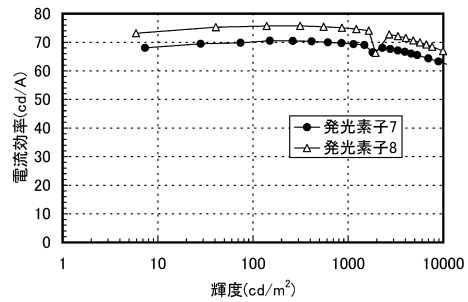
【図 32】



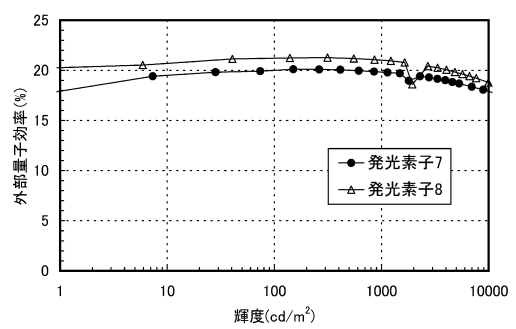
【図 30】



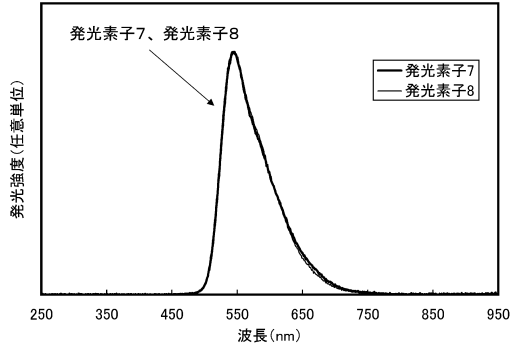
【図 33】



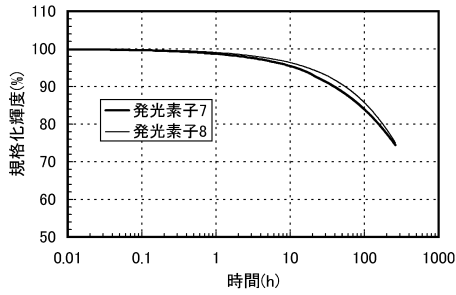
【図 34】



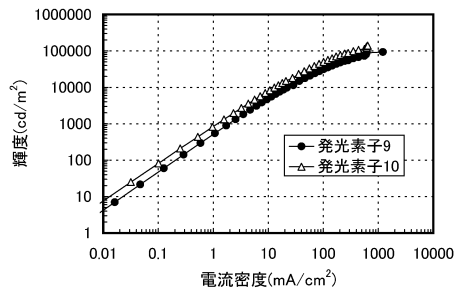
【図 3 5】



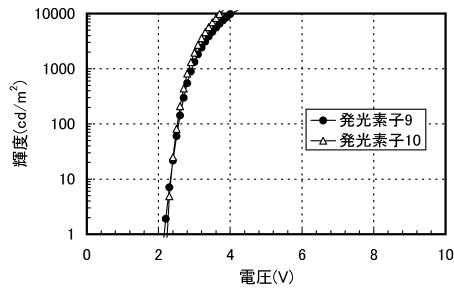
【図 3 6】



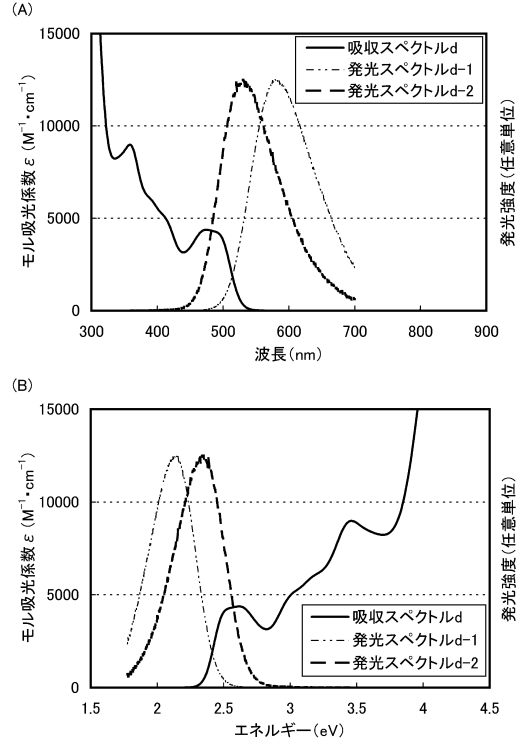
【図 3 8】



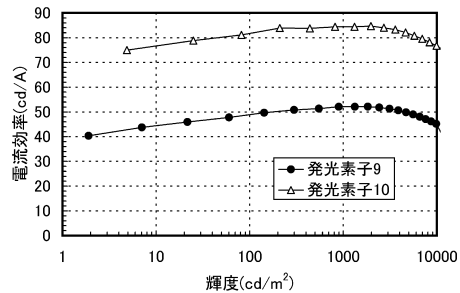
【図 3 9】



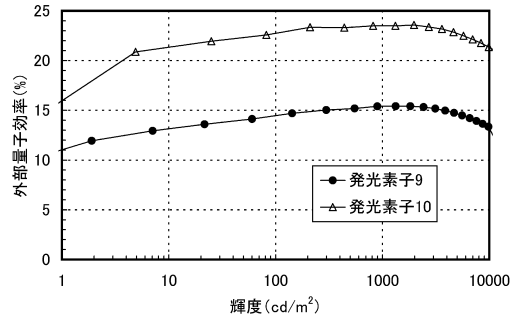
【図 3 7】



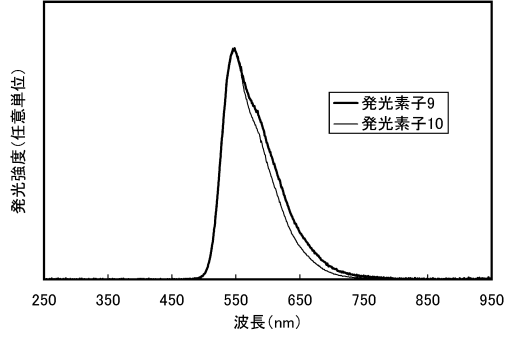
【図 4 0】



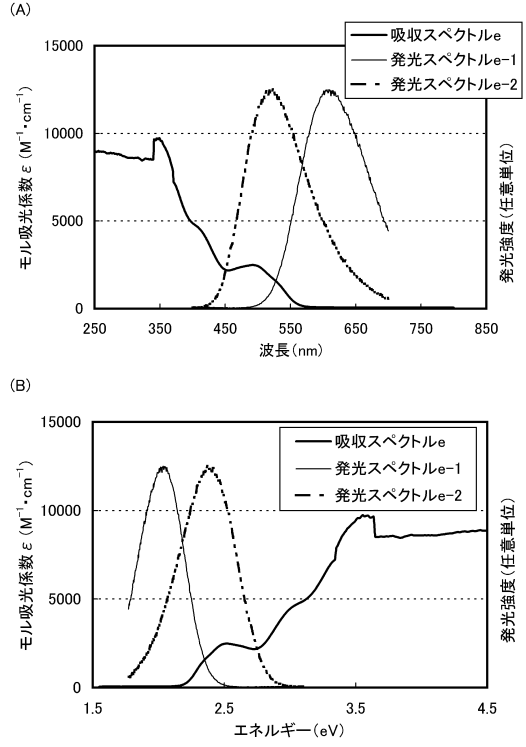
【図 4 1】



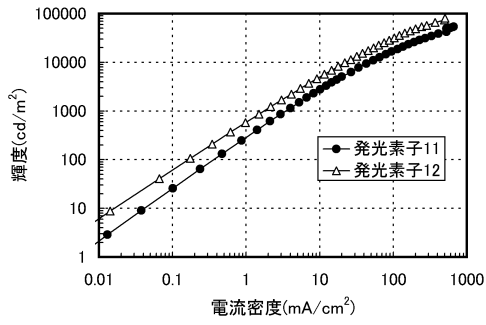
【 図 4 2 】



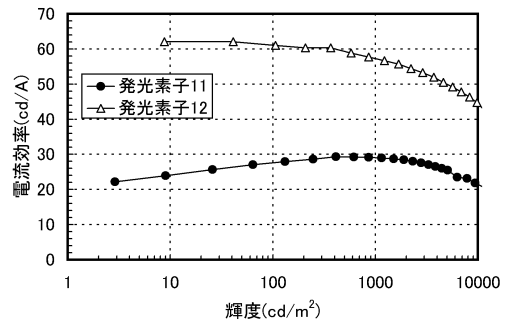
【 図 4 3 】



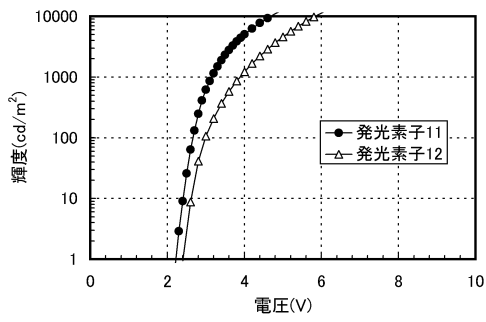
【 図 4 4 】



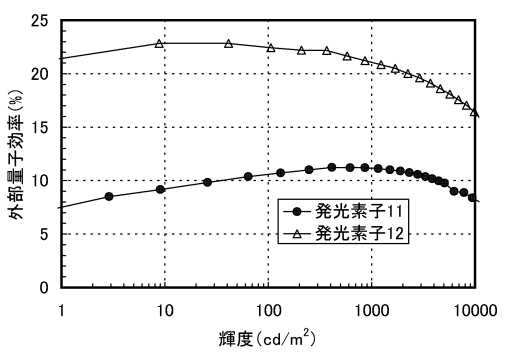
【 図 4 6 】



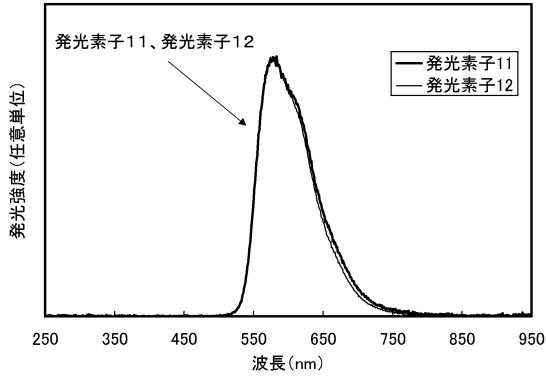
【 図 4 5 】



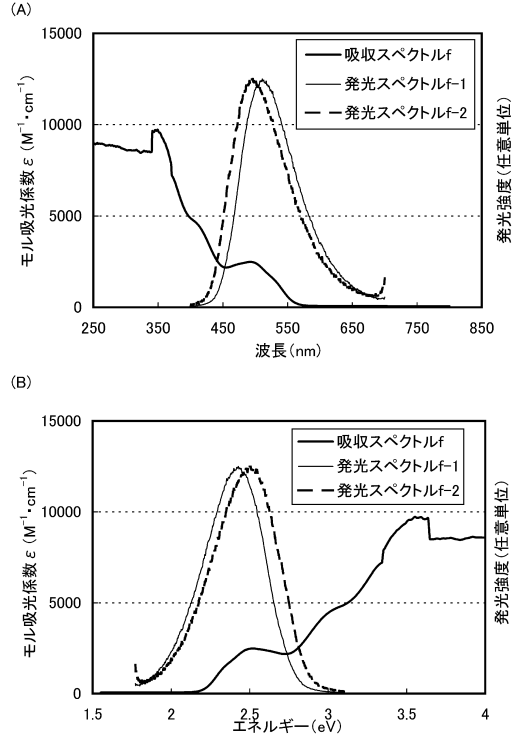
【 図 4 7 】



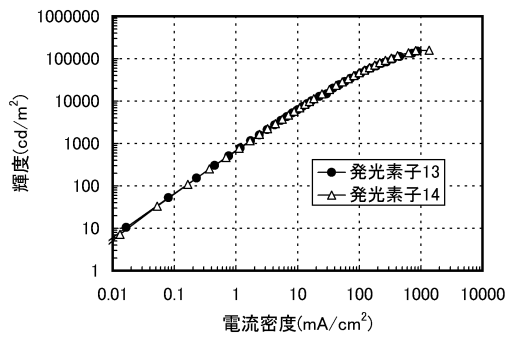
【図 48】



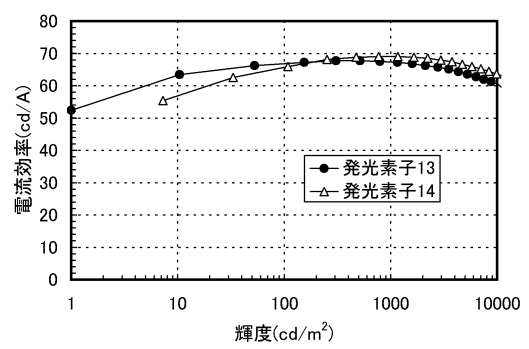
【図 49】



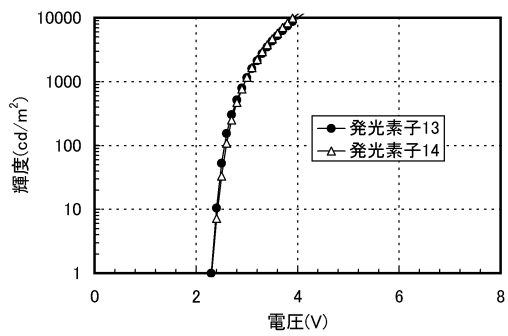
【図 50】



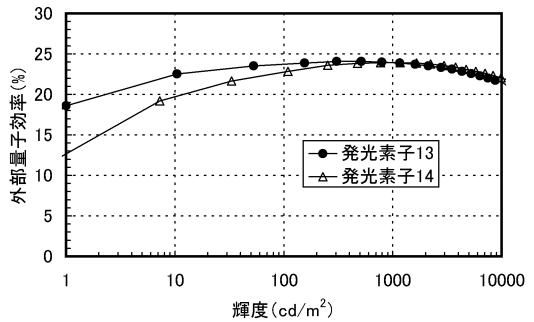
【図 52】



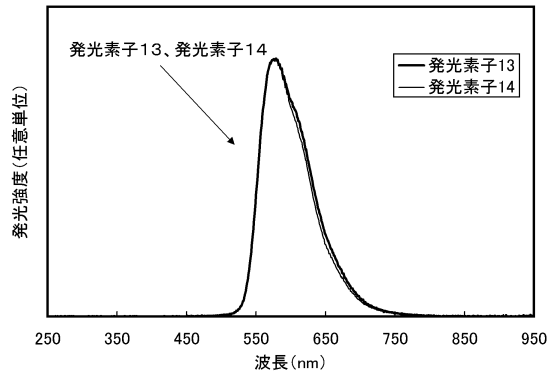
【図 51】



【図 53】



【図 5 4】



---

フロントページの続き

- (72)発明者 高橋 正弘  
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
- (72)発明者 鈴木 邦彦  
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

審査官 藤岡 善行

- (56)参考文献 特開2010-086952(JP,A)  
特開2010-215613(JP,A)  
特開2009-013167(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
H01L51/50-51/56  
H01L27/32; H05B33/00-33/28