

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6034603号
(P6034603)

(45) 発行日 平成28年11月30日 (2016.11.30)

(24) 登録日 平成28年11月4日 (2016.11.4)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/22 C

C O 7 F 7/08 (2006.01)

H O 5 B 33/22 A

C O 9 K 11/06 (2006.01)

H O 5 B 33/22 B

C O 7 F 15/00 (2006.01)

H O 5 B 33/22 D

H O 5 B 33/14 B

請求項の数 10 (全 63 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2012-149361 (P2012-149361)
 (22) 出願日 平成24年7月3日 (2012.7.3)
 (65) 公開番号 特開2013-38395 (P2013-38395A)
 (43) 公開日 平成25年2月21日 (2013.2.21)
 審査請求日 平成27年6月8日 (2015.6.8)
 (31) 優先権主張番号 特願2011-151536 (P2011-151536)
 (32) 優先日 平成23年7月8日 (2011.7.8)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000153878
 株式会社半導体エネルギー研究所
 神奈川県厚木市長谷398番地
 (74) 代理人 100116159
 弁理士 玉城 信一
 (72) 発明者 瀬尾 広美
 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
 半導体エネルギー研究所内
 (72) 発明者 尾坂 晴恵
 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 瀬尾 哲史
 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
 半導体エネルギー研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 複合材料および有機化合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

有機化合物と、前記有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含み、
 前記有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、
 前記有機化合物が有する前記ベンゼン環の数は、4以上25以下であり、
 前記有機化合物が、トリアルキルシリル基を置換基として有する、及び/又は、珪素で架橋されたベンゼン環を有する、複合材料。

【請求項 2】

分子量が350以上2000以下である有機化合物と、前記有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含み、
 前記有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、
 前記有機化合物が、トリアルキルシリル基を置換基として有する、及び/又は、珪素で架橋されたベンゼン環を有する、複合材料。

【請求項 3】

有機化合物と、遷移金属酸化物とを含み、
 前記有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、
 前記有機化合物が有する前記ベンゼン環の数は、4以上25以下であり、
 前記有機化合物が、トリアルキルシリル基を置換基として有する、及び/又は、珪素で架橋されたベンゼン環を有する、複合材料。

複合材料。

【請求項 4】

分子量が 350 以上 2000 以下である有機化合物と、遷移金属酸化物とを含み、
 前記有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、
前記有機化合物が、トリアルキルシリル基を置換基として有する、及び／又は、珪素で架橋されたベンゼン環を有する、複合材料。

【請求項 5】

請求項 3 又は請求項 4 において、
 前記遷移金属酸化物は、チタン酸化物、バナジウム酸化物、タンタル酸化物、モリブデン酸化物、タングステン酸化物、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、銀酸化物から選ばれる一種又は複数種である複合材料。

10

【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、
 前記有機化合物の最高被占有軌道準位は、光電子分光法での測定値が -5.7 eV 以下である複合材料。

【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、
2 以上の前記ベンゼン環が単結合で連なっている複合材料。

【請求項 8】

請求項 7 において、
2 以上の前記ベンゼン環がオルト位もしくはメタ位で連なっている複合材料。

20

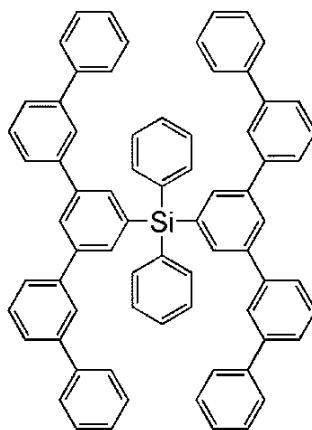
【請求項 9】

請求項 1 乃至請求項 8 のいずれか一項において、
前記有機化合物が芳香族アミンではない複合材料。

【請求項 10】

式 (112) で表される有機化合物。

【化 1】



30

(112)

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機化合物と無機化合物とを複合した複合材料、発光素子、発光装置、電子機器、及び照明装置に関する。また、該複合材料に用いることができる有機化合物に関する。

【背景技術】

【0002】

50

近年、有機エレクトロルミネッセンス（EL：Electroluminescence）を利用した発光素子の研究開発が盛んに行われている。これら発光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を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発光性の有機化合物からの発光を得ることができる。

【0003】

このような発光素子は自発光型であるため、液晶ディスプレイに比べ画素の視認性が高く、バックライトが不要である等の利点があり、フラットパネルディスプレイ素子として好適であると考えられている。また、このような発光素子は、薄型軽量に作製できることも大きな利点である。さらに非常に応答速度が速いことも特徴の一つである。

【0004】

また、これらの発光素子は膜状に形成することが可能であるため、大面積の素子を容易に形成することができる。このことは、白熱電球やLEDに代表される点光源、あるいは蛍光灯に代表される線光源では得難い特色であるため、照明等に応用できる面光源としての利用価値も高い。

【0005】

このように、有機ELを用いた発光素子は、発光装置や照明などへの応用が期待されている。一方で、有機ELを用いた発光素子には課題も多い。その課題の一つとして、消費電力の低減が挙げられる。消費電力を低減するためには、発光素子の駆動電圧を低くすることが重要である。そして、有機ELを用いた発光素子は流れる電流量によって発光強度が決まるため、駆動電圧を低くするためには、低い電圧で多くの電流を流すことが必要となってくる。

【0006】

これまでに、駆動電圧を低くさせるための手法として、バッファ層を電極と発光性の有機化合物を含む層との間に設けるという試みがなされている。例えば、カンファースルホン酸をドーブしたポリアニリン（PANI）からなるバッファ層をインジウム錫酸化物（ITO：indium tin oxide）と発光層との間に設けることにより、駆動電圧を低くできることが知られている（例えば、非特許文献1参照）。これは、PANIの発光層へのキャリア注入性が優れているためと説明されている。なお、非特許文献1では、バッファ層であるPANIも電極の一部と見なしている。

【0007】

しかしながら、非特許文献1に記載してある通り、PANIは膜厚を厚くすると透過率が悪くなるという問題点がある。具体的には、250nm程度の膜厚で、透過率は70%を切ると報告されている。すなわち、バッファ層に用いている材料自体の透明性に問題があるため、素子内部で発生した光を効率良く取り出すことができない。

【0008】

また、特許文献1によれば、発光素子（特許文献1では発光ユニットと記載されている）を直列に接続することにより、ある電流密度当たりの輝度、すなわち電流効率を高めようという試みがなされている。特許文献1においては、発光素子を直列に接続する際の接続部分に、有機化合物と金属酸化物（具体的には酸化バナジウムおよび酸化レニウム）とを混合した層を適用しており、この層は正孔（ホール）や電子を発光ユニットへ注入できるとされている。

【0009】

しかしながら、特許文献1で開示されている有機化合物と金属酸化物との混合層は、実施例を見てもわかる通り、赤外領域だけでなく可視光領域（500nm付近）にも大きな吸収ピークが見られ、やはり透明性に問題が生じている。これは、電荷移動相互作用により発生する吸収バンドの影響である。したがって、やはり素子内部で発生した光を効率良く取り出すことができず、素子の発光効率が低下する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0010】

10

20

30

40

50

【特許文献1】特開2003-272860号公報

【非特許文献】

【0011】

【非特許文献1】Y. Yang、他1名、アプライド フィジクス レターズ、Vol. 64(10)、1245-1247(1994)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

そこで、本発明の一態様では、有機化合物と無機化合物とを複合した複合材料であって、キャリア輸送性の高い複合材料を提供することを課題の一とする。また、有機化合物へのキャリア注入性の高い複合材料を提供することを課題の一とする。また、電荷移動相互作用による光吸収が生じにくい複合材料を提供することを課題の一とする。また、可視光に対する透光性が高い複合材料を提供することを課題の一とする。

10

【0013】

また、本発明の一態様は、該複合材料を発光素子に適用することにより、発光効率の高い発光素子を提供することを課題の一とする。また、駆動電圧の低い発光素子を提供することを課題の一とする。また、長寿命の発光素子を提供することを課題の一とする。また、該発光素子を用いた発光装置、該発光装置を用いた電子機器又は照明装置を提供することを課題の一とする。

【0014】

なお、以下に開示する発明は、上記課題の少なくともいずれか一つを解決することを目的とする。

20

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明の一態様は、有機化合物と、該有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含み、該有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、該有機化合物が有するベンゼン環の数は、4以上25以下である複合材料である。なお、本発明の一態様の複合材料に含まれる有機化合物が有する環（ベンゼン環）は、特に記載がない限り、置換又は無置換のどちらであっても良い。

【0016】

または、本発明の一態様は、分子量が350以上2000以下である有機化合物と、該有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含み、該有機化合物が有する環はベンゼン環のみである複合材料である。

30

【0017】

または、本発明の一態様は、有機化合物と、遷移金属酸化物とを含み、該有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、該有機化合物が有するベンゼン環の数は、4以上25以下である複合材料である。

【0018】

または、本発明の一態様は、分子量が350以上2000以下である有機化合物と、遷移金属酸化物とを含み、該有機化合物が有する環はベンゼン環のみである複合材料である。

40

【0019】

上記複合材料は、キャリア輸送性が高い。また、有機化合物へのキャリア注入性が高い。また、電荷移動相互作用による光吸収が生じにくい。また、可視光に対する透光性（以下、単に、透光性と記載する）が高い。

【0020】

本発明の一態様の複合材料に含まれる有機化合物の吸収ピークは、可視光領域（380nm～760nm）よりも短波長側に生じる。

【0021】

上記複合材料は、電荷移動相互作用に基づく光吸収の発生を抑制するだけでなく、有機化合物自体の吸収ピークが可視光領域（380nm～760nm）よりも短波長側に生じる

50

ように制御できるため、透光性が高い複合材料を得ることができる。

【 0 0 2 2 】

有機化合物の分子量が 3 5 0 以上であると、複合材料の膜質が安定化し、好ましい。該分子量が 4 5 0 以上であると特に好ましい。また、該分子量の上限に特に限定はないが、複合材料を加熱蒸着で形成する場合、蒸着性を考慮して 2 0 0 0 以下であることが好ましい。

【 0 0 2 3 】

また、有機化合物は、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を置換基として有していても良い。また、有機化合物は、珪素を含んでいても良い。例えば、有機化合物は、珪素で架橋されたベンゼン環を有していても良い。ベンゼン環が珪素を介して他のベンゼン環と結合している場合、これらベンゼン環の間では共役系が伸びにくいいため、透光性の観点で有効である。

10

【 0 0 2 4 】

また、有機化合物は、トリアルキルシリル基を置換基として有していても良い。バルキーな（嵩高い）置換基であるトリアルキルシリル基を有機化合物が有することで、該有機化合物の単膜のアモルファス性を高めることができる。そのため、本発明の一態様では、高い一重項励起エネルギーの準位（S 1 準位）及び三重項励起エネルギーの準位（T 1 準位）、並びに高い透光性を有するだけでなく、分子量が大きく、耐熱性や、膜のアモルファス性が高い有機化合物を用いることができる。

【 0 0 2 5 】

また、キャリア輸送性の観点から、2 以上のベンゼン環が単結合で連なっていることが好ましい（例えば、ピフェニル基などを有することが好ましい）。また、熱物性の観点から、分子量を大きくするために多くのベンゼン環を単結合で連ねる場合は、共役系が伸びすぎないように、オルト位もしくはメタ位で連なる、又は珪素で架橋することが好ましい。

20

【 0 0 2 6 】

上記複合材料に用いる有機化合物の最高被占有軌道準位（H O M O 準位）は、特に制限はないが、本発明の一態様で用いる有機化合物は、比較的深い H O M O 準位（具体的には - 5 . 7 e V 以下）を持つ。そのため、電荷移動相互作用に基づく光吸収の発生を抑制することができる。したがって、上記複合材料に用いる有機化合物の H O M O 準位は光電子分光法での測定値が - 5 . 7 e V 以下であることが好ましい。

【 0 0 2 7 】

また、上記複合材料に含まれる遷移金属酸化物としては、チタン酸化物、バナジウム酸化物、モリブデン酸化物、タングステン酸化物、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、銀酸化物から選ばれる一種又は複数種であることが好ましい。

30

【 0 0 2 8 】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に発光物質を含む層（以下、E L 層とも記す）を有し、発光物質を含む層は、上記複合材料を含む層を有する発光素子である。

【 0 0 2 9 】

上記発光素子において、複合材料を含む層は、一对の電極のうち、陽極として機能する電極と接することが好ましい。また、複合材料を含む層は、一对の電極のうち、陰極として機能する電極と接することが好ましい。

40

【 0 0 3 0 】

また、上記発光素子は、複合材料を含む層を 2 層有していても良く、該複合材料を含む層のうち、一方の層は、一对の電極のうち陽極として機能する電極と接し、他方の層は、陰極として機能する電極と接することが好ましい。

【 0 0 3 1 】

ここで、上述した通り、本発明の一態様で用いる有機化合物は、比較的深い H O M O 準位（具体的には、- 5 . 7 e V 以下）を持つ。したがって、上記複合材料を含む層の陰極側に接する層に用いられる有機化合物（正孔輸送層や発光層等に用いる有機化合物）が、比較的深い H O M O 準位（例えば、- 6 . 0 e V）を持つ場合でも、上記複合材料から該有

50

機化合物への正孔注入を良好に行うことができる。無論、該有機化合物が浅いHOMO準位（例えば、 -5.0 eV ）を持つ場合でも、上記複合材料から該有機化合物への正孔注入を良好に行うことができる。したがって、上記複合材料を含む層の陰極側に接する層（以下、第1の層と記す）が有する有機化合物のHOMO準位は、 -6.0 eV 以上 -5.0 eV 以下であることが好ましい。

【0032】

さらに、上記複合材料と該有機化合物のHOMO準位の差は小さいことが好ましく、その差は、 0.2 eV 以内であることが好ましい。またこのように、第1の層に用いられる有機化合物のHOMO準位と、上記複合材料で用いる有機化合物のHOMO準位の差を小さくするという観点から、第1の層に用いられる有機化合物として、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）を用いることが好ましい。例えば、上記複合材料で用いる有機化合物と同じ有機化合物を用いればよい。特に、該有機化合物が有する複数のベンゼン環がオルト位又はメタ位で結合していると、膜のアモルファス性が高いため、第1の層に好適に用いることができる。また、高いT1準位を有するため、特に燐光発光の素子の第1の層に好適に用いることができる。

10

【0033】

また、同様の観点から第1の層と接する発光層も、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）を含む（特に、ホスト材料として含む）ことが好ましい。例えば、上記複合材料で用いる有機化合物と同じ有機化合物を用いればよい。特に、該有機化合物が有する複数のベンゼン環がオルト位又はメタ位で結合していると、膜のアモルファス性が高いため、発光層（のホスト材料）に好適に用いることができる。また、高いT1準位を有するため、特に燐光発光の素子の発光層（のホスト材料）に好適に用いることができる。

20

【0034】

つまり、本発明の一態様は、一对の電極間に発光物質を含む層を有し、該発光物質を含む層は、陽極側から、上記複合材料を含む層、第1の層、及び発光層を有し、上記複合材料を含む層、第1の層、及び発光層は、それぞれ、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）を含む発光素子である。

30

【0035】

特に、複合材料を含む層、第1の層、及び発光層に含まれる該有機化合物が同一の化合物であると、これらの層間での正孔注入性が良好であるため、好ましい。また、合成コストを抑えることができ、好ましい。

【0036】

また、上記発光層において、第1の有機化合物が第2の有機化合物中に分散されており、該第2の有機化合物が有する環はベンゼン環のみであり、該第2の有機化合物が有するベンゼン環の数は、4以上25以下であることが好ましい。

【0037】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に第1のEL層乃至第nのEL層（nは2以上の自然数）を有し、第kのEL層（kは1以上n未満の自然数）と第（k+1）のEL層の間に、上記複合材料を含む層を有する発光素子である。すなわち、複数の発光ユニットを積層した構成の有機EL発光素子（タンデム型の有機EL発光素子）における中間層（電荷発生層とも記す）に、上記複合材料を用いることができる。このとき、該複合材料を含む層の陰極側に接して、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）を含む層を設けることが好ましい。

40

【0038】

また、本発明の一態様は、上記発光素子を有する発光装置である。また、該発光装置を表

50

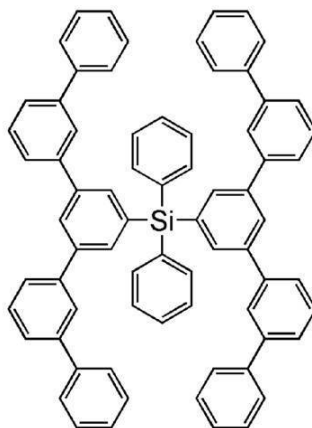
示部に有する電子機器である。また、該発光装置を発光部に有する照明装置である。

【 0 0 3 9 】

また、本発明の一態様の複合材料に用いることができる下記構造式（ 1 1 2 ）で表される有機化合物も、新規な物質であるため、本発明に含まれるものとする。したがって、本発明の一態様は、構造式（ 1 1 2 ）で表される有機化合物である。

【 0 0 4 0 】

【 化 1 】



(112)

【 発 明 の 効 果 】

【 0 0 4 1 】

本発明の一態様によれば、有機化合物と無機化合物とを複合した複合材料であって、キャリア輸送性の高い複合材料を提供することができる。また、有機化合物へのキャリア注入性の高い複合材料を提供することができる。また、電荷移動相互作用による光吸収が生じにくい複合材料を提供することができる。また、可視光に対する透光性が高い複合材料を提供することができる。

【 0 0 4 2 】

また、本発明の一態様によれば、該複合材料を発光素子に適用することにより、発光効率の高い発光素子を提供することができる。また、駆動電圧の低い発光素子を提供することができる。また、長寿命の発光素子を提供することができる。また、該発光素子を用いた発光装置、該発光装置を用いた電子機器及び照明装置を提供することができる。

【 図 面 の 簡 単 な 説 明 】

【 0 0 4 3 】

【 図 1 】 本発明の一態様の発光素子を示す図。

【 図 2 】 本発明の一態様の発光素子を示す図。

【 図 3 】 本発明の一態様の発光装置を示す図。

【 図 4 】 本発明の一態様の発光装置を示す図。

【 図 5 】 本発明の一態様の発光装置を示す図。

【 図 6 】 本発明の一態様の電子機器を示す図。

【 図 7 】 本発明の一態様の照明装置を示す図。

【 図 8 】 m B P 3 P のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。

【 図 9 】 実施例 1 の m B P 3 P と、その複合材料の吸光度を示す図。

【 図 1 0 】 実施例 1 の 6 P と、その複合材料の吸光度を示す図。

【 図 1 1 】 実施例 1 の S i P S i と、その複合材料の吸光度を示す図。

【 図 1 2 】 実施例 2 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

【 図 1 3 】 実施例 2 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。

【 図 1 4 】 実施例 2 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

【 図 1 5 】 実施例 3 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。

- 【図 16】実施例 3 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
 【図 17】実施例 3 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
 【図 18】実施例の発光素子を示す図。
 【図 19】実施例 4 の発光素子の電圧 - 輝度特性を示す図。
 【図 20】実施例 4 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
 【図 21】m T P 3 P のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
 【図 22】m T P 3 P の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
 【図 23】m B P 2 2 P S i の ^1H NMR チャートを示す図。
 【図 24】m B P 2 2 P S i のトルエン溶液の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
 【図 25】m B P 2 2 P S i の薄膜の吸収スペクトル及び発光スペクトルを示す図。
 【図 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 - 色度座標特性を示す図。
 【図 28】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 29】実施例 7 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
 【図 30】実施例 7 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
 【図 31】実施例 8 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
 【図 32】実施例 8 の発光素子の輝度 - 色度座標特性を示す図。
 【図 33】実施例 8 の発光素子の輝度 - 外部量子効率特性を示す図。
 【図 34】実施例 8 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
 【図 35】実施例 8 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
 【図 36】実施例 9 の発光素子の輝度 - 電流効率特性を示す図。
 【図 37】実施例 9 の発光素子の輝度 - 色度座標特性を示す図。
 【図 38】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 39】実施例 9 の発光素子の発光スペクトルを示す図。
 【図 40】実施例 9 の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。
 【発明を実施するための形態】

【0044】

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。

【0045】

まず、本発明の背景となる技術と本発明との相違について、概要を説明する。特許文献 1 で示されているように、芳香族アミンと電子受容性の無機化合物が混合された複合材料は、電子受容性の無機化合物が芳香族アミンから電子を奪うことにより、芳香族アミンに正孔が、無機化合物に電子が発生すると解釈されている。換言すれば、このような複合材料は、芳香族アミンと電子受容性の無機化合物とが電荷移動錯体を形成していると解釈される。そして、このような現象を利用して、これまでにキャリア輸送性、キャリア注入性に優れた複合材料がいくつか報告されている。

【0046】

しかしながらこのような場合、一般的には、電荷移動相互作用に基づく吸収バンドが発生することが知られている。この吸収バンドは深赤色～近赤外領域に発生するとされているが、実際には、多くの場合、可視光領域にも吸収バンドが生じる。例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(略称:NPB又は-NPD)と酸化バナジウム、又はNPBと酸化モリブデンを混合した複合材料は、1300nm付近の吸収バンド以外に、500nm付近にも吸収バンドが生じる。このことは、発光素子のような光学デバイスにとっては大きなデメリットとなる。

【 0 0 4 7 】

本発明者らは、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（なお、該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）と、遷移金属酸化物、又は該有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを複合させることにより、電荷移動相互作用に基づく光吸収が確認できない（ほとんど発生しない）にも関わらず、優れたキャリア輸送性やキャリア注入性を発現できることを見出した。従来、電荷移動相互作用によって発生する正孔及び電子が、キャリア輸送性・キャリア注入性発現の要素と考えられていたわけであるから、電荷移動相互作用による光吸収が明確に観察されないにも関わらず優れたキャリア輸送性やキャリア注入性を発現できる本発明は、その一般論とは矛盾しており、予測不可能の驚くべき機能であると言える。

10

【 0 0 4 8 】

先に記した通り、本発明の一態様で用いる有機化合物は、有する環がベンゼン環のみである。ベンゼンは、それ自体のHOMO準位とLUMO準位間のエネルギーギャップが大きい。また、S1準位やT1準位が高い。したがって、有機化合物が有する環をベンゼン環のみとすることで、該有機化合物自体が可視光領域に吸収ピークを持たない（可視光領域に吸収をほとんど持たない）化合物となるよう設計できる。したがって、透光性向上の観点で大きなメリットがある。

【 0 0 4 9 】

また、ベンゼンはHOMO準位が非常に低い。したがって、本発明の一態様に用いる有機化合物単体は、他の有機化合物への正孔注入性には優れていると考えられるが、AlやITOに代表されるような導電材料（仕事関数が3～5 eV程度）から正孔を受け取るとは困難であると考えられる。しかしながら、本発明の一態様のような複合材料を形成することにより、他の有機化合物への優れた正孔注入性を保ちつつ、電極からの正孔注入性の問題点を克服することができる。このような複合材料の性質は、発光素子に用いた際に、駆動電圧の低減に寄与する。また、透光性が高いことから、発光効率を高めることができる。さらには、深いHOMO準位により発光素子中にキャリアの蓄積を防止できると考えられるため、長寿命化を達成できる。

20

【 0 0 5 0 】

以下では、本発明の態様について、具体例を列挙しながら説明する。

【 0 0 5 1 】

30

（実施の形態1）

本実施の形態では、本発明の一態様の複合材料について説明する。

【 0 0 5 2 】

本発明の一態様の複合材料は特定の骨格を有する有機化合物と無機化合物との複合材料である。本発明の一態様の複合材料の作製方法に限定は無く、例えば、当該有機化合物と無機化合物を同時に蒸着する共蒸着法により形成することができる。本発明の一態様の複合材料において、有機化合物と無機化合物の混合比は質量比で8：1～1：2（＝有機化合物：無機化合物）程度が好ましく、さらに望ましくは4：1～1：1（＝有機化合物：無機化合物）である。混合比は複合材料を共蒸着法によって形成する場合は、有機化合物と無機化合物の蒸着レートをそれぞれ調節することによって制御することができる。

40

【 0 0 5 3 】

まず、本発明の一態様の複合材料に用いることが可能な有機化合物は、有する環がベンゼン環のみであり、該ベンゼン環の数は、4以上25以下である有機化合物である。また、本発明の一態様の複合材料に用いることが可能な有機化合物は、有する環がベンゼン環のみであり、分子量が350以上2000以下である有機化合物である。

【 0 0 5 4 】

該有機化合物は、置換基として炭素数1～6のアルキル基、又はトリアルキルシリル基を有していても良い。また、該有機化合物は、珪素で架橋されたベンゼン環を有していても良い。

【 0 0 5 5 】

50

該有機化合物を用いた複合材料は、キャリア輸送性が高い。また、有機化合物へのキャリア注入性が高い。また、無機化合物との電荷移動相互作用による光吸収が生じにくい。また、透光性が高い。

【0056】

該有機化合物を用いた複合材料は、電荷移動相互作用に基づく光吸収の発生を抑制するだけでなく、有機化合物自体の吸収ピークが可視光領域よりも短波長側に生じるように制御できるため、高い透光性を得ることができる。

【0057】

ベンゼンは、芳香族炭化水素であるため、キャリア輸送性（特に正孔輸送性）を発現するのに重要な共役環である。それと同時に、エネルギーギャップの広い共役環でもある。したがって、有機化合物が有する環がベンゼン環のみであることで、電荷移動相互作用に基づく光吸収の発生を抑制するだけでなく、有機化合物の吸収ピークが可視光領域よりも短波長側に生じるよう制御できるため、該有機化合物を用いることで、透光性の高い複合材料を得ることができる。

【0058】

また、該複合材料を作製する方法には、特に限定は無いが、該有機化合物と無機化合物とを共蒸着することが好ましい。この場合は該有機化合物が気化しやすいことが望まれる。したがって、分子量の観点から、有機化合物の分子量は2000以下であることが望ましい。また、該有機化合物にアルキル鎖などを結合させて、湿式プロセス（溶液にして成膜する方法）などで該複合材料を形成する場合は、分子量は2000以上でも構わない。

【0059】

なお、本発明者らがこれまで実験及び検討を行ってきた結果から、芳香族炭化水素化合物（例えばアントラセン化合物）と、無機化合物とを混合した際、無機化合物の比率が高い場合には、複合材料の結晶化は抑制できるものの、芳香族炭化水素化合物が有する骨格（例えばアントラセン骨格）と無機化合物との電荷移動相互作用に由来するわずかな吸収ピークが可視光領域で増大する場合があった。一方で、本発明の一態様に示すように、有する環がベンゼン環のみである有機化合物（該ベンゼン環の数は4以上25以下である、又は該有機化合物の分子量が350以上2000以下である）を用いる場合は、無機化合物の比率が高いときでも、新たな吸収ピークが増大しづらい。そのため、高い透過率を保ちつつも、複合材料の結晶化は抑制され、複合材料の膜質が安定化する。したがって、本発明の一態様の複合材料の場合には、結晶化を抑制する目的で無機化合物の比率を高くしたいときでも有機化合物と無機化合物の比率の制約を受けず、電荷移動相互作用に由来する吸収ピークが可視光領域に観測されることを抑制することができる。そのため、成膜の操作を簡便にすることもできる。本発明の一態様の複合材料は、具体的には、有機化合物と無機化合物の比率が質量比で4：2の膜においても、電荷移動相互作用による光吸収が生じにくく、可視光領域から赤外領域までに顕著な吸収ピークがほとんど観測されない。

【0060】

以上に述べた本発明の一態様の複合材料に含まれる有機化合物のHOMO準位は、光電子分光法での測定値が-5.7 eV以下であることが好ましい。上述したとおり、ベンゼンは、HOMO準位が非常に低い。したがって、本発明の一態様で用いる有機化合物単体も、HOMO準位を-5.7 eV以下という低い値をとることが容易である。

【0061】

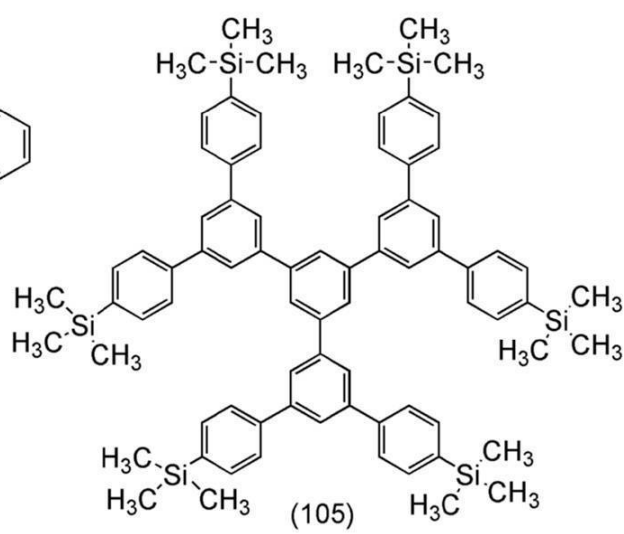
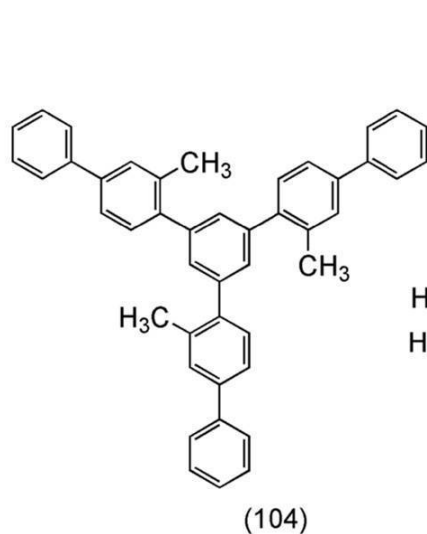
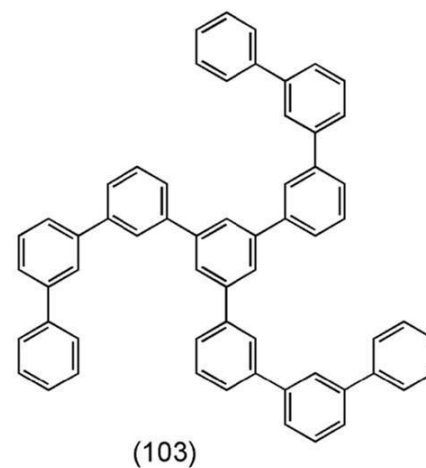
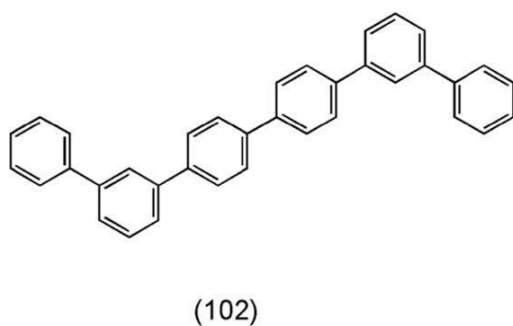
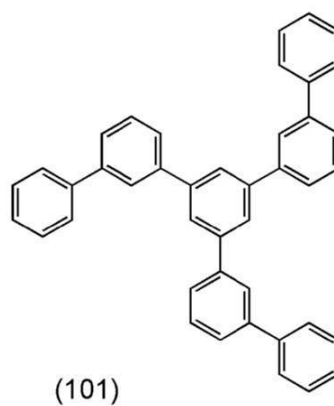
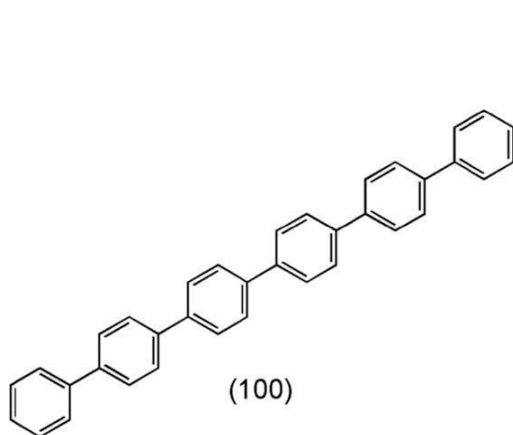
有機化合物が低いHOMO準位を有する場合、他の有機化合物への正孔注入性には優れていると考えられるが、ALやITOに代表されるような導電材料（仕事関数が3～5 eV程度）から正孔を受け取ることは困難であると考えられる。しかしながら、本発明の一態様のような複合材料を形成することにより、他の有機化合物への優れた正孔注入性を保ちつつ、電極からの正孔注入性の問題点を克服することができる。このような複合材料の性質は、発光素子に用いた際に、駆動電圧の低減に寄与する。また、透光性が高いことから、発光効率を高めることができる。さらには、深いHOMO準位によりキャリアの蓄積を防止できると考えられるため、長寿命化を達成できる。

【 0 0 6 2 】

以下の構造式 (1 0 0) ~ (1 1 2) に本発明の一態様の複合材料に用いることが可能な有機化合物の一例を示す。

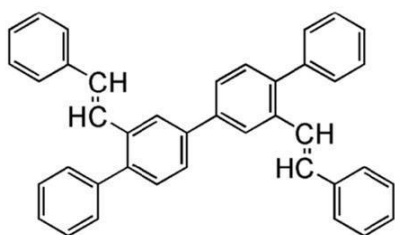
【 0 0 6 3 】

【 化 2 】

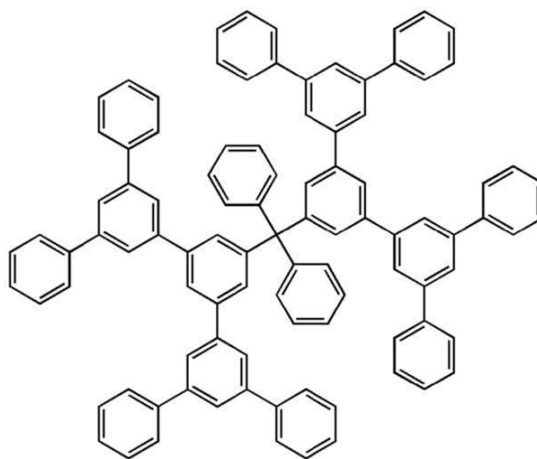


【 0 0 6 4 】

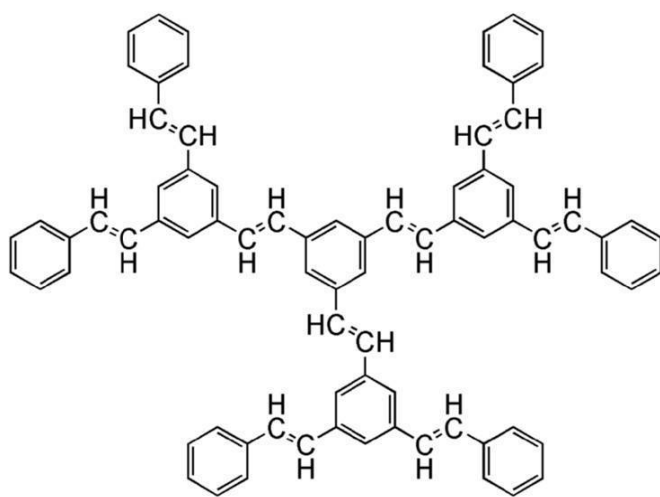
【化 3】



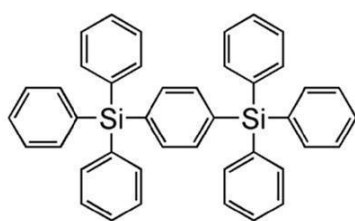
(106)



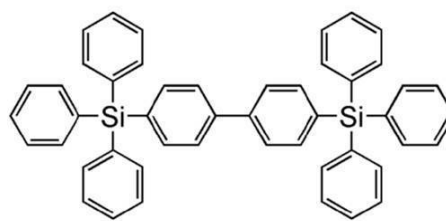
(107)



(108)



(109)



(110)

【 0 0 6 5 】

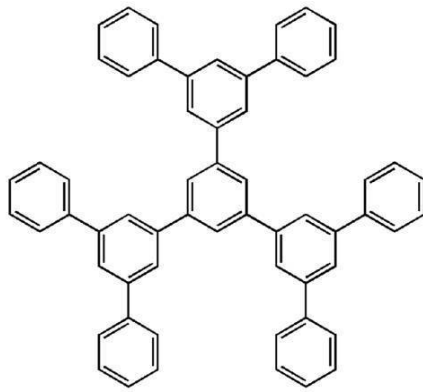
10

20

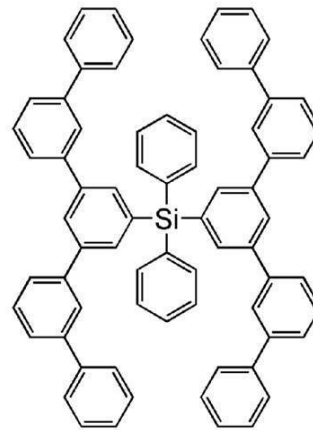
30

40

【化 4】



(111)



(112)

10

【 0 0 6 6 】

続いて、本発明の一態様の複合材料に用いることが可能な無機化合物について説明する。

【 0 0 6 7 】

本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物を用いることができる。例えば、塩化鉄 (I I I) や塩化アルミニウムなどは、電子受容性が

20

【 0 0 6 8 】

または、本発明の一態様の複合材料には、無機化合物として遷移金属酸化物を用いることができる。好ましくは元素周期表における 4 ~ 8 族に属する金属の酸化物が望ましい。特にチタン酸化物、バナジウム酸化物、タンタル酸化物、モリブデン酸化物、タングステン酸化物、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、銀酸化物が好ましい。この中でもモリブデン酸化物は蒸着がしやすく、吸湿性が低く、安定であることから特に扱いやすい材料である。

【 0 0 6 9 】

遷移金属酸化物は、上述した塩化鉄 (I I I) 等の強力なルイス酸に比べれば、電子受容性はそれほど高くない (反応性は低い) と考えられる。また、上述した通り、本発明の一態様である複合材料においては、電荷移動相互作用に基づく吸収の発生が少ない (あるいはほとんど発生しない) 。これらのことから、本発明において、遷移金属酸化物は一般的な意味合いでの電子受容体として作用しているという証明はし難い。しかしながら一方で、実施例で後述するように、実験的には、電界を印加した際には有機化合物単体では流せないほどの電流を流せる事実がある。したがって、本発明の一態様である複合材料において遷移金属酸化物を用いた場合、少なくとも電界印加のアシストにより容易にキャリアが発生しているものと考えられる。したがって本明細書では、少なくとも電界印加のアシストによりキャリアが発生していれば、複合材料中の無機化合物 (上述のような遷移金属酸化物など) は電子受容性を有するものとして扱う。

30

40

【 0 0 7 0 】

以上で述べたように、本発明の一態様の複合材料は、HOMO準位が低く、キャリア輸送性が高い材料である。また、本発明の一態様の複合材料は、有機化合物へのキャリア注入性に優れた材料である。また、本発明の一態様の複合材料は、電荷移動相互作用に基づく吸収が生じにくい材料である。また、本発明の一態様の複合材料は、透光性が高い材料である。

【 0 0 7 1 】

したがって、本発明の一態様の複合材料は、発光素子や、光電変換素子、トランジスタ等の半導体素子に用いることが可能である。

【 0 0 7 2 】

50

また、本発明の一態様の複合材料は、キャリア輸送性および有機化合物へのキャリア注入性に優れることから、発光素子等に用いることで、低い駆動電圧を実現できる。

【0073】

また、本発明の一態様の複合材料が透光性を有することから、発光素子等に用いることで、高い発光効率を実現できる。

【0074】

また、本発明の一態様の複合材料は電荷の蓄積を抑制することから、発光素子等に用いることで、長寿命の素子を作製することができる。

【0075】

また、本発明の一態様の複合材料は、有機薄膜太陽電池に用いることができる。本発明の一態様の複合材料は、キャリア輸送性に優れるため、キャリア輸送層、キャリア注入層、又は電荷発生層に用いることができる。

【0076】

なお、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可能である。

【0077】

(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1を用いて説明する。

【0078】

本実施の形態の発光素子は、一对の電極間にEL層(発光物質を含む層)を挟持して形成される。EL層は、少なくとも、実施の形態1で示した本発明の一態様の複合材料を含む層と、発光層とを有する。さらに、EL層は、そのほかの層を有していても良い。例えば、電極から離れたところに発光領域が形成されるように、つまり電極から離れた部位でキャリアの再結合が行われるように、キャリア注入性の高い物質やキャリア輸送性の高い物質からなる層を備えていても良い。本明細書では、キャリア注入性の高い物質やキャリア輸送性の高い物質からなる層をキャリアの注入、輸送などの機能を有する、機能層ともよぶ。機能層としては、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層などを用いることができる。なお、本実施の形態において、本発明の一態様の複合材料を含む層は、正孔注入層として用いる。

【0079】

また、本発明の一態様の複合材料を含む層と、発光層との間に、一層以上の層(正孔輸送層など)を設ける事が好ましい。そのことで、発光層で生じた励起エネルギーが、該複合材料を含む層へ伝わることでの消光(効率低下)を抑制でき、より高効率な素子を得ることができる。

【0080】

図1に示す発光素子は、第1の電極101及び第2の電極108の一对の電極間にEL層102が設けられている。EL層102は、第1の電極101上に正孔注入層701、正孔輸送層702、発光層703、電子輸送層704、電子注入層705の順で積層されている。なお、本実施の形態に示す発光素子において、第1の電極101は陽極として機能し、第2の電極108は陰極として機能する。

【0081】

発光素子の支持体(図1(A)の基板100参照)としては、例えばガラス基板、石英基板、又はプラスチック基板などを用いることができる。また可撓性基板を用いてもよい。可撓性基板とは、曲げることができる(フレキシブル)基板のことであり、例えば、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエーテルスルホンからなるプラスチック基板等が挙げられる。また、フィルム(ポリプロピレン、ポリエステル、ポリフッ化ビニル、ポリ塩化ビニル等からなる)、無機蒸着フィルムなどを用いることもできる。なお、発光素子の支持体として機能するものであれば、これら以外のものでもよい。

【0082】

第1の電極101としては、様々な金属、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できる。例えば、ITO、珪素若しくは酸化珪素を含有した酸化インジウ

10

20

30

40

50

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、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。

10

【0083】

第1の電極101の材料としては、仕事関数の大きい (仕事関数が 4 . 0 eV 以上) 材料を用いることが好ましい。なお、第1の電極101と、本発明の一態様の複合材料を含む層とが接する構成の発光素子については、第1の電極101に用いる材料は、仕事関数の大きい材料に限定されず、仕事関数の小さい材料を用いることもできる。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) 等を用いることもできる。

【0084】

正孔注入層701は、本発明の一態様の複合材料を含む層である。

【0085】

本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物 (実施の形態1参照) は HOMO 準位が低く、正孔輸送層702及び発光層703への正孔注入性が良好である。一方、第1の電極101との間に注入障壁が生じ、第1の電極101から正孔が注入されにくい。

20

【0086】

しかし、本発明の一態様の発光素子は、正孔注入層701に、本発明の一態様の複合材料を用いるため、第1の電極101と正孔注入層701との間の注入障壁を緩和することができる。したがって、第1の電極101から発光層703までの注入障壁が小さく、キャリア注入性の高い素子の実現が可能となり、駆動電圧の低い発光素子を提供することができる。

【0087】

さらに、本発明の一態様の複合材料はキャリアの発生効率が高く、キャリア輸送性が高い。そのため、本発明の一態様の複合材料を用いることで、発光効率の高い発光素子を実現することができる。

30

【0088】

また、該有機化合物は、可視光領域に大きな吸収ピークが生じない。さらに、該有機化合物は、HOMO 準位が低く、該無機化合物との間に、電荷移動相互作用に基づく吸収が生じにくい。したがって、本発明の一態様の複合材料は、可視光領域に吸収ピークが生じにくく、高い透光性を有する。よって、このことから、本発明の一態様の複合材料を用いることで、発光効率の高い発光素子を実現することができると言える。

【0089】

また、本発明の一態様の複合材料は、電荷の蓄積を抑制できるため、長寿命の発光素子を提供することができる。

40

【0090】

本発明の一態様の複合材料を適用する発光素子について、発光色は問わない。また、本発明の一態様の複合材料を適用する発光素子について、蛍光発光か、燐光発光か、は問わない。本発明の一態様の複合材料は、いずれの発光素子においても、発光エネルギーを吸収して効率を損なうことがほとんど無く、正孔注入層に好適に用いることができる。

【0091】

正孔輸送層702は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。正孔輸送層702の材料として、本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物を用いても良い。そのほか、正孔輸送性の高い物質としては、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニ

50

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

10

【0092】

また、正孔輸送層 702 には、4, 4' - ジ (N - カルバゾリル) ビフェニル (略称: CBP)、9 - [4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9H - カルバゾール (略称: CzPA)、9 - フェニル - 3 - [4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9H - カルバゾール (略称: PCzPA) のようなカルバゾール誘導体や、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ジ (2 - ナフチル) アントラセン (略称: t - BuDNA)、9, 10 - ジ (2 - ナフチル) アントラセン (略称: DNA)、9, 10 - ジフェニルアントラセン (略称: DPAnth) のようなアントラセン誘導体を用いても良い。

20

【0093】

特に、本発明の一態様である複合材料における有機化合物は、低い HOMO 準位を有するため、正孔輸送層にも低い HOMO 準位を有する材料を適用することができる。このような構成とすることにより、発光層と正孔輸送層との界面における電荷の蓄積を防ぐことができ、発光素子を長寿命化できる。具体的には、正孔輸送層の HOMO 準位は - 5.6 eV 以下であることが好ましい。また、このような観点から、正孔輸送層に用いる化合物としては、カルバゾール誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、アントラセン誘導体などが好ましい。また、本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物を用いても良い。この時、正孔注入層と正孔輸送層に本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物を用いると、HOMO 準位が近くなるため、キャリア注入障壁はより小さくなり、好ましい。特に、正孔注入層に用いる本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物と、正孔輸送層に用いる有機化合物が同じ材料であると、これら層間の正孔注入性が良好となり、好ましい。

30

【0094】

なお、正孔輸送層 702 には、ポリ (N - ビニルカルバゾール) (略称: PVK)、ポリ (4 - ビニルトリフェニルアミン) (略称: PVTPA)、ポリ [N - (4 - {N' - [4 - (4 - ジフェニルアミノ) フェニル] フェニル - N' - フェニルアミノ} フェニル) メタクリルアミド] (略称: PTPDMA)、ポリ [N, N' - ビス (4 - ブチルフェニル) - N, N' - ビス (フェニル) ベンジジン] (略称: Poly - TPD) などの高分子化合物を用いることもできる。

40

【0095】

発光層 703 は、発光性の有機化合物を含む層である。発光性の有機化合物としては、例えば、蛍光を発光する蛍光性化合物や燐光を発光する燐光性化合物を用いることができる。

【0096】

発光層 703 に用いることができる蛍光性化合物としては、例えば、青色系の発光材料として、N, N' - ビス [4 - (9H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] - N, N' - ジフェニルスチルベン - 4, 4' - ジアミン (略称: YGA2S)、4 - (9H - カルバゾール - 9 - イル) - 4' - (10 - フェニル - 9 - アントリル) トリフェニルアミン (略称: YGAPA)、4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) - 4' - (9 - フェニル

50

- 9 H - カルバゾール - 3 - イル)トリフェニルアミン(略称:PCBAPA)などが挙げられる。また、緑色系の発光材料として、N-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)-N,9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:2PCAPA)、N-[9,10-ビス(1,1'-ビフェニル-2-イル)-2-アントリル]-N,9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:2PCABPhA)、N-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)-N,N',N'-トリフェニル-1,4-フェニレンジアミン(略称:2DPAPA)、N-[9,10-ビス(1,1'-ビフェニル-2-イル)-2-アントリル]-N,N',N'-トリフェニル-1,4-フェニレンジアミン(略称:2DPABPhA)、N-[9,10-ビス(1,1'-ビフェニル-2-イル)]-N-[4-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]-N-フェニルアントラセン-2-アミン(略称:2YGABPhA)、N,N,9-トリフェニルアントラセン-9-アミン(略称:DPhAPhA)などが挙げられる。また、黄色系の発光材料として、ルブレン、5,12-ビス(1,1'-ビフェニル-4-イル)-6,11-ジフェニルテトラセン(略称:BPt)などが挙げられる。また、赤色系の発光材料として、N,N,N',N'-テトラキス(4-メチルフェニル)テトラセン-5,11-ジアミン(略称:p-mPhTD)、7,14-ジフェニル-N,N,N',N'-テトラキス(4-メチルフェニル)アセナフト[1,2-a]フルオランテン-3,10-ジアミン(略称:p-mPhAFD)などが挙げられる。

【0097】

なお、本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物は、紫色～青色の蛍光を発する。よって、本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物を、蛍光性化合物として、発光層703に用いることができる。

【0098】

また、発光層703に用いることができる燐光性化合物としては、例えば、青色系の発光材料として、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C^{2'}']イリジウム(III)テトラキス(1-ピラゾリル)ボラート(略称:FIr6)、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C^{2'}']イリジウム(III)ピコリナート(略称:FIrpic)、ビス{2-[3',5'-ビス(トリフルオロメチル)フェニル]ピリジナト-N,C^{2'}'}イリジウム(III)ピコリナート(略称:[Ir(CF₃ppy)₂(pic)])、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C^{2'}']イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:FIr(acac))などが挙げられる。また、緑色系の発光材料として、トリス(2-フェニルピリジナト-N,C^{2'}')イリジウム(III)(略称:[Ir(ppy)₃])、ビス(2-フェニルピリジナト-N,C^{2'}')イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(ppy)₂(acac)])、ビス(1,2-ジフェニル-1H-ベンゾイミダゾラト)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(pbi)₂(acac)])、ビス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(bzq)₂(acac)])、トリス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(bzq)₃])などが挙げられる。また、黄色系の発光材料として、ビス(2,4-ジフェニル-1,3-オキサゾラト-N,C^{2'}')イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(dpo)₂(acac)])、ビス[2-(4'-パーフルオロフェニルフェニル)ピリジナト]イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(p-PF-ph)₂(acac)])、ビス(2-フェニルベンゾチアゾラト-N,C^{2'}')イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:[Ir(bt)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[2,3-ビス(4-フルオロフェニル)-5-メチルピラジナト]イリジウム(III)(略称:[Ir(Fdppr-Me)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス{2-(4-メトキシフェニル)-3,5-ジメチルピラジナト}イリジウム(III)(略称:[Ir(dmmopp)₂(acac)]などが挙げられる。また、橙色系の発光材料として、トリス(2-フェニルキノリナト-N,C^{2'}')イリジウム(III)

10

20

30

40

50

II) (略称: [Ir(pq)₃])、ビス(2-フェニルキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称: [Ir(pq)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(3, 5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppr-Me)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(5-イソプロピル-3-メチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(mppr-iPr)₂(acac)])などが挙げられる。また、赤色系の発光材料として、ビス[2-(2'-ベンゾ[4, 5-]チエニル)ピリジナト-N, C^{3'}]イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称: [Ir(btp)₂(acac)])、ビス(1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称: [Ir(piq)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス[2, 3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト]イリジウム(III) (略称: [Ir(Fdpq)₂(acac)])、(アセチルアセトナト)ビス(2, 3, 5-トリフェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(tppr)₂(acac)])、(ジピバロイルメタナト)ビス(2, 3, 5-トリフェニルピラジナト)イリジウム(III) (略称: [Ir(tppr)₂(dpm)])、2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリン白金(II) (略称: PtOEP)等の有機金属錯体が挙げられる。また、トリス(アセチルアセトナト)(モノフェナントロリン)テルビウム(III) (略称: Tb(acac)₃(Phen))、トリス(1, 3-ジフェニル-1, 3-プロパンジオナト)(モノフェナントロリン)ユーロピウム(III) (略称: Eu(DBM)₃(Phen))、トリス[1-(2-テノイル)-3, 3, 3-トリフルオロアセトナト](モノフェナントロリン)ユーロピウム(III) (略称: Eu(TTA)₃(Phen))等の希土類金属錯体は、希土類金属イオンからの発光(異なる多重度間の電子遷移)であるため、発光性化合物として用いることができる。

10

20

30

【0099】

なお、発光層703としては、上述した発光性の有機化合物(ゲスト材料)を他の物質(ホスト材料)に分散させた構成としてもよい。ホスト材料としては、各種のものを用いることができ、ゲスト材料よりも最低空軌道準位(LUMO準位)が高く、HOMO準位が低い物質を用いることが好ましい。また、ゲスト材料が蛍光性化合物の場合は一重項励起エネルギーの準位(S1準位)、燐光性化合物の場合は三重項励起エネルギーの準位(T1準位)が高いことが好ましい。

【0100】

本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物はLUMO準位が高く、HOMO準位が低く、S1準位とT1準位がそれぞれ高い。そのため、可視光を発光する蛍光性化合物のホスト材料や、燐光性化合物のホスト材料に用いることができる。

【0101】

ホスト材料としては、具体的には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III) (略称: Alq)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) (略称: Almq₃)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(II) (略称: BeBq₂)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) (略称: BA1q)、ビス(8-キノリノラト)亜鉛(II) (略称: Znq)、ビス[2-(2-ベンゾオキサゾリル)フェノラト]亜鉛(II) (略称: Zn(BOX)₂)、ビス[2-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラト]亜鉛(II) (略称: Zn(BTZ)₂)などの金属錯体、2-(4-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-ピフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール(略称: TAZ)、2, 2', 2''-(1, 3, 5-ベンゼントリイル)トリス(1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール) (略称: TPBI)、バソフェナントロリン(略称: BPhen

40

50

)、バソキュプロイン(略称:BCP)などの複素環化合物や、9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称:CzPA)、3,6-ジフェニル-9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称:DPCzPA)、9,10-ビス(3,5-ジフェニルフェニル)アントラセン(略称:DPPA)、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、2-tert-ブチル-9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:t-BuDNA)、9,9'-ビアントリル(略称:BANT)、9,9'-(スチルベン-3,3'-ジイル)ジフェナントレン(略称:DPNS)、9,9'-(スチルベン-4,4'-ジイル)ジフェナントレン(略称:DPNS2)、3,3',3''-(ベンゼン-1,3,5-トリイル)トリピレン(略称:TPB3)、9,10-ジフェニルアントラセン(略称:DPA nth)、6,12-ジメトキシ-5,11-ジフェニルクリセンなどの縮合芳香族化合物、N,N-ジフェニル-9-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:CzA1PA)、4-(10-フェニル-9-アントリル)トリフェニルアミン(略称:DPhPA)、N,9-ジフェニル-N-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:PCAPPA)、N,9-ジフェニル-N-{4-[4-(10-フェニル-9-アントリル)フェニル]フェニル}-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:PCAPBA)、N-(9,10-ジフェニル-2-アントリル)-N,9-ジフェニル-9H-カルバゾール-3-アミン(略称:2PCAPPA)、NPB(又は-NPD)、TPD、DFLDPBi、BSPBなどの芳香族アミン化合物などを用いることができる。

10

20

【0102】

また、ホスト材料は複数種用いることができる。例えば、結晶化を抑制するためにルブレン等の結晶化を抑制する物質をさらに添加してもよい。また、ゲスト材料へのエネルギー移動をより効率良く行うためにNPB、あるいはAlq等をさらに添加してもよい。

【0103】

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703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することができる。

【0104】

また、発光層703として高分子化合物を用いることができる。具体的には、青色系の発光材料として、ポリ(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)(略称:PF0)、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-(2,5-ジメトキシベンゼン-1,4-ジイル)](略称:PF-DMOP)、ポリ{(9,9-ジオクチルフルオレン-2,7-ジイル)-co-[N,N'-ジ-(p-ブチルフェニル)-1,4-ジアミノベンゼン]}(略称:TAB-PFH)などが挙げられる。また、緑色系の発光材料として、ポリ(p-フェニレンビニレン)(略称:PPV)、ポリ[(9,9-ジヘキシルフルオレン-2,7-ジイル)-alt-co-(ベンゾ[2,1,3]チアジアゾール-4,7-ジイル)](略称:PFBT)、ポリ[(9,9-ジオクチル-2,7-ジピニレンフルオレニレン)-alt-co-(2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシロキシ)-1,4-フェニレン)]などが挙げられる。また、橙色~赤色系の発光材料として、ポリ[2-メトキシ-5-(2'-エチルヘキソキシ)-1,4-フェニレンビニレン](略称:MEH-PPV)、ポリ(3-ブチルチオフェン-2,5-ジイル)(略称:R4-PAT)、ポリ{[9,9-ジヘキシル-2,7-ビス(1-シアノビニレン)フルオレニレン]-alt-co-[2,5-ビス(N,N'-ジフェニルアミノ)-1,4-フェニレン]}、ポリ{[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシロキシ)-1,4-ビス(1-シアノビニレンフェニレン)]-alt-co-[2,5-ビス(N,N'-ジフェニルアミノ)-1,4-フェニレン]}(略称:CN-PPV-DPD)などが挙げられる。

30

40

【0105】

50

また、複数の発光層を設け、それぞれの発光層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、2つの発光層を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、3つ以上の発光層を有する発光素子の場合でも同様である。

【0106】

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、例えば、 Alq 、 $Almq_3$ 、 $BeBq_2$ 、 $BAlq$ など、キノリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等が挙げられる。また、その他 $Zn(BOX)_2$ 、 $Zn(BTZ)_2$ などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体なども用いることができる。さらに、金属錯体以外にも、PBDや、OXD-7、TAZ、BPhen、BCPなども用いることができる。ここに述べた物質は、主に $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質である。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してもよい。

10

【0107】

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、又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。

20

【0108】

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。

【0109】

図2(A)に示す発光素子は、基板100上において、第1の電極101及び第2の電極108の一对の電極間に、EL層102が設けられている。EL層102は、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を有している。図2(A)における発光素子は、基板100上に、陰極として機能する第2の電極108と、第2の電極108上に順に積層した電子注入層705、電子輸送層704、発光層703、正孔輸送層702、正孔注入層701と、さらにその上に設けられた陽極として機能する第1の電極101から構成されている。

30

【0110】

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

40

【0111】

EL層は、図1(B)に示すように、第1の電極101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は本発明の一態様の複合材料を用いて形成することができる。本発明の一態様の複合材料は、電圧印加時におけるキャリアの発生効率が高く、正孔輸送性が高い。そのため、本発明の一態様の複合材料を用いることで、駆動電圧の低い発光素子を実現することができる。また、発光効率の高い発光素子を実現することができる。

【0112】

この場合も、本発明の一態様の複合材料を含む層に接する正孔輸送層や、該正孔輸送層に

50

接する発光層に、本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物を好適に用いることができる。

【0113】

また、該有機化合物は、吸収ピークが可視光領域に生じにくい。また、該有機化合物はHOMO準位が低く、該無機化合物との間に、電荷移動相互作用に基づく吸収が生じにくい、したがって、本発明の一態様の複合材料は、可視光領域に吸収ピークが生じにくく、高い透光性を有する。よって、このことから、本発明の一態様の複合材料を用いることで、発光効率の高い発光素子を実現することができると言える。

【0114】

また、電荷発生層803は本発明の一態様の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。

10

【0115】

同様に、図2(B)に示すように、3つ以上のEL層802を積層した発光素子も適用することが可能である。本実施の形態に係る発光素子のように、一对の電極間に、電荷発生層を挟んで複数のEL層を配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度で発光する長寿命素子を実現できる。

20

【0116】

EL層は、図1(C)に示すように、第1の電極101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。

【0117】

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、本発明の一態様の複合材料を用いることができる。

30

【0118】

また、上記複合材料層708は電荷発生層として機能するため、第2の電極108から複合材料層708を経由して電子リレー層707に良好にキャリアを注入することができる。

【0119】

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。

【0120】

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）、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））等の電子注入性の高い物質を用いることが可能である。

40

【0121】

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（

50

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)、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。

【0122】

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。

10

【0123】

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、駆動電圧の上昇を抑制することができる。

【0124】

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以下とするとよい。

20

【0125】

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。

【0126】

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。

30

【0127】

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。

40

【0128】

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

50

しやすく、アクセプター性が高いため好ましい。

【0129】

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。

【0130】

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。

【0131】

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。

【0132】

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-C₈H）、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。

【0133】

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)₆）、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。

【0134】

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：F₁₆CuPC）、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-C₈F）、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）、メタノフラレン（例えば、[6,6]-フェニルC₆₀、酪酸メチルエステル）等を用いることができる。

【0135】

10

20

30

40

50

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。

【0136】

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。特に、正孔注入層 701 は本発明の一態様の複合材料とすればよい。また、正孔輸送層 702 や発光層 703 はそれぞれ本発明の一態様の複合材料で用いる有機化合物を好適に用いることができる。

【0137】

なお、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可能である。

【0138】

(実施の形態 3)

本実施の形態では、本発明の一態様の、発光素子を有する発光装置について図 3 を用いて説明する。なお、図 3 (A) は、発光装置を示す上面図、図 3 (B) は図 3 (A) を A - B 及び C - D で切断した断面図である。

【0139】

本実施の形態の発光装置は、駆動回路部であるソース側駆動回路 401 及びゲート側駆動回路 403 と、画素部 402 と、封止基板 404 と、シール材 405 と、FPC (フレキシブルプリントサーキット) 409 と、素子基板 410 とを有する。シール材 405 で囲まれた内側は、空間になっている。

【0140】

なお、引き回し配線 408 はソース側駆動回路 401 及びゲート側駆動回路 403 に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となる FPC 409 からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここでは FPC しか図示されていないが、この FPC にはプリント配線基板 (PWB) が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それに FPC 又は PWB が取り付けられた状態をも含むものとする。

【0141】

図 3 (A) に示す素子基板 410 上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、図 3 (B) では、駆動回路部であるソース側駆動回路 401 と、画素部 402 中の一つの画素が示されている。

【0142】

なお、ソース側駆動回路 401 は n チャネル型 TFT 423 と p チャネル型 TFT 424 とを組み合わせた CMOS 回路が形成される。また、駆動回路は、TFT で形成される種々の CMOS 回路、PMOS 回路又は NMOS 回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー体型を示すが、必ずしもその必要はなく、駆動回路を基板上ではなく外部に形成することもできる。

【0143】

また、画素部 402 はスイッチング用 TFT 411 と、電流制御用 TFT 412 とそのドレインに電気的に接続された第 1 の電極 413 とを含む複数の画素により形成される。なお、第 1 の電極 413 の端部を覆って絶縁物 414 が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

【0144】

また、被覆性を良好なものとするため、絶縁物 414 の上端部又は下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物 414 の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物 414 の上端部のみに曲率半径 ($0.2 \mu\text{m} \sim 3 \mu\text{m}$) を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物 414 として、光の照射によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光の照射によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

【0145】

第 1 の電極 413 上には、EL 層 416、及び第 2 の電極 417 がそれぞれ形成されてい

10

20

30

40

50

る。ここで、陽極として機能する第1の電極413に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO膜、又は珪素を含有したインジウム錫酸化物膜、2～20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム膜、窒化チタン膜、クロム膜、タンゲステン膜、Zn膜、Pt膜などの単層膜の他、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれる。

【0146】

また、EL層416は、蒸着マスクを用いた蒸着法、インクジェット法などの液滴吐出法、印刷法、スピコート法等の種々の方法によって形成される。EL層416は、実施の形態1で示した本発明の一態様の複合材料を含んでいる。また、EL層416を構成する他の材料としては、低分子材料、オリゴマー、デンドリマー、又は高分子材料であっても良い。

10

【0147】

さらに、EL層416上に形成され、陰極として機能する第2の電極417に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料(Al、Mg、Li、Ca、又はこれらの合金や化合物、Mg-Ag、Mg-In、Al-Li等)を用いることが好ましい。なお、EL層416で生じた光が第2の電極417を透過するためには、第2の電極417として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜(ITO、2～20wt%の酸化亜鉛を含む酸化インジウム、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、酸化亜鉛等)との積層を用いるのが良い。

20

【0148】

さらにシール材405で封止基板404を素子基板410と貼り合わせることで、素子基板410、封止基板404、及びシール材405で囲まれた空間407に発光素子418が備えられた構造になっている。なお、空間407には、充填材が充填されており、不活性気体(窒素やアルゴン等)が充填される場合の他、シール材405で充填される場合もある。

【0149】

なお、シール材405にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板404に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiber glass-Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、ポリエステル又はアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

30

【0150】

以上のようにして、本発明の一態様の発光素子を有するアクティブマトリクス型の発光装置を得ることができる。

【0151】

また、本発明の発光素子は、上述したアクティブマトリクス型の発光装置のみならずパッシブマトリクス型の発光装置に用いることもできる。図4に本発明の発光素子を用いたパッシブマトリクス型の発光装置の斜視図及び断面図を示す。なお、図4(A)は、発光装置を示す斜視図、図4(B)は図4(A)をX-Yで切断した断面図である。

40

【0152】

図4において、基板501上の第1の電極502と第2の電極503との間にはEL層504が設けられている。第1の電極502の端部は絶縁層505で覆われている。そして、絶縁層505上には隔壁層506が設けられている。隔壁層506の側壁は、基板面に近くなるに伴って、一方の側壁と他方の側壁との間隔が狭くなるような傾斜を有する。つまり、隔壁層506の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺(絶縁層505の面方向と同様の方向を向き、絶縁層505と接する辺)の方が上辺(絶縁層505の面方向と同様の方向を向き、絶縁層505と接しない辺)よりも短い。このように、隔壁層506を設けることで、クロストーク等に起因した発光素子の不良を防ぐことができる。

50

【 0 1 5 3 】

以上により、本発明の一態様の発光素子を有するパッシブマトリクス型の発光装置を得ることができる。

【 0 1 5 4 】

図 5 に、本発明の一態様を適用した発光装置の一例を示す。図 5 (A) は、発光装置を示す上面図、図 5 (B) (C) は図 5 (A) を E - F 間で切断した断面図である。

【 0 1 5 5 】

図 5 (A) 乃至 (C) に示す発光装置 9 0 0 は、第 1 の基板 9 0 1 上に発光素子 9 0 8 (第 1 の電極 1 0 1、E L 層 1 0 2、及び第 2 の電極 1 0 8) を備える。発光素子 9 0 8 は、実施の形態 2 に示した材料を用いて形成することができる。E L 層 1 0 2 は、本発明の一態様の複合材料を含む。

10

【 0 1 5 6 】

本実施の形態の発光装置は、発光素子が上部方向に光を射出する構造 (トップエミッション構造ともいう)、上部及び下部方向に光を射出する構造 (デュアルエミッション構造ともいう)、及び、下部方向に光を射出する構造 (ボトムエミッション構造ともいう) のいずれの構造も適用することができる。

【 0 1 5 7 】

図 5 (B) にボトムエミッション構造の発光装置を示す。

【 0 1 5 8 】

図 5 (B) に示す発光装置は、第 1 の基板 9 0 1 上に第 1 の電極 1 0 1 を有し、第 1 の電極 1 0 1 上に E L 層 1 0 2 を有し、E L 層 1 0 2 上に第 2 の電極 1 0 8 を有する。

20

【 0 1 5 9 】

第 1 の端子 9 0 3 は、補助配線 9 1 0 及び第 1 の電極 1 0 1 と電氣的に接続し、第 2 の端子 9 0 4 は、第 2 の電極 1 0 8 と電氣的に接続する。また、第 1 の電極 1 0 1 及び第 2 の電極 1 0 8 の端部、並びに補助配線 9 1 0 と E L 層 1 0 2 の間には、絶縁層 9 0 9 が形成されている。なお、図 5 (B) において、補助配線 9 1 0 上に第 1 の電極 1 0 1 が形成されている構成を示すが、第 1 の電極 1 0 1 上に補助配線 9 1 0 が形成される構成としても良い。

【 0 1 6 0 】

そして、第 1 の基板 9 0 1 及び第 2 の基板 9 0 2 は、シール材 9 1 2 によって貼り合わされている。また、第 1 の基板 9 0 1 と第 2 の基板 9 0 2 の間に、乾燥剤 9 1 1 を有していても良い。

30

【 0 1 6 1 】

また、第 1 の基板 9 0 1 の上部、下部、または両方に、光取り出し構造を有していても良い。光取り出し構造としては、光が屈折率の高い側から低い側に透過する界面に、凹凸構造を設ければ良い。具体的には、図 5 (B) に示すように、微細な凹凸構造をもつ光取り出し構造 9 1 3 a を屈折率の高い発光素子 9 0 8 とそれより屈折率が低い第 1 の基板 9 0 1 との間に設け、凹凸構造をもつ光取り出し構造 9 1 3 b を第 1 の基板 9 0 1 と大気との間に設ける構成が挙げられる。

【 0 1 6 2 】

しかし、発光素子において、第 1 の電極 1 0 1 が凹凸を有すると、第 1 の電極 1 0 1 上に形成される E L 層 1 0 2 においてリーク電流が生じる恐れがある。したがって、本実施の形態では、E L 層 1 0 2 の屈折率以上の屈折率を有する平坦化層 9 1 4 を光取り出し構造 9 1 3 a と接して設ける。これによって、第 1 の電極 1 0 1 を平坦な膜とすることができ、第 1 の電極 1 0 1 の凹凸に起因する E L 層におけるリーク電流の発生を抑制することができる。また、平坦化層 9 1 4 と第 1 の基板 9 0 1 との界面に、光取り出し構造 9 1 3 a を有するため、全反射の影響で大気に取り出せない光を低減し、発光装置の光の取り出し効率を向上させることができる。

40

【 0 1 6 3 】

なお、図 5 (B) において、第 1 の基板 9 0 1、光取り出し構造 9 1 3 a、及び光取り出

50

し構造 9 1 3 b を異なる要素として示したが、本発明はこれに限られない。これらのうち二つ又は全てが一体に形成されていても良い。また、光取り出し構造 9 1 3 a はシール領域の内側に全てが形成されていても良い。

【 0 1 6 4 】

図 5 (C) にトップエミッション構造の発光装置を示す。

【 0 1 6 5 】

図 5 (C) に示す発光装置は、第 1 の基板 9 0 1 上に第 2 の電極 1 0 8 を有し、第 2 の電極 1 0 8 上に E L 層 1 0 2 を有し、E L 層 1 0 2 上に第 1 の電極 1 0 1 を有する。

【 0 1 6 6 】

第 1 の端子 9 0 3 は、第 2 の電極 1 0 8 と電氣的に接続し、第 2 の端子 9 0 4 は、第 1 の電極 1 0 1 と電氣的に接続する。また、第 1 の電極 1 0 1 及び第 2 の電極 1 0 8 の端部には、絶縁層 9 0 9 が形成されている。

10

【 0 1 6 7 】

そして、第 1 の基板 9 0 1 及び第 2 の基板 9 0 2 は、シール材 9 1 2 によって貼り合わされている。また、第 1 の電極 1 0 1 上に補助配線を形成しても良い。また、第 1 の基板 9 0 1 と第 2 の基板 9 0 2 の間に、乾燥剤 9 1 1 を有していても良い。乾燥剤 9 1 1 は、発光素子の発光領域と重ならない位置に設けることが好ましい。または、発光素子の光を透過する乾燥剤を用いることが好ましい。

【 0 1 6 8 】

なお、図 5 (A) に示す発光装置 9 0 0 の形状は八角形であるが、本発明はこれに限られない。発光装置 9 0 0 および発光素子 9 0 8 は、その他の多角形または曲線をもつ形状としても良い。特に、発光装置 9 0 0 の形状としては、三角形、四角形、正六角形などが好ましい。なぜなら、限られた面積に複数の発光装置 9 0 0 を隙間無く設けることができるためである。また、限られた基板面積を有効に利用して発光装置 9 0 0 を形成できるためである。また、基板上に形成する素子は一つに限られず、複数の素子を設けても良い。

20

【 0 1 6 9 】

第 1 の基板 9 0 1 及び第 2 の基板 9 0 2 の材料としては、ガラス、石英、有機樹脂などの透光性を有する材料を用いることができる。第 1 の基板 9 0 1 及び第 2 の基板 9 0 2 の少なくとも一方は、発光素子が発する光を透過する。

【 0 1 7 0 】

基板として有機樹脂を用いる場合、有機樹脂としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート (P E T) 、ポリエチレンナフタレート (P E N) 等のポリエステル樹脂、ポリアクリルニトリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂、ポリカーボネート (P C) 樹脂、ポリエーテルスルホン (P E S) 樹脂、ポリアミド樹脂、シクロオレフィン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミドイミド樹脂、またはポリ塩化ビニル樹脂などを用いることができる。また、ガラス繊維に有機樹脂を含浸した基板や、無機フィラーを有機樹脂に混ぜた基板を使用することもできる。

30

【 0 1 7 1 】

なお、本実施の形態で示した発光装置は、いずれも本発明の一態様の発光素子を用いて形成されることから、消費電力の低い発光装置を得ることができる。

40

【 0 1 7 2 】

なお、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可能である。

【 0 1 7 3 】

(実施の形態 4)

本実施の形態では、本発明を適用した一態様である発光装置を用いて完成させた様々な電子機器および照明器具の一例について、図 6 、図 7 を用いて説明する。

【 0 1 7 4 】

発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置 (テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう) 、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機 (携帯電話、携帯電話装置ともいう) 、携

50

帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器および照明器具の具体例を図6に示す。

【0175】

図6(A)は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置7100は、筐体7101に表示部7103が組み込まれている。表示部7103により、映像を表示することが可能であり、発光装置を表示部7103に用いることができる。また、ここでは、スタンド7105により筐体7101を支持した構成を示している。

【0176】

テレビジョン装置7100の操作は、筐体7101が備える操作スイッチや、別体のリモコン操作機7110により行うことができる。リモコン操作機7110が備える操作キー7109により、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部7103に表示される映像を操作することができる。また、リモコン操作機7110に、当該リモコン操作機7110から出力する情報を表示する表示部7107を設ける構成としてもよい。

【0177】

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

【0178】

図6(B)はコンピュータであり、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0179】

図6(C)は携帯型遊技機であり、筐体7301と筐体7302の2つの筐体で構成されており、連結部7303により、開閉可能に連結されている。筐体7301には表示部7304が組み込まれ、筐体7302には表示部7305が組み込まれている。また、図6(C)に示す携帯型遊技機は、その他、スピーカ部7306、記録媒体挿入部7307、LEDランプ7308、入力手段(操作キー7309、接続端子7310、センサ7311(力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、におい又は赤外線を測定する機能を含むもの)、マイクロフォン7312)等を備えている。もちろん、携帯型遊技機の構成は上述のものに限定されず、少なくとも表示部7304および表示部7305の両方、又は一方に発光装置を用いていればよく、その他付属設備が適宜設けられた構成とすることができる。図6(C)に示す携帯型遊技機は、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型遊技機と無線通信を行って情報を共有する機能を有する。なお、図6(C)に示す携帯型遊技機が有する機能はこれに限定されず、様々な機能を有することができる。

【0180】

図6(D)は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に組み込まれた表示部7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、スピーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。

【0181】

図6(D)に示す携帯電話機7400は、表示部7402を指などで触れることで、情報を入力することができる。また、電話を掛ける、或いはメールを作成するなどの操作は、表示部7402を指などで触れることにより行うことができる。

【0182】

表示部7402の画面は主として3つのモードがある。第1は、画像の表示を主とする表示モードであり、第2は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第3は表示モードと入力モードの2つのモードが混合した表示+入力モードである。

10

20

30

40

50

【0183】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部7402を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。この場合、表示部7402の画面のほとんどもにキーボード又は番号ボタンを表示させることが好ましい。

【0184】

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

【0185】

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

【0186】

また、入力モードにおいて、表示部7402の光センサで検出される信号を検知し、表示部7402のタッチ操作による入力が一定期間ない場合には、画面のモードを入力モードから表示モードに切り替えるように制御してもよい。

【0187】

表示部7402は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部7402に掌や指で触れ、掌紋、指紋等を撮像することで、本人認証を行うことができる。また、表示部に近赤外光を発光するバックライト又は近赤外光を発光するセンシング用光源を用いれば、指静脈、掌静脈などを撮像することもできる。

【0188】

図6(E)は卓上照明器具であり、照明部7501、傘7502、可変アーム7503、支柱7504、台7505、電源7506を含む。なお、卓上照明器具は、発光装置を照明部7501に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井固定型の照明器具又は壁掛け型の照明器具なども含まれる。

【0189】

図7は、発光装置を、室内の照明装置811として用いた例である。発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。その他、ロール型の照明装置812として用いることもできる。なお、図7に示すように、室内の照明装置811を備えた部屋で、図6(E)で説明した卓上照明器具813を併用してもよい。

【0190】

以上のようにして、発光装置を適用して電子機器や照明器具を得ることができる。発光装置の適用範囲は極めて広く、あらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。

【0191】

なお、本実施の形態に示す構成は、先の実施の形態に示した構成を適宜組み合わせて用いることができる。

【実施例1】

【0192】

本実施例では、本発明の一態様の複合材料の具体例を例示する。本発明の一態様の複合材料は、有する環がベンゼン環のみであり、該ベンゼン環の数は4以上25以下である有機化合物と、該有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物とを含む。

【0193】

本実施例の構成例1乃至3に用いた有機化合物、及び該有機化合物のHOMO準位(eV)を表1に示す。なお、該HOMO準位は、光電子分光法での測定値である。また、該有機化合物の構造式を以下に示す。

【0194】

10

20

30

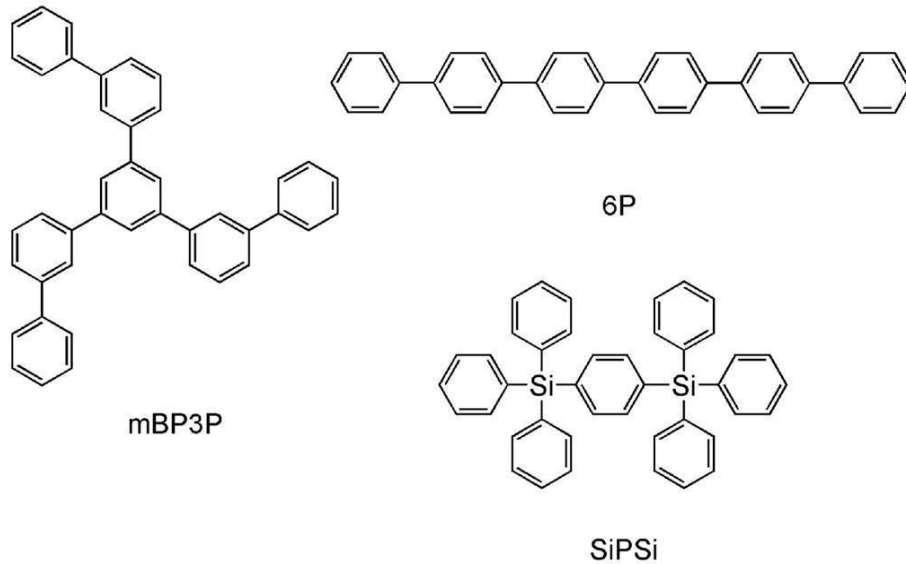
40

【表 1】

	有機化合物	HOMO準位(eV)
構成例1	mBP3P	-6.1
構成例2	6P	-5.9
構成例3	SiPSi	-5.8

【0195】

【化5】



【0196】

また、1, 3, 5 - トリ（ビフェニル - 3 - イル）ベンゼン（略称：mBP3P）のトルエン溶液の吸収スペクトルを図8（A）に、発光スペクトルを図8（B）にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計（日本分光株式会社製、V550型）を用いた。溶液は石英セルに入れて測定を行った。吸収スペクトルに関して、石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図8（A）において横軸は波長（nm）、縦軸は吸収強度（任意単位）を表す。図8（B）において横軸は波長（nm）、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。mBP3Pの発光波長のピークは、349 nm（励起波長290 nm）であった。

【0197】

図8（A）より、mBP3Pのトルエン溶液の吸収スペクトルは、可視光領域に吸収がほとんど見られないことがわかった。また、図8（B）より、発光ピークが短波長側にあることから、発光層に接する正孔輸送層の材料や発光層のホスト材料として、mBP3Pは好適であることがわかった。

【0198】

また、後述するが、mBP3Pの薄膜の吸収スペクトルも、可視光領域に吸収がほとんど見られない（図9（A）（B）参照）。溶液、薄膜ともに、可視光領域に吸収がほとんど見られないことから、単膜、及び他の有機化合物との混合膜のどちらにおいても、該有機化合物は好適であることがわかった。このことから、本発明の一態様の複合材料、正孔輸送層、及び発光層に、それぞれ、該有機化合物を好適に用いることができることがわかった。

【0199】

また、構成例1乃至3において、無機化合物としては、酸化モリブデンを用いた。

【0200】

本発明の一態様の複合材料の作製方法について説明する。

【0201】

(構成例 1)

まず、ガラス基板を真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、m B P 3 P と酸化モリブデン (V I) とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した状態で、共蒸着法により m B P 3 P と酸化モリブデンとを含む膜を形成した。この時、m B P 3 P と酸化モリブデンの比率が質量比で 4 : 2、4 : 1、4 : 0.5 (= m B P 3 P : 酸化モリブデン) となるようにそれぞれ共蒸着した。なお、膜厚は 50 nm とした。

【0202】

このようにして成膜した m B P 3 P と酸化モリブデンの複合膜 (構成例 1) の吸収スペクトルを測定した結果を、図 9 に示す。また、比較のため、m B P 3 P のみの膜 (膜厚 50 nm) の吸収スペクトルも合わせて図示する。

10

【0203】

(構成例 2)

まず、ガラス基板を真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、p - セキシフェニル (略称: 6 P) と酸化モリブデン (V I) とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した状態で、共蒸着法により 6 P と酸化モリブデンとを含む膜を形成した。この時、6 P と酸化モリブデンの比率が質量比で 4 : 2、4 : 1、4 : 0.5 (= 6 P : 酸化モリブデン) となるようにそれぞれ共蒸着した。なお、膜厚は 50 nm とした。

【0204】

20

このようにして成膜した 6 P と酸化モリブデンの複合膜 (構成例 2) の吸収スペクトルを測定した結果を、図 10 に示す。また、比較のため、6 P のみの膜 (膜厚 50 nm) の吸収スペクトルも合わせて図示する。

【0205】

(構成例 3)

まず、ガラス基板を真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、1, 4 - ビス (トリフェニルシリル) ベンゼン (略称: S i P S i) と酸化モリブデン (V I) とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、 10^{-4} Pa 程度まで減圧した状態で、共蒸着法により S i P S i と酸化モリブデンとを含む膜を形成した。この時、S i P S i と酸化モリブデンの比率が質量比で 4 : 2、4 : 1、4 : 0.5 (= S i P S i : 酸化モリブデン) となるようにそれぞれ共蒸着した。なお、膜厚は 50 nm とした。

30

【0206】

このようにして成膜した S i P S i と酸化モリブデンの複合膜 (構成例 3) の吸収スペクトルを測定した結果を、図 11 に示す。また、比較のため、S i P S i のみの膜 (膜厚 50 nm) の吸収スペクトルも合わせて図示する。

【0207】

図 9 乃至 11 において、横軸は波長 (nm) を、縦軸は吸光度 (単位なし) を表す。

【0208】

本発明の一態様の複合材料は、可視光領域に顕著な吸収ピークがほとんど見られず、透光性の高い材料であることが分かった。また、本発明の一態様の複合材料は、赤外領域 (波長が 700 nm 以上の領域) においても、顕著な吸収ピークがほとんど見られなかった。

40

【0209】

また、有機化合物と酸化モリブデンからなる本発明の一態様の複合材料の吸収スペクトルは、該有機化合物の吸収スペクトルとほとんど同じ形状を有しており、酸化モリブデンの濃度が高い膜 (具体的には、各構成例において、有機化合物と酸化モリブデンの比率が質量比で 4 : 2 の膜) においても、可視光領域から赤外領域までに顕著な吸収ピークがほとんど見られなかった。このことから、本発明の一態様の複合材料は、電荷移動相互作用による光吸収が生じにくいことが示唆された。

【実施例 2】

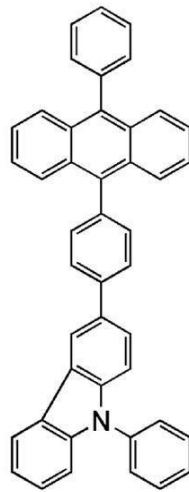
【0210】

50

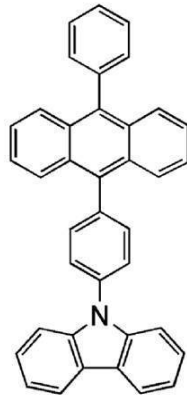
本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図18(A)を用いて説明する。本実施例で用いた材料の構造式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の構造式は省略する。

【0211】

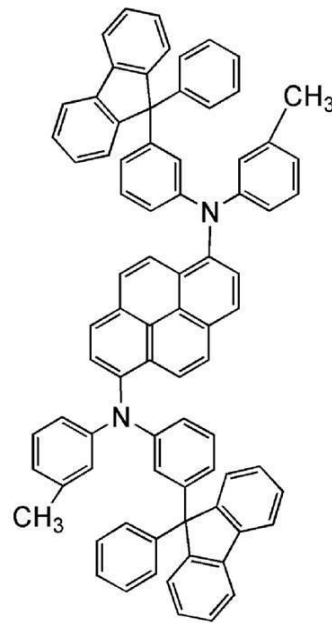
【化6】



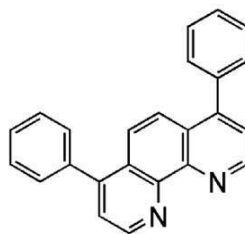
PCzPA



CzPA



1,6mMemFLPAPrn



BPhen

【0212】

以下に、本実施例の発光素子1の作製方法を示す。

【0213】

(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)膜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。

【0214】

当該基板1100上に発光素子を形成するための前処理としては、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。

【0215】

その後、 1.0×10^{-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。

【0216】

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、 1.0×10^{-4} Pa程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、mBP3P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、50nmとし、mBP3Pと酸化モリブデンの比率は、質量比で4:2(=mBP3P:酸化モリブデン)となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に

10

20

30

40

50

蒸着を行う蒸着法である。

【 0 2 1 7 】

次に、正孔注入層 1 1 1 1 上に、9 - フェニル - 3 - [4 - (1 0 - フェニル - 9 - アン
トリル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称 : P C z P A) を 1 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 1 8 】

さらに、9 - [4 - (N - カルバゾリル)] フェニル - 1 0 - フェニルアントラセン (略
称 : C z P A) 、及び N , N ' - ビス (3 - メチルフェニル) - N , N ' - ビス [3 - (9 -
フェニル - 9 H - フルオレン - 9 - イル) フェニル] - ピレン - 1 , 6 - ジアミン (略
称 : 1 , 6 m M e m F L P A P r n) 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、C z P A 、及び 1 , 6 m M e m F L P A P r n の質量比は、1
: 0 . 0 4 (= C z P A : 1 , 6 m M e m F L P A P r n) となるように調節した。また
、発光層 1 1 1 3 の膜厚は 3 0 n m とした。

【 0 2 1 9 】

次に、発光層 1 1 1 3 上に、C z P A を膜厚 1 0 n m となるように成膜し、第 1 の電子輸
送層 1 1 1 4 a を形成した。

【 0 2 2 0 】

その後、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a 上にバソフェナントロリン (略称 : 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 2 1 】

さらに、第 2 の電子輸送層 1 1 1 4 b 上に、フッ化リチウム (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 2 2 】

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 1 を作製した。

【 0 2 2 3 】

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 2 4 】

以上により得られた発光素子 1 の素子構造を表 2 に示す。

【 0 2 2 5 】

【 表 2 】

	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	ITSO 110nm	mBP3P:MoOx (=4:2) 50nm	PCzPA 10nm	CzPA: 1,6mMemFLPAPrn (=1:0.04) 30nm	CzPA 10nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

【 0 2 2 6 】

発光素子 1 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 1 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 2 7 】

発光素子 1 の電圧 - 輝度特性を図 1 2 に示す。図 1 2 において、横軸は電圧 (V) を、縦
軸は輝度 (c d / m ²) を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図 1 3 に示す。図 1 3 にお
いて、横軸は輝度 (c d / m ²) を、縦軸は電流効率 (c d / A) を表す。また、発光素
子 1 における輝度 1 0 0 0 c d / m ² のときの電圧 (V) 、C I E 色度座標 (x 、 y) 、
電流効率 (c d / A) 、外部量子効率 (%) を表 3 に示す。

【 0 2 2 8 】

10

20

30

40

【表 3】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子1	3.8	(0.14, 0.19)	7.4	5.5

【0229】

表3に示す通り、 1000 cd/m^2 の輝度の時の発光素子1のCIE色度座標は $(x, y) = (0.14, 0.19)$ であった。この結果から、発光素子1は、1,6mMemFLPArnに由来する青色発光が得られたことがわかった。

10

【0230】

図12、13から、発光素子1は、駆動電圧が低く、発光効率が高いことがわかる。

【0231】

次に、発光素子1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。

【0232】

信頼性試験は、初期輝度を 5000 cd/m^2 に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。

【0233】

図14から、発光素子1の170時間後の輝度は、初期輝度の65%を保っていた。本発明の一態様を適用した発光素子1は、長寿命であることがわかる。

20

【0234】

以上の結果から、本発明の一態様の複合材料を、発光素子の正孔注入層に用いることで、高い発光効率の素子を実現できることが示された。また、本発明の一態様の複合材料を、発光素子の正孔注入層に用いることで、駆動電圧の低い発光素子を提供できることが示された。また、本発明の一態様の複合材料を正孔注入層に用いることで、長寿命な発光素子を作製できることが示された。

【実施例3】

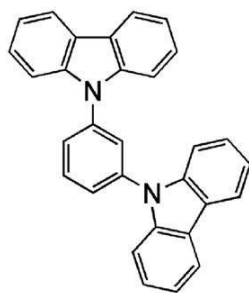
【0235】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図18(B)を用いて説明する。本実施例で用いた材料の構造式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の構造式は省略する。

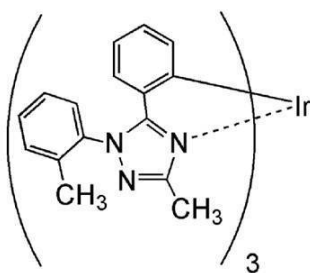
30

【0236】

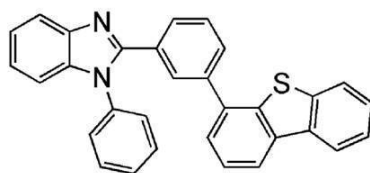
【化 7】



mCP

[Ir(Mptz1-mp)₃]

10



mDBTBI-m-II

20

【 0 2 3 7 】

以下に、本実施例の発光素子 2、3 の作製方法を示す。

【 0 2 3 8 】

(発光素子 2)

まず、ガラス基板 1100 上に、ITO 膜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。

【 0 2 3 9 】

当該基板 1100 上に発光素子を形成するための前処理としては、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。

30

【 0 2 4 0 】

その後、 1.0×10^{-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。

【 0 2 4 1 】

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、 1.0×10^{-4} Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 1101 上に、mBP3P 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、60 nm とし、mBP3P と酸化モリブデンの比率は、質量比で 4 : 2 (= mBP3P : 酸化モリブデン) と

40

【 0 2 4 2 】

次に、正孔注入層 1111 上に、1,3-ビス(N-カルbazolリル)ベンゼン (略称 : mCP) 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。

【 0 2 4 3 】

さらに、mBP3P、及びトリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1,2,4-トリアゾラト]イリジウム (III) (略称 : [Ir(Mptz1-mp)₃]) を共蒸着し、正孔輸送層 1112 上に第 1 の発光層 1113a を形成した。ここで、mBP3P 及び [Ir(Mptz1-mp)₃] の質量比は、1 : 0.08 (= mBP3P : [Ir(Mptz1-mp)₃]) となるように調節した。また、第

50

1の発光層1113aの膜厚は30nmとした。

【0244】

そして、2-[3-(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:mDBTBIIm-II)、及び[Ir(Mptz1-mp)₃]を共蒸着し、第1の発光層1113a上に第2の発光層1113bを形成した。ここで、mDBTBIIm-II及び[Ir(Mptz1-mp)₃]の質量比は、1:0.08(=mDBTBIIm-II:[Ir(Mptz1-mp)₃])となるように調節した。また、第2の発光層1113bの膜厚は10nmとした。

【0245】

次に、第2の発光層1113b上に、BPhenを膜厚15nmとなるように成膜し、電子輸送層1114を形成した。

【0246】

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

【0247】

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2を作製した。

【0248】

(発光素子3)

発光素子3の正孔輸送層1112は、mBP3Pを20nmの膜厚となるように成膜することで形成した。正孔輸送層1112以外は、発光素子2と同様に作製した。

【0249】

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。

【0250】

以上により得られた発光素子2、3の素子構造を表4に示す。

【0251】

【表4】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	第1の発光層	第2の発光層	電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子2	ITSO 110nm	mBP3P:MoOx (=4:2) 60nm	mCP 20nm	mBP3P: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.08) 30nm	mDBTBIIm-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.08) 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子3	ITSO 110nm	mBP3P:MoOx (=4:2) 60nm	mBP3P 20nm	mBP3P: Ir(Mptz1-mp) ₃ (=1:0.08) 30nm	mDBTBIIm-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.08) 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0252】

発光素子2、3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2、3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。

【0253】

発光素子2、3の電圧-輝度特性を図15に示す。図15において、横軸は電圧(V)を、縦軸は輝度(cd/m²)を表す。また、輝度-電流効率特性を図16に示す。図16において、横軸は輝度(cd/m²)を、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、発光素子2、3における輝度500cd/m²付近のときの電圧(V)、CIE色度座標(x、y)、電流効率(cd/A)、外部量子効率(%)を表5に示す。

【0254】

【表 5】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子2	6.0	(0.18, 0.29)	35	18
発光素子3	6.6	(0.18, 0.30)	30	15

【0255】

500 cd/m² 付近の輝度の時の発光素子2のCIE色度座標は(x, y) = (0.18, 0.29)であり、発光素子3のCIE色度座標は(x, y) = (0.18, 0.30)であった。この結果から、発光素子2、3は、[Ir(Mptz1-mp)₃]に由来する青色発光が得られたことがわかった。

【0256】

図15、16から、発光素子2、3は、それぞれ駆動電圧が低く、発光効率が高いことがわかる。

【0257】

次に、発光素子2、3の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図17に示す。図17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。

【0258】

信頼性試験は、初期輝度を300 cd/m²に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。

【0259】

図17から、発光素子2が初期輝度の50%を保っていたのは、81時間であり、発光素子3が初期輝度の50%を保っていたのは、47時間であった。

【0260】

青色を呈する燐光発光物質、又は該燐光発光物質と一緒に用いるホスト材料は、T1準位が高いため、バンドギャップが広く、HOMO準位が低くなりやすい。よって、発光物質への正孔注入が難しく、駆動電圧の上昇や寿命の低下が起こりやすい。本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物(ここではmBP3P)は、HOMO準位が低い材料である。正孔注入層に本発明の一態様の複合材料を用いることで、正孔輸送層に正孔を良好に注入することができる。特に、mBP3Pを、正孔注入層(本発明の一態様の複合材料を用いた層)に含まれる有機化合物、正孔輸送層の材料、及び発光層のホスト材料として用いることで、発光層まで正孔を良好に注入することができる。本発明の一態様の複合材料は、本実施例に示すように青色を呈する燐光発光の素子に好適に用いることができる。本発明の一態様の複合材料を用いることで、駆動電圧の上昇や、寿命の低下が抑制された発光素子を実現することができる。

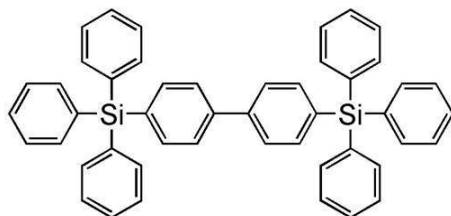
【実施例4】

【0261】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図18(A)を用いて説明する。本実施例で用いた材料の構造式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の構造式は省略する。

【0262】

【化 8】



SiBiSi

10

【 0 2 6 3 】

以下に、本実施例の発光素子 4、5 の作製方法を示す。

【 0 2 6 4 】

(発光素子 4)

まず、ガラス基板 1 1 0 0 上に、ITO 膜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 1 1 0 1 を形成した。なお、その膜厚は 1 1 0 nm とし、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。

【 0 2 6 5 】

当該基板 1 1 0 0 上に発光素子を形成するための前処理としては、基板表面を水で洗浄し、2 0 0 °C で 1 時間焼成した後、UV オゾン処理を 3 7 0 秒行った。

20

【 0 2 6 6 】

その後、 1.0×10^{-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、1 7 0 °C で 3 0 分間の真空焼成を行った後、基板 1 1 0 0 を 3 0 分程度放冷した。

【 0 2 6 7 】

次に、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された基板 1 1 0 0 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに固定し、 1.0×10^{-4} Pa 程度まで減圧した後、第 1 の電極 1 1 0 1 上に、SiPSi と酸化モリブデン (VI) を共蒸着することで、正孔注入層 1 1 1 1 を形成した。その膜厚は、5 0 nm とし、SiPSi と酸化モリブデンの比率は、質量比で 4 : 2 (= SiPSi : 酸化モリブデン) と

30

【 0 2 6 8 】

次に、正孔注入層 1 1 1 1 上に、PCzPA を 2 0 nm 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 6 9 】

さらに、CzPA 及び 1, 6 mmFLPAPrn 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、CzPA 及び 1, 6 mmFLPAPrn の質量比は、1 : 0.04 (= CzPA : 1, 6 mmFLPAPrn) となるように調節した。また、発光層 1 1 1 3 の膜厚は 3 0 nm とした。

【 0 2 7 0 】

次に、発光層 1 1 1 3 上に、CzPA を膜厚 1 0 nm となるように成膜し、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a を形成した。

40

【 0 2 7 1 】

その後、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a 上に BPhen を膜厚 1 5 nm 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 7 2 】

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

【 0 2 7 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 nm の膜

50

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。

【 0 2 7 4 】

(発光素子 5)

発光素子 5 の正孔注入層 1 1 1 1 は、4, 4' - ビス(トリフェニルシリル)ピフェニル(略称: SiBiSi)と酸化モリブデン(VI)を共蒸着することで形成した。その膜厚は、50nm とし、SiBiSi と酸化モリブデンの比率は、質量比で 4 : 2 (= SiBiSi : 酸化モリブデン)となるように調節した。正孔注入層 1 1 1 1 以外は、発光素子 4 と同様に作製した。

【 0 2 7 5 】

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 7 6 】

以上により得られた発光素子 4、5 の素子構造を表 6 に示す。

【 0 2 7 7 】

【表 6】

	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	ITSO 110nm	SiPSi:MoOx (=4:2) 50nm	PCzPA 10nm	CzPA: 1,6mMemFLPAPrn (=1:0.04) 30nm	CzPA 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子 5	ITSO 110nm	SiBiSi:MoOx (=4:2) 50nm	PCzPA 10nm	CzPA: 1,6mMemFLPAPrn (=1:0.04) 30nm	CzPA 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【 0 2 7 8 】

発光素子 4、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 4、5 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 7 9 】

発光素子 4、5 の電圧 - 輝度特性を図 19 に示す。図 19 において、横軸は電圧(V)を、縦軸は輝度(cd/m^2)を表す。また、輝度 - 電流効率特性を図 20 に示す。図 20 において、横軸は輝度(cd/m^2)を、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、発光素子 4、5 における輝度 $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ のときの電圧(V)、CIE 色度座標(x、y)、電流効率(cd/A)、外部量子効率(%)を表 7 に示す。

【 0 2 8 0 】

【表 7】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子4	6.6	(0.14, 0.17)	7.4	3.5
発光素子5	5.5	(0.14, 0.16)	7.3	4.2

【 0 2 8 1 】

$1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ の輝度の時の発光素子 4 の CIE 色度座標は(x, y) = (0.14, 0.17)であり、発光素子 5 の CIE 色度座標は(x, y) = (0.14, 0.16)であった。この結果から、発光素子 4、5 は、1, 6mMemFLPAPrn に由来する青色発光が得られたことがわかった。

【 0 2 8 2 】

図 19、20 から、発光素子 4、5 は、それぞれ駆動電圧が低く、発光効率が高いことが

わかる。また、ビフェニレン基を有する Si-Bi-Si を用いた発光素子 5 は、駆動電圧が特に低いことがわかる。

【 0 2 8 3 】

以上の結果から、本発明の一態様の複合材料を、発光素子の正孔注入層に用いることで、高い発光効率の素子を実現できることが示された。また、本発明の一態様の複合材料を、発光素子の正孔注入層に用いることで、駆動電圧の低い発光素子を提供できることが示された。

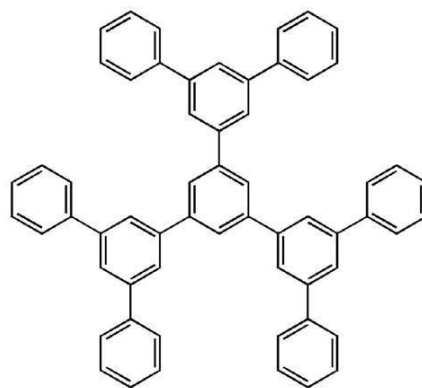
【実施例 5】

【 0 2 8 4 】

本実施例では、本発明の一態様の複合材料に用いることができる有機化合物である、1, 3, 5 - トリス [(3, 5 - ジフェニル) フェニル] ベンゼン (略称 : mTP3P) について説明する。 mTP3P の構造式を以下に示す。

【 0 2 8 5 】

【化 9】



mTP3P

【 0 2 8 6 】

mTP3P のトルエン溶液の吸収スペクトルを図 2 1 (A) に、発光スペクトルを図 2 1 (B) にそれぞれ示す。また、 mTP3P の薄膜の吸収スペクトルを図 2 2 (A) に、発光スペクトルを図 2 2 (B) にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、V 5 5 0 型) を用いた。溶液は石英セルに入れて測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図 2 1 (A)、図 2 2 (A) において横軸は波長 (nm)、縦軸は吸収強度 (任意単位) を表す。図 2 1 (B)、図 2 2 (B) において横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。トルエン溶液の場合では、発光波長のピークは、295 nm 、304 nm 、及び 347 nm (励起波長 385 nm) であった。また、薄膜の場合では、発光波長のピークは 356 nm (励起波長 271 nm) であった。

【 0 2 8 7 】

図 2 1 (A) 及び図 2 2 (A) からわかるように、 mTP3P のトルエン溶液の吸収スペクトル及び薄膜の吸収スペクトルは、可視光領域に吸収がほとんど見られない。溶液、薄膜ともに、可視光領域に吸収がほとんど見られないことから、単膜、及び他の有機化合物との混合膜のどちらにおいても、該有機化合物は好適であることがわかった。また、図 2 1 (B) 及び図 2 2 (B) からわかるように、 mTP3P は、発光ピークが短波長側にある。以上のことから、 mTP3P は、本発明の一態様の複合材料や、正孔輸送層の材料、又は発光層 (特にホスト材料) に、好適に用いることができる。

【 0 2 8 8 】

mTP3P は、ガラス転移点 (T_g) が 132 と高く、膜質が安定している。このこと

からも、mTP3Pは、本発明の一態様の複合材料に好適に用いることができる。

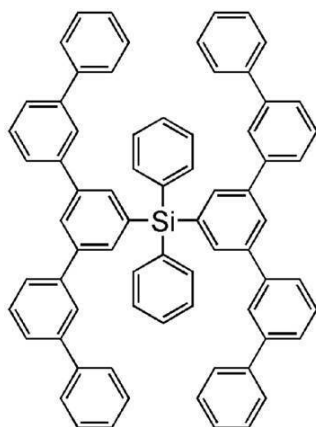
【実施例6】

【0289】

本実施例では、本発明の一態様の複合材料に用いることができる有機化合物である、ビス[3,5-ジ(ピフェニル-3-イル)フェニル]ジフェニルシラン(略称:mBP22PSi)について説明する。mBP22PSiの構造式を以下に示す。

【0290】

【化10】



mBP22PSi

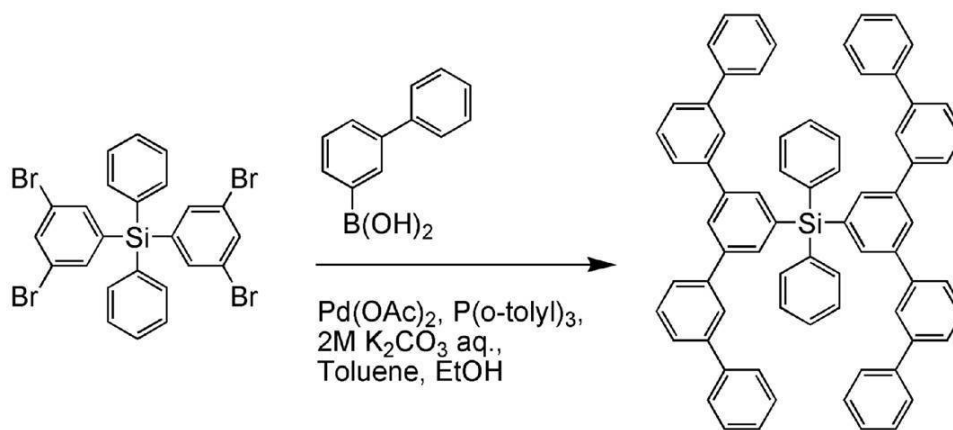
【0291】

[mBP22PSiの合成法]

mBP22PSiの合成スキームを以下に示す。

【0292】

【化11】



mBP22PSi

【0293】

100ml三口フラスコに、ジフェニル-ジ(3,5-ジブロモベンゼン)シラン1.4g(2.2mmol)、3-ピフェニルボロン酸1.9g(9.7mmol)、酢酸パラジウム(II)110mg(0.5mmol)、トリ(オルト-トリル)ホスフィン290mg(1.0mmol)を入れ窒素置換した。トルエン20mL、エタノール2mL、2.0M炭酸カリウム水溶液10mL(炭酸カリウム2.7g)を加え、減圧下で撹拌することにより脱気した。この混合物を窒素気流下85℃で14時間撹拌した。続けて、3-ピフェニルボロン酸0.4g(2.2mmol)、トリ(オルト-トリル)ホスフィン290mg(1.0mmol)、酢酸パラジウム110mg(0.5mmol)を加え窒

素気流下 85℃ でさらに 13 時間攪拌した。攪拌後、混合物をセライト（和光純薬工業株式会社、カタログ番号：531-16855）により濾過した。濾液に水を加えトルエンで抽出し、得られた有機層を飽和食塩水で洗浄し硫酸マグネシウムを加えて水分を吸着させた。得られた混合物を自然濾過し、濃縮して得た黄色油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：トルエン = 3：1）により精製して白色固体を得た。白色固体にメタノールを加え超音波を照射し得られた懸濁液を吸引濾過し、目的物である白色固体を 1.14 g 得た（収率 56%）。

【0294】

核磁気共鳴法（NMR）によって、この化合物が目的物である mBP22PSi であることを確認した。

10

【0295】

得られた物質の ^1H NMR データを以下に示す。

^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): (ppm) = 7.30 - 7.59 (m, 38H), 7.74 - 7.79 (m, 8H), 7.95 (d, $J = 1.5 \text{ Hz}$, 4H), 7.97 (d, $J = 1.5 \text{ Hz}$, 2H)。

【0296】

また、 ^1H NMR チャートを図 23 に示す。なお、図 23 (B) は、図 23 (A) における 6.00 ppm ~ 10.00 ppm の範囲を拡大して表したチャートである。

【0297】

また、mBP22PSi のトルエン溶液の吸収スペクトルを図 24 (A) に、発光スペクトルを図 24 (B) にそれぞれ示す。また、mBP22PSi の薄膜の吸収スペクトルを図 25 (A) に、発光スペクトルを図 25 (B) にそれぞれ示す。吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計（日本分光株式会社製、V550 型）を用いた。溶液は石英セルに入れて測定を行った。吸収スペクトルに関して、溶液については石英セルにトルエンのみを入れて測定した吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示し、薄膜については石英基板の吸収スペクトルを差し引いた吸収スペクトルを示した。図 24 (A)、図 25 (A) において横軸は波長 (nm)、縦軸は吸収強度（任意単位）を表す。図 24 (B)、図 25 (B) において横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。トルエン溶液の場合では、発光波長のピークは、336 nm（励起波長 287 nm）であった。また、薄膜の場合では、発光波長のピークは 338 nm、342 nm、及び 348 nm（励起波長 256 nm）であった。

20

30

【0298】

図 24 (A) 及び図 25 (A) からわかるように、mBP22PSi のトルエン溶液の吸収スペクトル及び薄膜の吸収スペクトルは、可視光領域に吸収がほとんど見られない。溶液、薄膜ともに、可視光領域に吸収がほとんど見られないことから、単膜、及び他の有機化合物との混合膜のどちらにおいても、該有機化合物は好適であることがわかった。また、図 24 (B) 及び図 25 (B) からわかるように、mBP22PSi は、発光ピークが短波長側にある。本実施例の結果から、mBP22PSi は、本発明の一態様の複合材料や、正孔輸送層の材料、又は発光層（特にホスト材料）に、好適に用いることができることがわかった。

40

【実施例 7】

【0299】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図 18 (B) 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、構造式は省略する。

【0300】

以下に、本実施例の発光素子 6 の作製方法を示す。

【0301】

（発光素子 6）

まず、ガラス基板 1100 上に、ITO 膜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

50

2 mm × 2 mmとした。

【0302】

当該基板1100上に発光素子を形成するための前処理としては、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。

【0303】

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。

【0304】

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、mBP22PSi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、60 nmとし、mBP22PSiと酸化モリブデンの比率は、質量比で4:2(=mBP22PSi:酸化モリブデン)となるように調節した。

10

【0305】

次に、正孔注入層1111上に、mBP22PSi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。

【0306】

さらに、mBP22PSi、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ を共蒸着し、正孔輸送層1112上に第1の発光層1113aを形成した。ここで、mBP22PSi、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ の質量比は、1:0.06(=mBP22PSi: $[Ir(Mptz1-mp)_3]$)となるように調節した。また、第1の発光層1113aの膜厚は30 nmとした。

20

【0307】

そして、mDBTBIm-II、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ を共蒸着し、第1の発光層1113a上に第2の発光層1113bを形成した。ここで、mDBTBIm-II、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ の質量比は、1:0.06(=mDBTBIm-II: $[Ir(Mptz1-mp)_3]$)となるように調節した。また、第2の発光層1113bの膜厚は10 nmとした。

30

【0308】

次に、第2の発光層1113b上に、BPhenを膜厚15 nmとなるように成膜し、電子輸送層1114を形成した。

【0309】

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

【0310】

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200 nmの膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子6を作製した。

【0311】

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。

40

【0312】

以上により得られた発光素子6の素子構造を表8に示す。

【0313】

【表 8】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	第1の発光層	第2の発光層	電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子6	ITO 110nm	mBP22PSi:MoOx (=4:2) 60nm	mBP22PSi 20nm	mBP22PSi: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 30nm	mDBTBI-m-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0314】

発光素子6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6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

【0315】

発光素子6の輝度-電流効率特性を図26に示す。図26において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、輝度-色度座標特性を図27に示す。図27において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は色度座標（x座標、又はy座標）を表す。また、輝度-外部量子効率特性を図28に示す。図28において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は外部量子効率（%）を表す。また、発光素子6の発光スペクトルを図29に示す。図29において、横軸は波長（nm）を、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。また、発光素子6における輝度800cd/m²のときの電圧（V）、CIE色度座標（x、y）、電流効率（cd/A）、外部量子効率（%）を表9に示す。

20

【0316】

【表 9】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子6	6.6	(0.18, 0.29)	35	18

【0317】

800cd/m²の輝度の時の発光素子6のCIE色度座標は（x，y）＝（0.18，0.29）であった。この結果から、発光素子6は、[Ir(Mptz1-mp)₃]に由来する青色発光が得られたことがわかった。

30

【0318】

mBP22PSiは、高いT1準位を有しており、可視光領域の発光（燐光又は蛍光）を呈する発光材料（ゲスト材料）を分散するホスト材料として用いることができるとわかった。

【0319】

図26及び図28から、発光素子6は、発光効率が高いことがわかる。

【0320】

また、図27から、発光素子6は、低輝度から高輝度まで、色変化がほとんど見られなかった。このことから、発光素子6は、キャリアバランスの良好な素子であると言える。

40

【0321】

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30に示す。図30において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度（%）を示し、横軸は素子の駆動時間（h）を示す。

【0322】

信頼性試験は、初期輝度を300cd/m²に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。

【0323】

図30から、発光素子6が初期輝度の50%を保っていたのは、72時間であった。

【0324】

50

青色を呈する燐光発光物質、又は該燐光発光物質と一緒に用いるホスト材料は、 T_1 準位が高いため、バンドギャップが広く、 $HOMO$ 準位が低くなりやすい。よって、発光物質への正孔注入が難しく、駆動電圧の上昇や寿命の低下が起こりやすい。本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物（ここでは $mBP22PSi$ ）は、 $HOMO$ 準位が低い材料である。正孔注入層に本発明の一態様の複合材料を用いることで、正孔輸送層に正孔を良好に注入することができる。特に、 $mBP22PSi$ を、正孔注入層（本発明の一態様の複合材料を用いた層）に含まれる有機化合物、正孔輸送層の材料、及び発光層のホスト材料として用いることで、第1の電極から発光層まで正孔を良好に注入することができる。また、同一の材料を複数の層に用いることができるため、合成コストを抑制することができる。本発明の一態様の複合材料は、本実施例に示すように青色を呈する燐光発光の素子に好適に用いることができる。本発明の一態様の複合材料を用いることで、駆動電圧の上昇や、寿命の低下が抑制された発光素子を実現することができる。

10

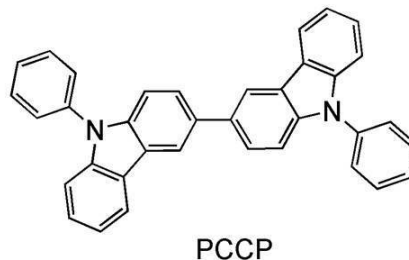
【実施例8】

【0325】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図18(B)を用いて説明する。本実施例で用いた材料の構造式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の構造式は省略する。

【0326】

【化12】



20

【0327】

以下に、本実施例の発光素子7乃至発光素子9の作製方法を示す。

【0328】

(発光素子7)

発光素子7は、正孔輸送層1112以外は、実施例7の発光素子6と同様の材料、方法及び条件を適用して作製した。

30

【0329】

発光素子7の正孔輸送層1112は、 mCP を20nmの膜厚となるように成膜することで形成した。

【0330】

(発光素子8)

発光素子8は、第1の発光層1113a以外は、上記発光素子7と同様の材料、方法及び条件を適用して作製した。

40

【0331】

発光素子8の第1の発光層1113aは、 $mBP22PSi$ 、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： $PCCP$)、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ を共蒸着することで形成した。ここで、 $mBP22PSi$ 、 $PCCP$ 、及び $[Ir(Mptz1-mp)_3]$ の質量比は、1:0.25:0.06(= $mBP22PSi$: $PCCP$: $[Ir(Mptz1-mp)_3]$)となるように調節した。また、第1の発光層1113aの膜厚は30nmとした。

【0332】

(発光素子9)

発光素子9は、電子輸送層1114以外は、上記発光素子8と同様の材料、方法及び条件

50

を適用して作製した。

【 0 3 3 3 】

発光素子 9 の電子輸送層 1 1 1 4 は、m D B T B I m - I I を膜厚 1 5 n m となるように成膜することで形成した。

【 0 3 3 4 】

以上により得られた発光素子 7 乃至発光素子 9 の素子構造を表 1 0 に示す。

【 0 3 3 5 】

【表 1 0】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	第1の発光層	第2の発光層	電子輸送層	電子注入層	第2の電極
発光素子 7	ITO 110nm	mBP22PSi: MoO _x (=4:2) 60nm	mCP 20nm	mBP22PSi: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 30nm	mDBTBIm-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子 8	ITO 110nm	mBP22PSi: MoO _x (=4:2) 60nm	mCP 20nm	mBP22PSi: PCCP: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.25:0.06) 30nm	mDBTBIm-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
発光素子 9	ITO 110nm	mBP22PSi: MoO _x (=4:2) 60nm	mCP 20nm	mBP22PSi: PCCP: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.25:0.06) 30nm	mDBTBIm-II: [Ir(Mptz1-mp) ₃] (=1:0.06) 10nm	mDBTBIm-II 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【 0 3 3 6 】

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、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温（25℃）に保たれた雰囲気で行った。

【 0 3 3 7 】

発光素子 7 乃至発光素子 9 の輝度 - 電流効率特性を図 3 1 に示す。図 3 1 において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は電流効率（cd/A）を表す。また、輝度 - 色度座標特性を図 3 2 に示す。図 3 2 において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は色度座標（x 座標、又は y 座標）を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 3 3 に示す。図 3 3 において、横軸は輝度（cd/m²）を、縦軸は外部量子効率（%）を表す。また、発光素子 7 乃至発光素子 9 の発光スペクトルを図 3 4 に示す。図 3 4 において、横軸は波長（nm）を、縦軸は発光強度（任意単位）を表す。また、発光素子 7 乃至発光素子 9 における輝度 700 cd/m² 付近のときの電圧（V）、CIE 色度座標（x、y）、電流効率（cd/A）、外部量子効率（%）を表 1 1 に示す。

【 0 3 3 8 】

【表 1 1】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子7	6.0	(0.19, 0.30)	37	18
発光素子8	5.1	(0.17, 0.27)	23	12
発光素子9	4.5	(0.18, 0.28)	32	16

【 0 3 3 9 】

700 cd/m² 付近の輝度の時の発光素子 7 の CIE 色度座標は（x，y）＝（0.19，0.30）であり、発光素子 8 の CIE 色度座標は（x，y）＝（0.17，0.27）であり、発光素子 9 の CIE 色度座標は（x，y）＝（0.18，0.28）であっ

た。この結果から、発光素子 7 乃至発光素子 9 は、 $[\text{Ir}(\text{Mptz1-mp})_3]$ に由来する青色発光が得られたことがわかった。

【0340】

図 3 1 及び図 3 3 から、発光素子 7 乃至発光素子 9 は、発光効率が高いことがわかる。

【0341】

また、図 3 2 から、発光素子 7 乃至発光素子 9 は、低輝度から高輝度まで、色変化がほとんど見られなかった。このことから、発光素子 7 乃至発光素子 9 は、キャリアバランスの良好な素子であると言える。

【0342】

また、表 1 1 から、発光素子 8 及び発光素子 9 は、発光素子 7 に比べて、駆動電圧が低いことがわかる。これは、発光素子 8 及び発光素子 9 の第 1 の発光層に正孔輸送性の高い PCCP を含むことで、正孔が効率良く第 1 の発光層に注入されているためであると考えられる。

10

【0343】

正孔注入層に用いた有機化合物（ここでは、mBP22PSi）を第 1 の発光層に含むことで、第 1 の電極から第 1 の発光層まで正孔を良好に注入することができる。さらに、発光材料（ゲスト材料、ここでは、 $[\text{Ir}(\text{Mptz1-mp})_3]$ ）の HOMO 準位に比較的近い HOMO 準位を有し、正孔輸送性が高い補助ドーパント材料（ここでは、PCCP）を第 1 の発光層に含むことで、駆動電圧の低い素子を実現することができる。具体的には、ゲスト材料の HOMO 準位と補助ドーパント材料の HOMO 準位の差は、0.2 eV 以内であることが好ましい。

20

【0344】

また、表 1 1 より、発光素子 7 は、発光素子 8 及び発光素子 9 に比べて、電流効率が高いことがわかる。これは、本発明の一態様の有機化合物である mBP22PSi の T1 準位が高く、第 1 の発光層で生成した励起エネルギーが効率良く $[\text{Ir}(\text{Mptz1-mp})_3]$ に移動しているためと考えられる。本発明の一態様の有機化合物である mBP22PSi は、高い（絶対値が小さい）LUMO 準位と、低い（絶対値が大きい）HOMO 準位を有するため、第 1 の発光層に注入されたキャリア（正孔及び電子）を層内にトラップし、効率良く $[\text{Ir}(\text{Mptz1-mp})_3]$ に移動させることで、キャリアのロスが抑制され、再結合確率が高くなったと考えられる。

30

【0345】

次に、発光素子 7 乃至発光素子 9 の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 3 5 に示す。図 3 5 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。

【0346】

信頼性試験は、初期輝度を 300 cd/m^2 に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。

【0347】

図 3 5 から、発光素子 7 が初期輝度の 50% を保っていたのは、93 時間であり、発光素子 8 が初期輝度の 50% を保っていたのは、44 時間であり、発光素子 9 が初期輝度の 50% を保っていたのは、110 時間であった。

40

【0348】

青色を呈する燐光発光物質、又は該燐光発光物質と一緒に用いるホスト材料は、T1 準位が高いため、バンドギャップが広く、HOMO 準位が低くなりやすい。よって、発光物質への正孔注入が難しく、駆動電圧の上昇や寿命の低下が起こりやすい。本発明の一態様の複合材料に用いる有機化合物（ここでは mBP22PSi）は、HOMO 準位が低い材料である。正孔注入層に本発明の一態様の複合材料を用いることで、正孔輸送層に正孔を良好に注入することができる。特に、mBP22PSi を、正孔注入層（複合材料に含まれる有機化合物）、正孔輸送層、及び発光層のホスト材料として用いることで、発光層まで正孔を良好に注入することができる。本発明の一態様の複合材料は、本実施例に示すよう

50

に青色を呈する燐光発光の素子に用いることができる。本発明の一態様の複合材料を用いることで、駆動電圧の上昇や、寿命の低下が抑制された発光素子を実現することができる。

【実施例 9】

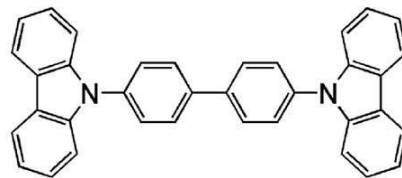
【0349】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子について、図18(A)を用いて説明する。本実施例で用いた材料の構造式を以下に示す。なお、先の実施例で用いた材料の構造式は省略する。

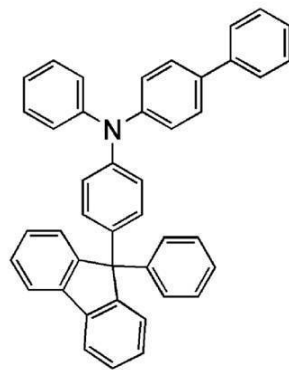
【0350】

【化13】

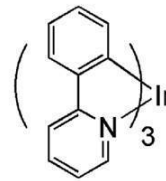
10



CBP



BPAFLP



Ir(ppy)₃

20

30

【0351】

以下に、本実施例の発光素子10の作製方法を示す。

【0352】

(発光素子10)

まず、ガラス基板1100上に、ITO膜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。

【0353】

当該基板1100上に発光素子を形成するための前処理としては、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

【0354】

その後、 1.0×10^{-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。

【0355】

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、 1.0×10^{-4} Pa程度まで減圧した後、第1の電極1101上に、4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ピフェニル(略称:CBP)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、60nmとし、CBPと酸化モリブデンの比率は、質量

50

比で 4 : 2 (= C B P : 酸化モリブデン) となるように調節した。

【 0 3 5 6 】

次に、正孔注入層 1 1 1 1 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 : 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 3 5 7 】

さらに、m B P 2 2 P S i、及びトリス (2 - フェニルピリジナト - N , C ² ') イリジウム (I I I) (略称 : [I r (p p y) ₃]) 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、m B P 2 2 P S i、及び [I r (p p y) ₃] の質量比は、1 : 0 . 0 6 (= m B P 2 2 P S i : [I r (p p y) ₃]) 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。

10

【 0 3 5 8 】

次に、発光層 1 1 1 3 上に、m D B T B I m - I I を膜厚 1 5 n m となるように成膜し、第 1 の電子輸送層 1 1 1 4 a を形成した。

【 0 3 5 9 】

その後、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 3 6 0 】

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。

20

【 0 3 6 1 】

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 1 0 を作製した。

【 0 3 6 2 】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

【 0 3 6 3 】

以上により得られた発光素子 1 0 の素子構造を表 1 2 に示す。

【 0 3 6 4 】

【 表 1 2 】

	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 10	ITO 110nm	CBP:MoOx (=4:2) 60nm	BPAFLP 20nm	mBP22PSi :[Ir(ppy) ₃] (=1:0.06) 40nm	mDBTBIIm-II 15nm	BPhen 20nm	LiF 1nm	Al 200nm

30

【 0 3 6 5 】

発光素子 1 0 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 1 0 の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温 (2 5 ° C に保たれた雰囲気) で行った。

【 0 3 6 6 】

40

発光素子 1 0 の輝度 - 電流効率特性を図 3 6 に示す。図 3 6 において、横軸は輝度 (c d / m ²) を、縦軸は電流効率 (c d / A) を表す。また、輝度 - 色度座標特性を図 3 7 に示す。図 3 7 において、横軸は輝度 (c d / m ²) を、縦軸は色度座標 (x 座標、又は y 座標) を表す。また、輝度 - 外部量子効率特性を図 3 8 に示す。図 3 8 において、横軸は輝度 (c d / m ²) を、縦軸は外部量子効率 (%) を表す。また、発光素子 1 0 の発光スペクトルを図 3 9 に示す。図 3 9 において、横軸は波長 (n m) を、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。また、発光素子 1 0 における輝度 1 0 0 0 c d / m ² のときの電圧 (V)、C I E 色度座標 (x、y)、電流効率 (c d / A)、外部量子効率 (%) を表 1 3 に示す。

【 0 3 6 7 】

50

【表 13】

	電圧(V)	色度 (x, y)	電流効率 (cd/A)	外部 量子効率(%)
発光素子10	5.2	(0.32, 0.62)	58	17

【0368】

表13に示す通り、 1000 cd/m^2 の輝度の時の発光素子10のCIE色度座標は(x, y) = (0.32, 0.62)であった。この結果から、発光素子10は、 $[\text{Ir}(\text{ppy})_3]$ に由来する緑色発光が得られたことがわかった。

10

【0369】

mBP22PSiは、高いT1準位を有しており、緑色より長波長の燐光発光材料、可視光領域の蛍光を呈する発光材料(ゲスト材料)を分散するホスト材料として用いることができることがわかった。

【0370】

図36及び図38から、発光素子10は、発光効率が高いことがわかる。

【0371】

また、図37から、発光素子10は、低輝度から高輝度まで、色変化がほとんど見られなかった。このことから、発光素子10は、キャリアバランスの良好な素子であると言える。

20

【0372】

次に、発光素子10の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図40に示す。図40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。

【0373】

信頼性試験は、初期輝度を 1000 cd/m^2 に設定し、電流密度一定の条件で発光素子10を駆動した。

【0374】

図40から、発光素子10は、250時間後の輝度が、初期輝度の84%であった。

【0375】

30

以上の結果から、本発明の一態様の有機化合物であるmBP22PSiは、発光層のホスト材料としても好適に用いることができると示された。

【0376】

(参考例1)

上記実施例で用いたトリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1,2,4-トリアゾラト]イリジウム(III)(略称:[Ir(Mptz1-mp)]₃)を合成する例を示す。

【0377】

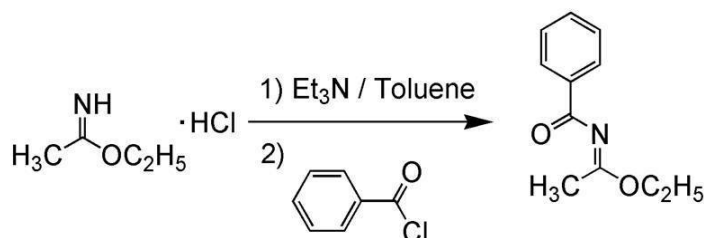
[ステップ1:N-(1-エトキシエチリデン)ベンズアミドの合成]

まず、アセトイミド酸エチル塩酸塩15.5g、トルエン150mL、トリエチルアミン(Et₃N)31.9gを500mL三口フラスコに入れ、室温で10分間攪拌した。この混合物にベンゾイルクロリド17.7gとトルエン30mLの混合溶液を50mL滴下ロートより滴下し、室温で24時間攪拌した。所定時間経過後、反応混合物を吸引濾過し、固体をトルエンで洗浄した。得られた濾液を、濃縮してN-(1-エトキシエチリデン)ベンズアミドを得た(赤色油状物、収率82%)。ステップ1の合成スキームを以下に示す。

40

【0378】

【化 1 4】



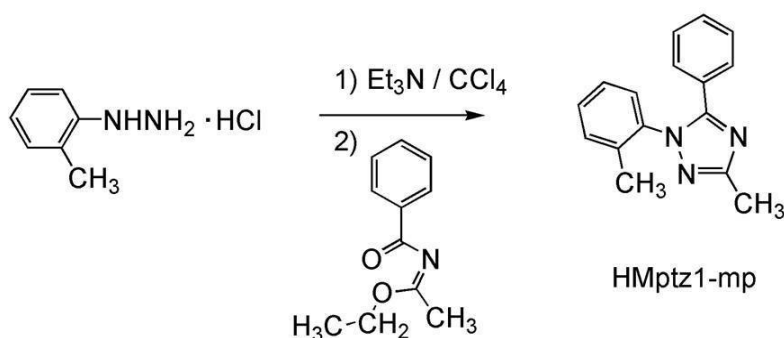
【 0 3 7 9】

[ステップ2: 3 - メチル - 1 - (2 - メチルフェニル) - 5 - フェニル - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール (略称 : H M p t z 1 - m p) の合成]

次に、o - トリルヒドラジン塩酸塩 8 . 6 8 g、四塩化炭素 1 0 0 m L、トリエチルアミン (E t ₃ N) 3 5 m L を 3 0 0 m L ナスフラスコに入れ、室温で 1 時間撹拌した。所定時間経過後、この混合物に上記ステップ 1 で得られた N - (1 - エトキシエチリデン) ベンズアミド 8 . 7 2 g を加えて室温で 2 4 時間撹拌した。所定時間経過後、反応混合物に水を加え、水層から有機物をクロロホルムで抽出した。抽出溶液及び有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥させた。得られた混合物を自然濾過し、濾液を濃縮して油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。展開溶媒にはジクロロメタンを用いた。得られたフラクションを濃縮して、3 - メチル - 1 - (2 - メチルフェニル) - 5 - フェニル - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール (略称 : H M p t z 1 - m p) を得た (橙色油状物、収率 8 4 %)。ステップ 2 の合成スキームを以下に示す。

【 0 3 8 0】

【化 1 5】



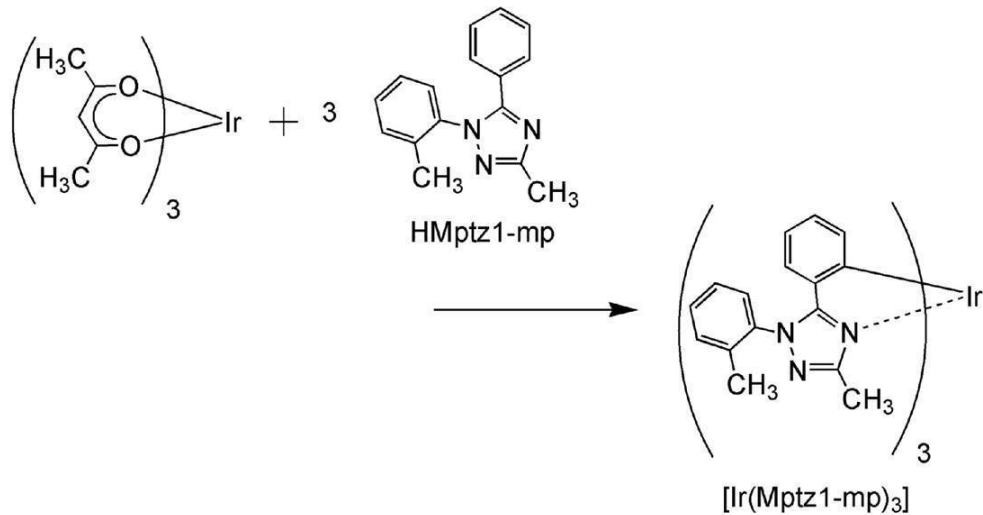
【 0 3 8 1】

[ステップ3; トリス [3 - メチル - 1 - (2 - メチルフェニル) - 5 - フェニル - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾラト] イリジウム (I I I) (略称 : [I r (M p t z 1 - m p) ₃]) の合成]

次に、上記ステップ 2 で得られた配位子 H M p t z 1 - m p 2 . 7 1 g、トリス (アセチルアセトナト) イリジウム (I I I) 1 . 0 6 g を、三方コックを付けた反応容器に入れた。この反応容器をアルゴン置換し、2 5 0 °C にて 4 8 時間加熱し、反応させた。この反応混合物をジクロロメタンに溶解し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。展開溶媒には、まず、ジクロロメタン用い、次いでジクロロメタン : 酢酸エチル = 1 0 : 1 (体積比) の混合溶媒を用いた。得られたフラクションを濃縮して固体を得た。この固体を酢酸エチルで洗浄し、次いで、ジクロロメタンと酢酸エチルの混合溶媒にて再結晶し、有機金属錯体 [I r (M p t z 1 - m p) ₃] を得た (黄色粉末、収率 3 5 %)。ステップ 3 の合成スキームを以下に示す。

【 0 3 8 2】

【化 16】



10

【0383】

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 (^1H NMR) による分析結果を下記に示す。この結果から、 $[\text{Ir}(\text{Mptz1-mp})_3]$ が得られたことがわかった。

【0384】

20

得られた物質の ^1H NMR データを以下に示す。

^1H NMR. (CDCl_3): 1.94 - 2.21 (m, 18H), 6.47 - 6.76 (m, 12H), 7.29 - 7.52 (m, 12H)。

【符号の説明】

【0385】

- 100 基板
- 101 第1の電極
- 102 EL層
- 108 第2の電極
- 401 ソース側駆動回路
- 402 画素部
- 403 ゲート側駆動回路
- 404 封止基板
- 405 シール材
- 407 空間
- 408 引き回し配線
- 409 FPC (フレキシブルプリントサーキット)
- 410 素子基板
- 411 スwitching用 TFT
- 412 電流制御用 TFT
- 413 第1の電極
- 414 絶縁物
- 416 EL層
- 417 第2の電極
- 418 発光素子
- 423 nチャネル型 TFT
- 424 pチャネル型 TFT
- 501 基板
- 502 第1の電極
- 503 第2の電極

30

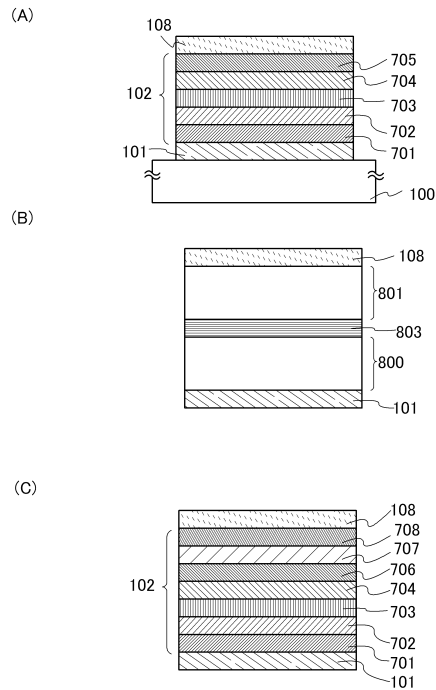
40

50

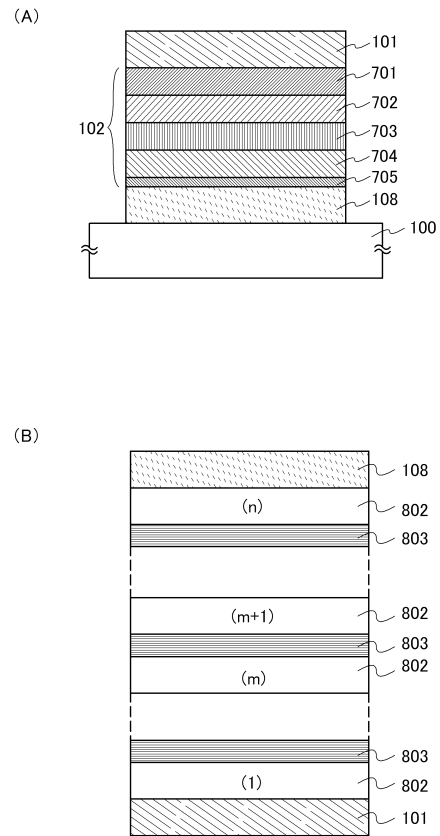
5 0 4	E L 層	
5 0 5	絶縁層	
5 0 6	隔壁層	
7 0 1	正孔注入層	
7 0 2	正孔輸送層	
7 0 3	発光層	
7 0 4	電子輸送層	
7 0 5	電子注入層	
7 0 6	電子注入バッファ層	
7 0 7	電子リレー層	10
7 0 8	複合材料層	
8 0 0	第 1 の E L 層	
8 0 1	第 2 の E L 層	
8 0 2	E L 層	
8 0 3	電荷発生層	
8 1 1	照明装置	
8 1 2	照明装置	
8 1 3	卓上照明器具	
9 0 0	発光装置	
9 0 1	第 1 の基板	20
9 0 2	第 2 の基板	
9 0 3	第 1 の端子	
9 0 4	第 2 の端子	
9 0 8	発光素子	
9 0 9	絶縁層	
9 1 0	補助配線	
9 1 1	乾燥剤	
9 1 2	シール材	
9 1 3 a	光取り出し構造	
9 1 3 b	光取り出し構造	30
1 1 0 0	基板	
1 1 0 1	第 1 の電極	
1 1 0 3	第 2 の電極	
1 1 1 1	正孔注入層	
1 1 1 2	正孔輸送層	
1 1 1 3	発光層	
1 1 1 3 a	第 1 の発光層	
1 1 1 3 b	第 2 の発光層	
1 1 1 4	電子輸送層	
1 1 1 4 a	第 1 の電子輸送層	40
1 1 1 4 b	第 2 の電子輸送層	
1 1 1 5	電子注入層	
7 1 0 0	テレビジョン装置	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 3	表示部	
7 1 0 5	スタンド	
7 1 0 7	表示部	
7 1 0 9	操作キー	
7 1 1 0	リモコン操作機	
7 2 0 1	本体	50

7 2 0 2	筐体	
7 2 0 3	表示部	
7 2 0 4	キーボード	
7 2 0 5	外部接続ポート	
7 2 0 6	ポインティングデバイス	
7 3 0 1	筐体	
7 3 0 2	筐体	
7 3 0 3	連結部	
7 3 0 4	表示部	
7 3 0 5	表示部	10
7 3 0 6	スピーカ部	
7 3 0 7	記録媒体挿入部	
7 3 0 8	L E D ランプ	
7 3 0 9	操作キー	
7 3 1 0	接続端子	
7 3 1 1	センサ	
7 3 1 2	マイクロフォン	
7 4 0 0	携帯電話機	
7 4 0 1	筐体	
7 4 0 2	表示部	20
7 4 0 3	操作ボタン	
7 4 0 4	外部接続ポート	
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
7 5 0 1	照明部	
7 5 0 2	傘	
7 5 0 3	可変アーム	
7 5 0 4	支柱	
7 5 0 5	台	
7 5 0 6	電源	30

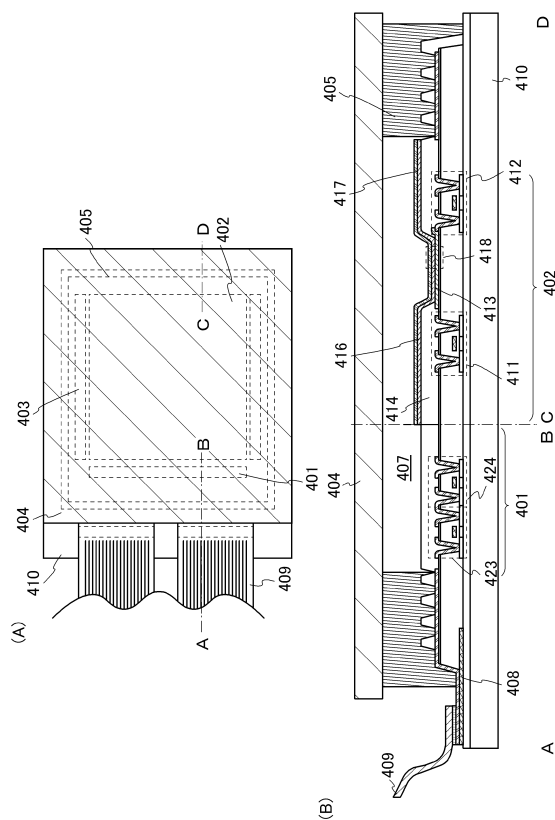
【図 1】



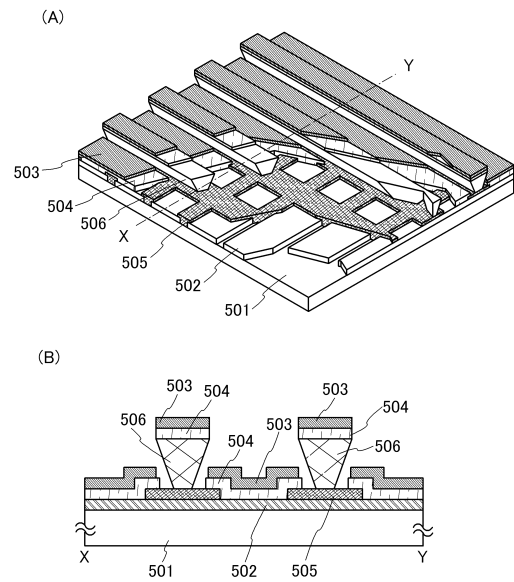
【図 2】



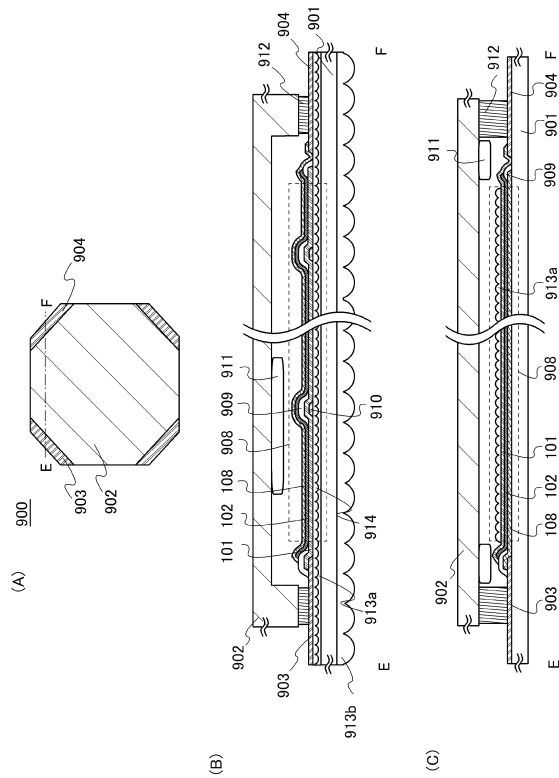
【図 3】



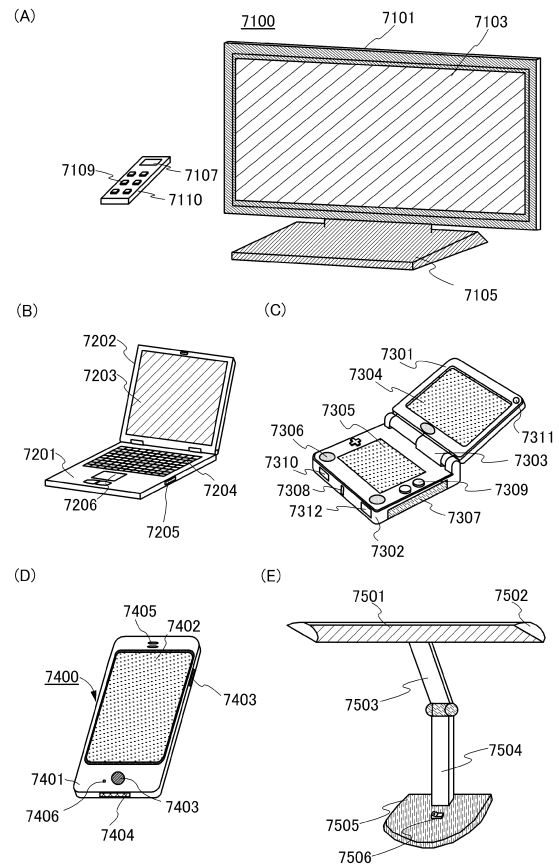
【図 4】



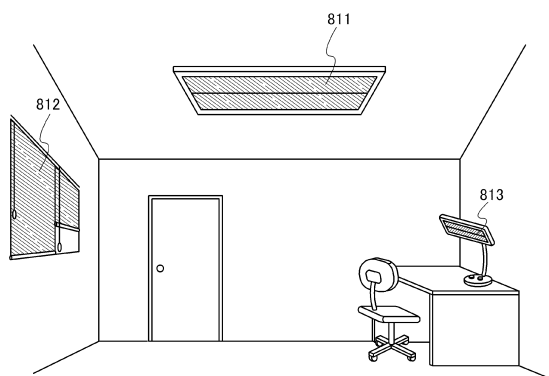
【 図 5 】



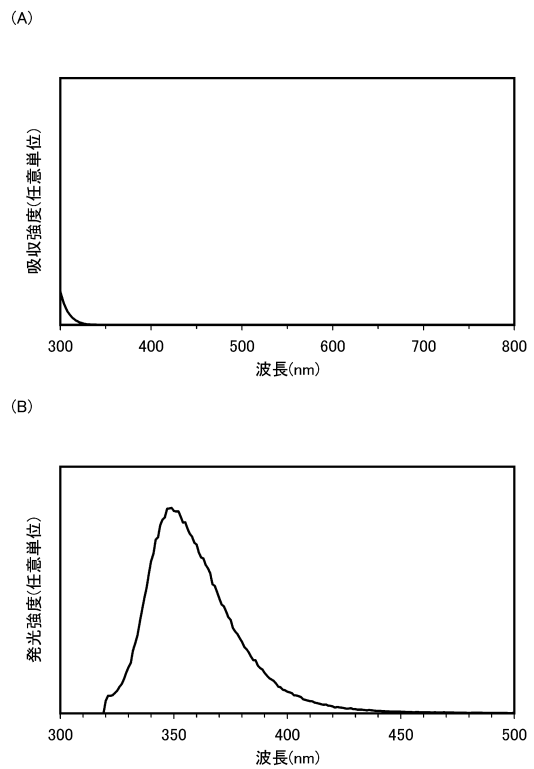
【 図 6 】



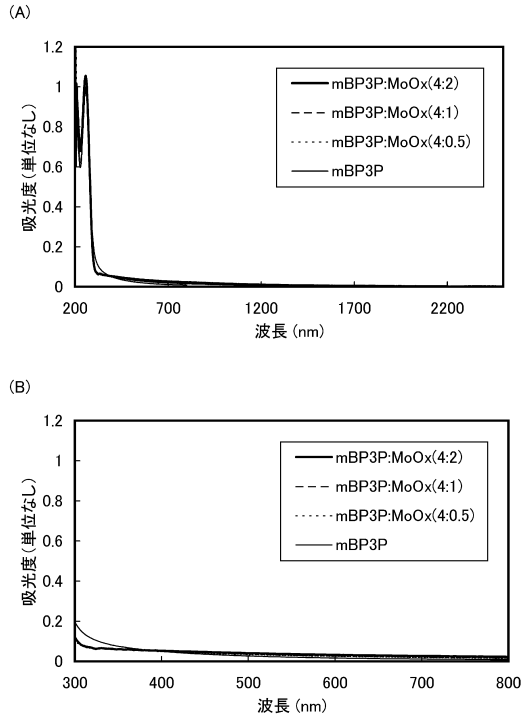
【圖 7】



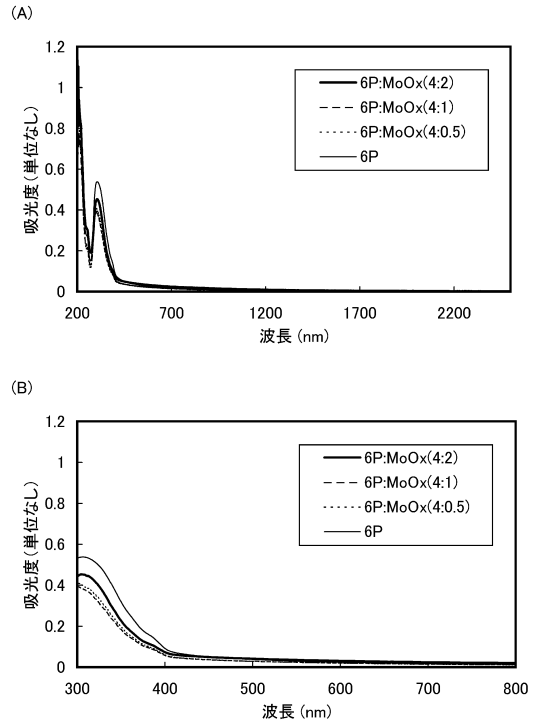
【圖 8】



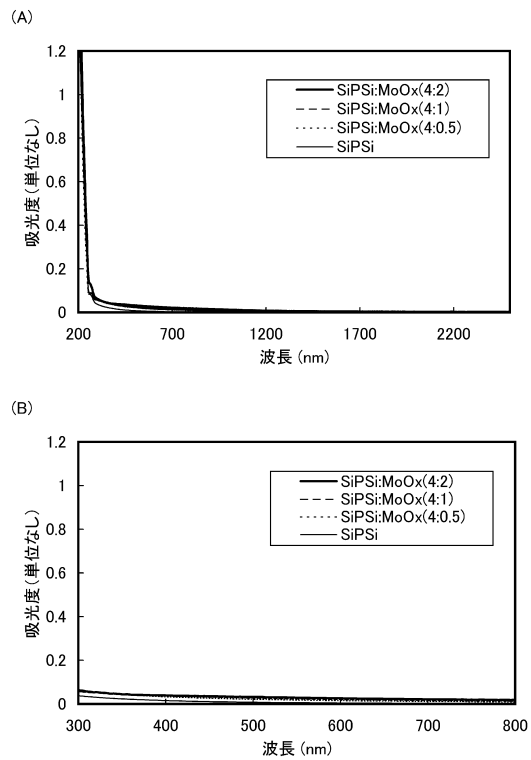
【図 9】



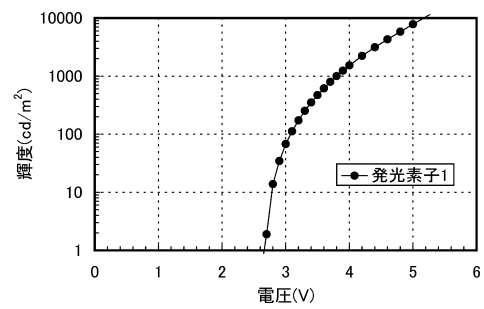
【図 10】



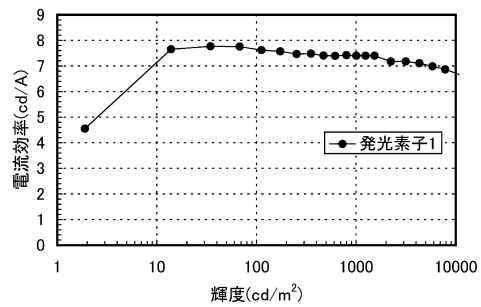
【図 11】



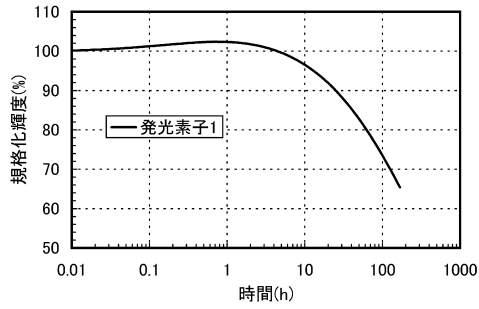
【図 12】



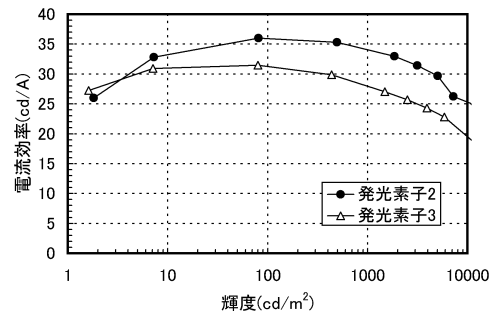
【図 13】



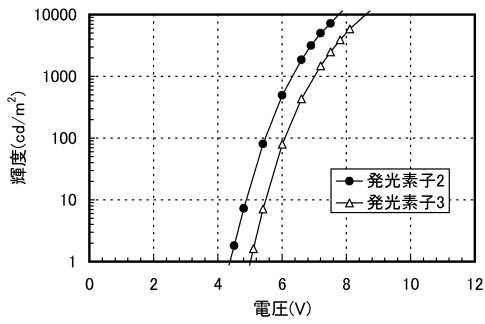
【図 14】



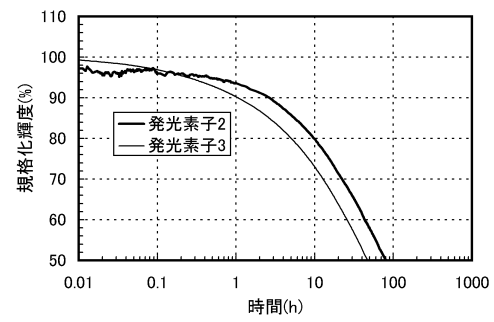
【図 16】



【図 15】

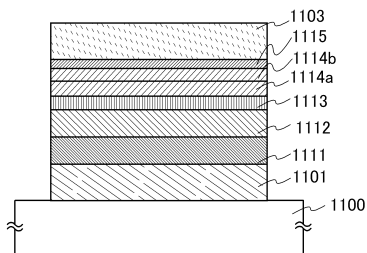


【図 17】

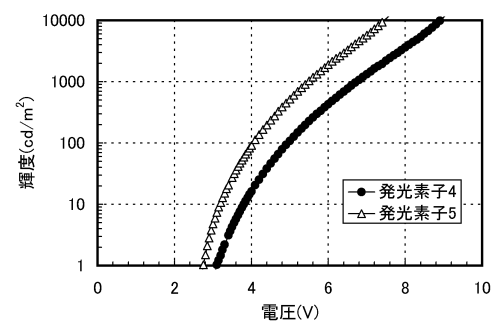


【図 18】

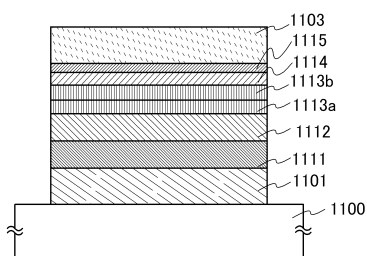
(A)



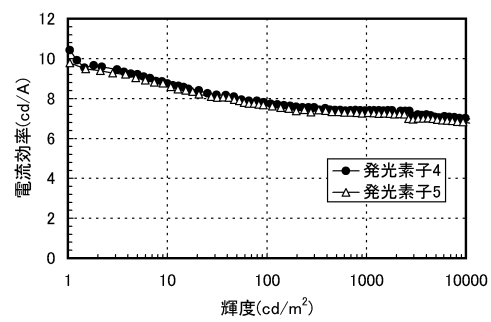
【図 19】



(B)

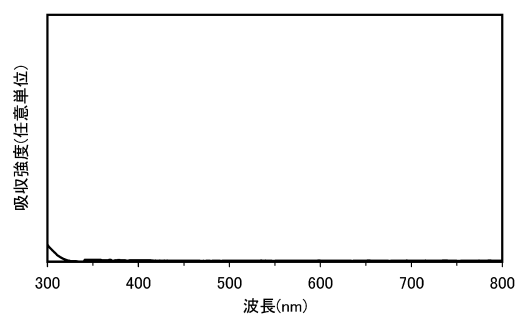


【図 20】

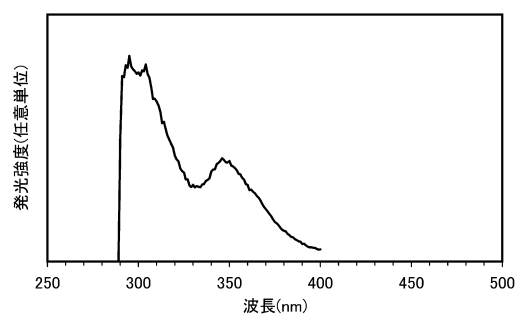


【図 2 1】

(A)

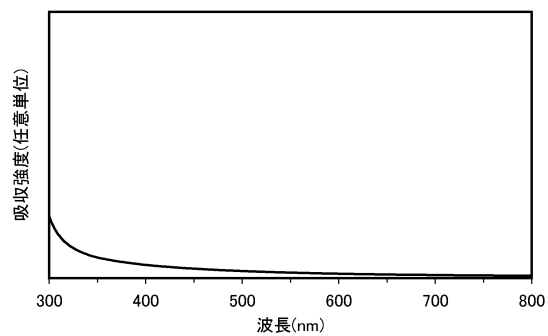


(B)

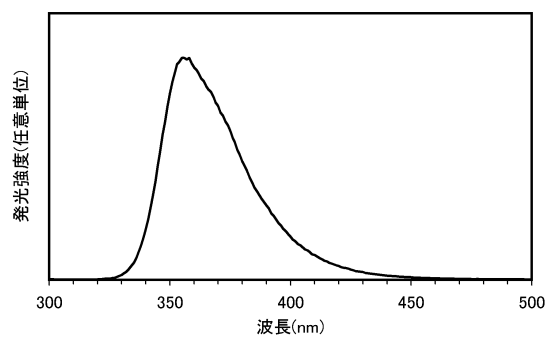


【図 2 2】

(A)

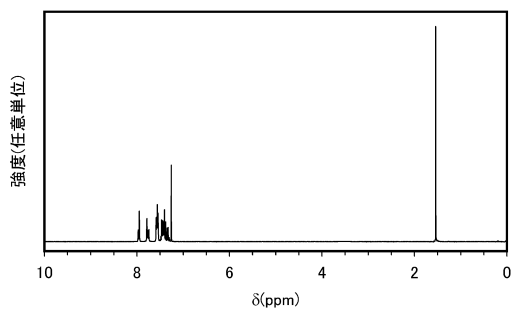


(B)

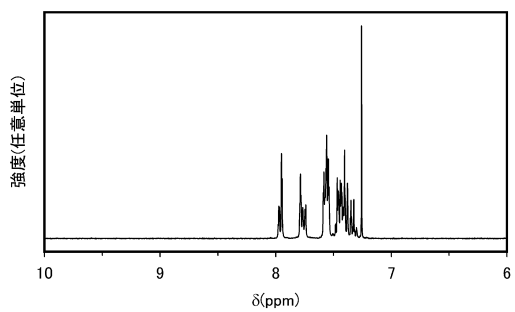


【図 2 3】

(A)

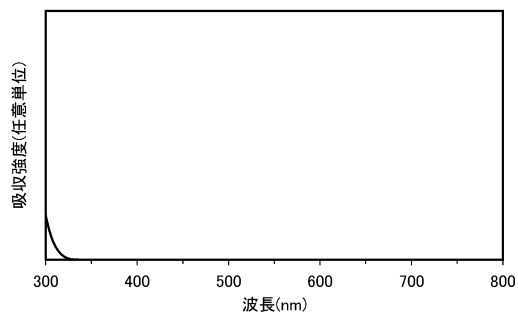


(B)

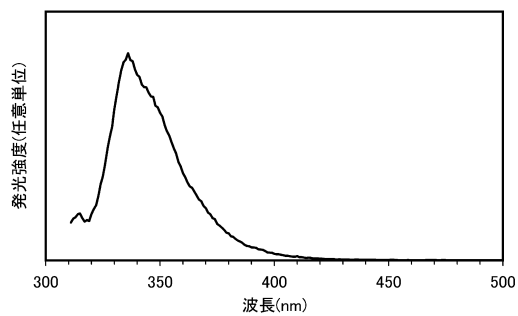


【図 2 4】

(A)

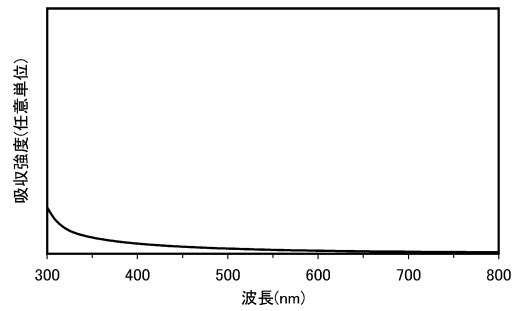


(B)

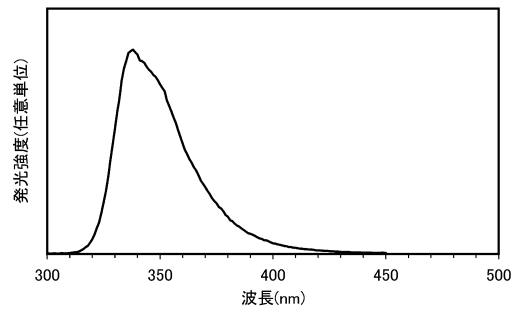


【図 25】

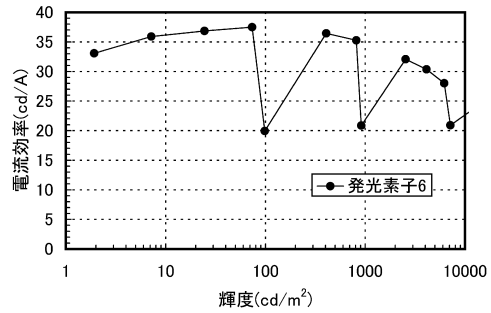
(A)



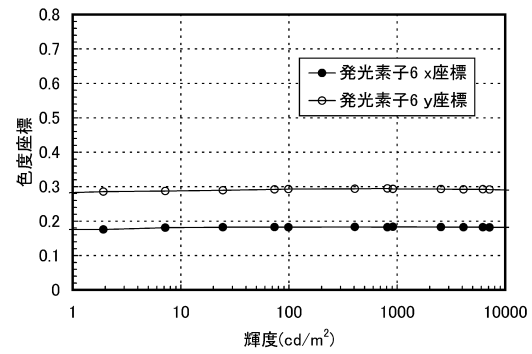
(B)



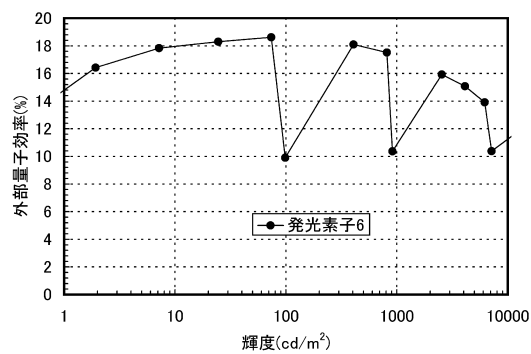
【図 26】



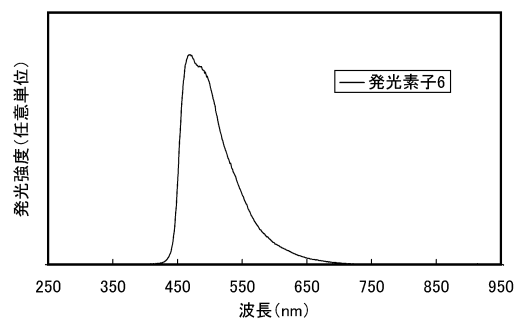
【図 27】



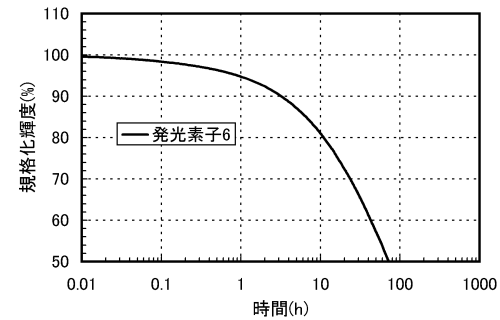
【図 28】



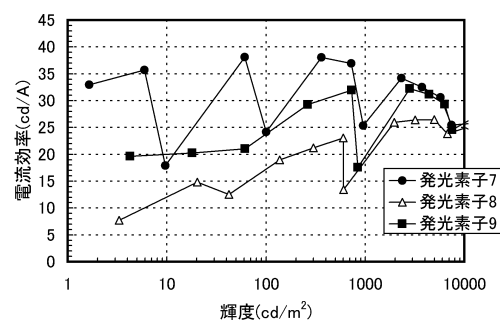
【図 29】



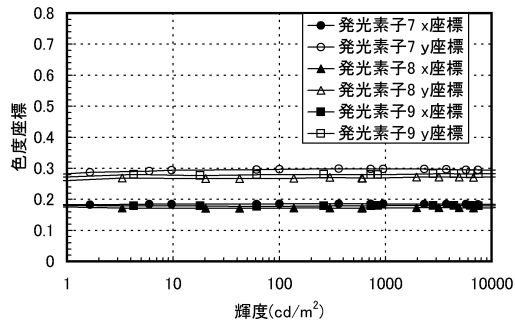
【図 30】



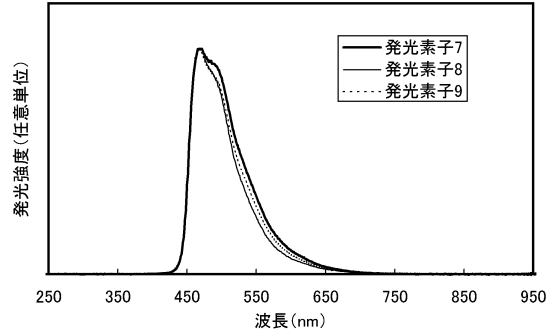
【図 31】



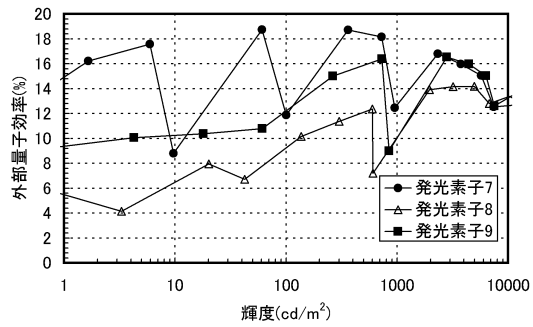
【図 3 2】



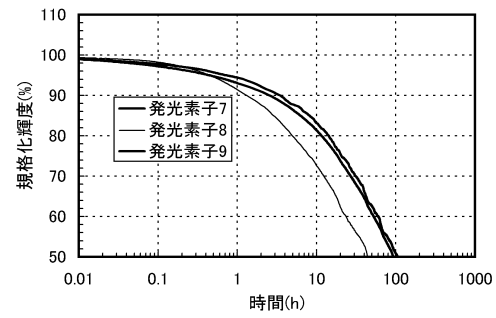
【図 3 4】



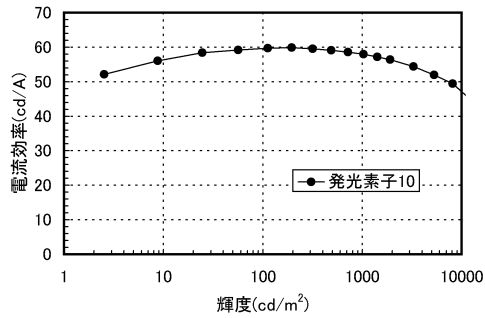
【図 3 3】



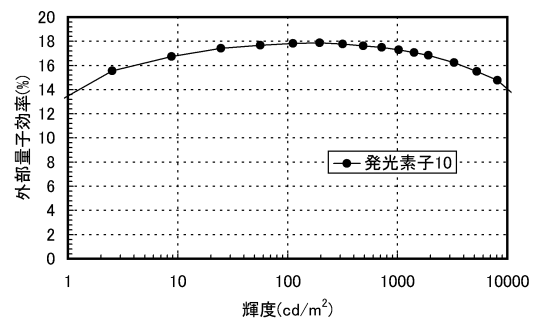
【図 3 5】



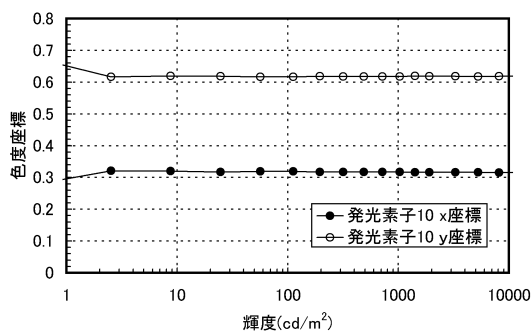
【図 3 6】



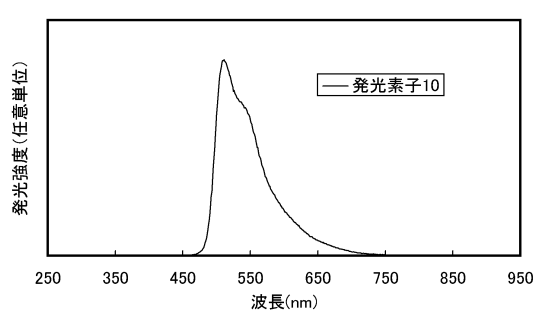
【図 3 8】



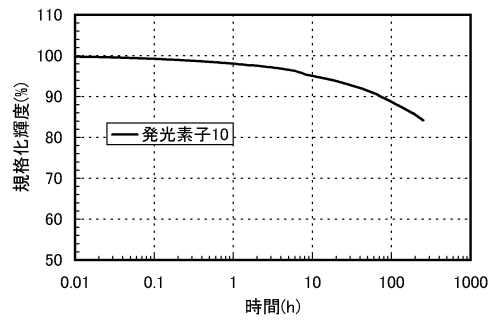
【図 3 7】



【図 3 9】



【図 40】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 0 7 F 7/08 C S P C
C 0 9 K 11/06 6 9 0
C 0 7 F 15/00 E

(72)発明者 鈴木 将人
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

(72)発明者 大澤 信晴
神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

審査官 岩井 好子

(56)参考文献 特開 2 0 1 1 - 0 3 4 9 1 7 (J P , A)
特開 2 0 0 7 - 0 4 3 0 6 2 (J P , A)
特開 2 0 0 7 - 2 3 4 5 1 4 (J P , A)
特開 2 0 0 7 - 2 3 4 5 5 5 (J P , A)
国際公開第 2 0 0 8 / 1 0 2 6 4 4 (W O , A 1)
特開 2 0 1 0 - 1 8 6 9 8 3 (J P , A)
特開 2 0 1 0 - 2 1 2 4 8 9 (J P , A)
特開 2 0 0 5 - 1 5 0 0 8 4 (J P , A)
特開 2 0 0 6 - 3 0 2 8 7 0 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 1 1 / 0 0 3 1 8 7 7 (U S , A 1)
特表 2 0 0 5 - 5 1 6 0 5 9 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 0 5 / 0 0 6 7 9 5 1 (U S , A 1)
特開 2 0 0 0 - 3 5 1 9 6 6 (J P , A)
米国特許第 0 6 3 1 0 2 3 1 (U S , B 1)
特開 2 0 0 9 - 1 7 9 6 2 7 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 0 9 / 0 1 8 9 5 1 9 (U S , A 1)
特開 2 0 0 4 - 1 0 3 5 7 7 (J P , A)
特開 2 0 0 6 - 0 8 9 4 6 4 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 0 9 / 0 1 3 1 6 7 0 (U S , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
H 0 1 L 5 1 / 5 0
C 0 7 F 7 / 0 8
C 0 9 K 1 1 / 0 6
C 0 7 F 1 5 / 0 0
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)