

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-56814

(P2014-56814A)

(43) 公開日 平成26年3月27日(2014.3.27)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/12 (2006.01)	H05B 33/12 C	3K107
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A	

審査請求 未請求 請求項の数 24 O L (全 60 頁)

(21) 出願番号	特願2013-166447 (P2013-166447)	(71) 出願人	000153878
(22) 出願日	平成25年8月9日 (2013.8.9)		株式会社半導体エネルギー研究所
(31) 優先権主張番号	特願2012-177795 (P2012-177795)		神奈川県厚木市長谷398番地
(32) 優先日	平成24年8月10日 (2012.8.10)	(72) 発明者	瀬尾 哲史
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		(72) 発明者	石曾根 崇浩
			神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
			半導体エネルギー研究所内
		Fターム(参考)	3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB08
			CC04 CC08 CC14 DD51 DD53
			DD67 DD68 DD69 FF13 FF15
			FF20

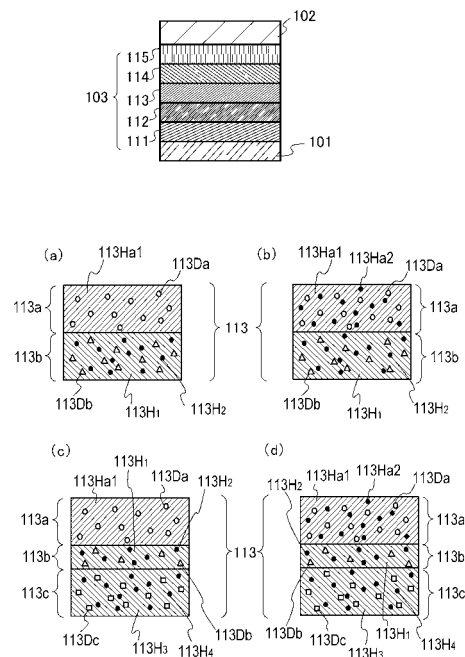
(54) 【発明の名称】 発光素子、発光装置、表示装置、電子機器及び照明装置

(57) 【要約】

【課題】複数の発光ドーパントを用いた発光素子において、当該複数のドーパントがバランスよく発光しつつ、発光効率が高い発光素子を提供する。また、上述の発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、表示装置、電子機器、及び照明装置を各々提供する。

【解決手段】各々異なるりん光発光材料が含まれた複数の発光層が積層した発光層を有する発光素子において、長波長の発光を呈する発光材料が含まれた発光層は、それぞれ輸送極性が異なるキャリア輸送性化合物を2種類含み、短波長側の発光層に含まれるホスト材料の三重項励起エネルギーが上記キャリア輸送性化合物のいずれか又は全部よりも三重項励起エネルギーが高いことを特徴とする発光素子を提供する。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

陽極及び陰極の間に、
第 1 のりん光性化合物と第 1 のホスト材料とを含む第 1 の発光層と、
第 2 のりん光性化合物と第 1 の電子輸送性化合物と第 1 の正孔輸送性化合物とを含む第 2 の発光層と、を有し、
前記第 2 のりん光性化合物の発光波長は、前記第 1 のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、
前記第 1 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、
前記第 1 の発光層と前記第 2 の発光層が接して設けられている発光素子。

10

【請求項 2】

請求項 1 に記載の発光素子において、前記第 1 の電子輸送性化合物と前記第 1 の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料は電子輸送性化合物であり、前記第 1 の発光層は前記第 2 の発光層の陰極側に設けられていることを特徴とする発光素子。

【請求項 4】

請求項 1 または請求項 2 に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、前記第 1 の発光層は前記第 2 の発光層の陽極側に設けられていることを特徴とする発光素子。

20

【請求項 5】

請求項 3 に記載の発光素子において、前記第 1 の発光層は、第 2 のホスト材料をさらに含み、前記第 2 のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、前記第 2 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子。

【請求項 6】

請求項 4 に記載の発光素子において、前記第 1 の発光層は、第 2 のホスト材料をさらに含み、前記第 2 のホスト材料は電子輸送性化合物であり、前記第 2 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子。

30

【請求項 7】

請求項 5 または請求項 6 に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料と前記第 2 のホスト材料が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項 8】

陽極及び陰極の間に、
第 1 のりん光性化合物と第 1 のホスト材料とを含む第 1 の発光層と、
第 2 のりん光性化合物と第 1 の電子輸送性化合物と第 1 の正孔輸送性化合物とを含む第 2 の発光層と、
第 3 のりん光性化合物と第 2 の電子輸送性化合物と第 2 の正孔輸送性化合物とを含む第 3 の発光層と、を有し、
前記第 2 のりん光性化合物の発光波長は、前記第 1 のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、
前記第 3 のりん光性化合物の発光波長は、前記第 2 のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、
前記第 1 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、
前記第 1 の発光層と前記第 2 の発光層と前記第 3 の発光層がこの順に接して設けられている発光素子。

40

50

【請求項 9】

陽極及び陰極の間に、

第 1 のりん光性化合物と第 1 のホスト材料とを含む第 1 の発光層と、

第 2 のりん光性化合物と第 1 の電子輸送性化合物と第 1 の正孔輸送性化合物とを含む第 2 の発光層と、

第 3 のりん光性化合物と第 2 の電子輸送性化合物と第 2 の正孔輸送性化合物とを含む第 3 の発光層と、を有し、

前記第 2 のりん光性化合物の発光波長は、前記第 1 のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、

前記第 3 のりん光性化合物の発光波長は、前記第 2 のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、

前記第 1 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、

前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物の三重項励起エネルギーは、前記第 2 の電子輸送性化合物および前記第 2 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、

前記第 1 の発光層と前記第 2 の発光層と前記第 3 の発光層がこの順に接して設けられている発光素子。

【請求項 10】

請求項 8 または請求項 9 に記載の発光素子において、前記第 1 の電子輸送性化合物と前記第 1 の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成し、

前記第 2 の電子輸送性化合物と前記第 2 の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項 11】

請求項 8 乃至請求項 10 のいずれか一に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料は電子輸送性化合物であり、前記第 1 の発光層は前記第 2 の発光層の陰極側に設けられていることを特徴とする発光素子。

【請求項 12】

請求項 8 乃至請求項 10 のいずれか一に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、前記第 1 の発光層は前記第 2 の発光層の陽極側に設けられていることを特徴とする発光素子。

【請求項 13】

請求項 11 に記載の発光素子において、前記第 1 の発光層は、第 2 のホスト材料をさらに含み、前記第 2 のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、前記第 2 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子。

【請求項 14】

請求項 12 に記載の発光素子において、前記第 1 の発光層は、第 2 のホスト材料をさらに含み、前記第 2 のホスト材料は電子輸送性化合物であり、前記第 2 のホスト材料の三重項励起エネルギーは、前記第 1 の電子輸送性化合物および前記第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子。

【請求項 15】

請求項 13 または請求項 14 に記載の発光素子において、前記第 1 のホスト材料と前記第 2 のホスト材料が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項 16】

請求項 8 乃至請求項 15 のいずれか一に記載の発光素子において、前記第 1 の電子輸送性化合物と前記第 2 の電子輸送性化合物は同一材料であることを特徴とする発光素子。

【請求項 17】

請求項 8 乃至請求項 15 のいずれか一に記載の発光素子において、前記第 1 の正孔輸送性化合物と前記第 2 の正孔輸送性化合物は同一材料であることを特徴とする発光素子。

10

20

30

40

50

【請求項 18】

請求項 8 乃至請求項 15 のいずれかーに記載の発光素子において、前記第 1 の電子輸送性化合物と前記第 2 の電子輸送性化合物は同一材料であり、かつ、前記第 1 の正孔輸送性化合物と前記第 2 の正孔輸送性化合物は同一材料であることを特徴とする発光素子。

【請求項 19】

請求項 8 乃至請求項 18 のいずれかーに記載の発光素子において、前記第 2 の発光層の膜厚が 2 nm 以上 20 nm 以下である発光素子。

【請求項 20】

請求項 19 に記載の発光素子において、前記第 2 の発光層の膜厚が 5 nm 以上 10 nm 以下である発光素子。

10

【請求項 21】

請求項 1 乃至請求項 20 のいずれかーに記載の発光素子を有する照明装置。

【請求項 22】

請求項 1 乃至請求項 20 のいずれかーに記載の発光素子と、前記発光素子を制御する手段を備えた発光装置。

【請求項 23】

請求項 1 乃至請求項 20 のいずれかーに記載の発光素子を表示部に有し、前記発光素子を制御する手段を備えた表示装置。

【請求項 24】

請求項 1 乃至請求項 20 のいずれかーに記載の発光素子を有する電子機器。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機化合物を発光物質として用いた発光素子、表示装置、発光装置、電子機器及び照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、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、一対の電極間に発光物質を含む層 (EL 層) を挟んだものである。この素子に電圧を印加することにより、発光物質からの発光を得ることができる。

30

【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を用いたディスプレイは、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】

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

40

【0005】

発光物質に有機化合物を用い、一対の電極間に当該 EL 層を設けた有機 EL 素子の場合、一対の電極間に電圧を印加することにより、陰極から電子が、陽極から正孔 (ホール) がそれぞれ発光性の EL 層に注入され、電流が流れる。そして、注入された電子及び正孔が再結合することによって発光性の有機化合物が励起状態となり、励起された発光性の有機化合物から発光を得ることができる。

【0006】

有機化合物が形成する励起状態の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態があり

50

、一重項励起状態 (S^*) からの発光が蛍光、三重項励起状態 (T^*) からの発光がりん光と呼ばれている。また、当該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。

【0007】

一重項励起状態から発光する化合物（以下、蛍光性化合物と称す）では室温において、通常、三重項励起状態からの発光（りん光）は観測されず、一重項励起状態からの発光（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。

【0008】

一方、三重項励起状態から発光する化合物（以下、りん光性化合物と称す）を用いれば、三重項励起状態からの発光（りん光）が観測される。また、りん光性化合物は項間交差（一重項励起状態から三重項励起状態へ移ること）が起こりやすいため、内部量子効率は 100% まで理論上は可能となる。つまり、蛍光性化合物より高い発光効率を実現可能となる。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、りん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。

【0009】

特許文献 1 では、複数の発光ドーパントを含む発光領域を有し、当該発光ドーパントがりん光を発する白色発光素子が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0010】

【特許文献 1】特表 2004 - 522276 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

理論的に内部量子効率を 100% とすることが可能なりん光性化合物ではあるが、素子構造や、他の材料との組み合わせの最適化無しでは、高い効率を実現することは難しい。特に、異なるバンド（発光色）のりん光性化合物を発光ドーパントとし複数種類用いる発光素子においては、エネルギー移動を考慮するのはもちろんのこと、当該エネルギー移動自体の効率を最適化せずには高い効率の発光を得ることは困難である。実際、上記特許文献 1 では、発光ドーパントがすべてりん光の素子であってもその外部量子効率は 3 ~ 4% 程度である。これは、光取り出し効率を考慮したとしても、内部量子効率は 20% 以下であると考えられ、りん光発光素子としては低い値であると言わざるを得ない。

【0012】

また、発光効率を高めるだけでなく、異なる発光色のドーパントを用いた多色発光素子においては、各発光色のドーパントがバランス良く発光することが必要である。高い発光効率を達成しつつ、各ドーパントの発光バランスをも保つのは、容易なことではない。

【0013】

そこで、本発明の一態様では、複数の発光ドーパントを用いた発光素子において、当該複数のドーパントがバランスよく発光しつつ、発光効率が高い発光素子を提供することを目的とする。また、本発明の一態様は、上述の発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、表示装置、電子機器、及び照明装置を各々提供することを目的とする。

【0014】

本発明は上述の課題のうちいずれか一を解決すればよいものとする。

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明では、複数の発光層において各々の発光層が異なるりん光材料を有する発光素子で、複数の発光層のうち、長波長の発光を呈する発光材料が含まれた発光層は、それぞれ輸

10

20

30

40

50

送極性が異なるキャリア輸送性化合物を２種類含み、複数の発光層のうち、短波長の発光を呈する発光材料が含まれた発光層はホスト材料を含み、当該ホスト材料の三重項励起エネルギーが上記キャリア輸送性化合物のいずれか又は全部よりも三重項励起エネルギーが高いことを特徴とする発光素子を提供する。このように、ホスト間でのエネルギー移動効率が高くなるような組み合わせのホスト材料やキャリア輸送性化合物を適用することで、本発明の一態様の発光素子を得ることができる。

【００１６】

すなわち、本発明の一態様は、陽極及び陰極の間に、第１のりん光性化合物と第１のホスト材料とを含む第１の発光層と、第２のりん光性化合物と第１の電子輸送性化合物と第１の正孔輸送性化合物とを含む第２の発光層と、を有し、第２のりん光性化合物の発光波長は、第１のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、第１のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、第１の発光層と第２の発光層が接して設けられている発光素子である。

10

【００１７】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の電子輸送性化合物と第１の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子である。

【００１８】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料は電子輸送性化合物であり、第１の発光層は第２の発光層の陰極側に設けられていることを特徴とする発光素子である。

20

【００１９】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、第１の発光層は第２の発光層の陽極側に設けられていることを特徴とする発光素子である。

【００２０】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の発光層は、第２のホスト材料をさらに含み、第２のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、第２のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子である。

30

【００２１】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の発光層は、第２のホスト材料をさらに含み、第２のホスト材料は電子輸送性化合物であり、第２のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子である。

【００２２】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料と第２のホスト材料が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子である。

【００２３】

また、本発明の他の構成は陽極及び陰極の間に、第１のりん光性化合物と第１のホスト材料とを含む第１の発光層と、第２のりん光性化合物と第１の電子輸送性化合物と第１の正孔輸送性化合物とを含む第２の発光層と、第３のりん光性化合物と第２の電子輸送性化合物と第２の正孔輸送性化合物とを含む第３の発光層と、を有し、第２のりん光性化合物の発光波長は、第１のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、第３のりん光性化合物の発光波長は、第２のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、第１のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、第１の発光層と第２の発光層と第３の発光層がこの順に接して設けられている発光素子である。

40

【００２４】

50

また、本発明の他の構成は、陽極及び陰極の間に、第１のりん光性化合物と第１のホスト材料とを含む第１の発光層と、第２のりん光性化合物と第１の電子輸送性化合物と第１の正孔輸送性化合物とを含む第２の発光層と、第３のりん光性化合物と第２の電子輸送性化合物と第２の正孔輸送性化合物とを含む第３の発光層と、を有し、第２のりん光性化合物の発光波長は、第１のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、第３のりん光性化合物の発光波長は、第２のりん光性化合物の発光波長よりも長波長であり、第１のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物の三重項励起エネルギーは、第２の電子輸送性化合物および第２の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であり、第１の発光層と第２の発光層と第３の発光層がこの順に接して設けられている発光素子である。

10

【 0 0 2 5 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の電子輸送性化合物と第１の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成し、第２の電子輸送性化合物と第２の正孔輸送性化合物が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子である。

【 0 0 2 6 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料は電子輸送性化合物であり、第１の発光層は第２の発光層の陰極側に設けられていることを特徴とする発光素子である。

【 0 0 2 7 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、第１の発光層は第２の発光層の陽極側に設けられていることを特徴とする発光素子である。

20

【 0 0 2 8 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の発光層は、第２のホスト材料をさらに含み、第２のホスト材料は正孔輸送性化合物であり、第２のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子である。

【 0 0 2 9 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の発光層は、第２のホスト材料をさらに含み、第２のホスト材料は電子輸送性化合物であり、第２のホスト材料の三重項励起エネルギーは、第１の電子輸送性化合物および第１の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギー以上であることを特徴とする発光素子である。

30

【 0 0 3 0 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１のホスト材料と第２のホスト材料が、励起錯体を形成することを特徴とする発光素子である。

【 0 0 3 1 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の電子輸送性化合物と第２の電子輸送性化合物は同一であることを特徴とする発光素子である。

【 0 0 3 2 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の正孔輸送性化合物と第２の正孔輸送性化合物は同一であることを特徴とする発光素子である。

40

【 0 0 3 3 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第１の電子輸送性化合物と第２の電子輸送性化合物は同一であり、かつ、第１の正孔輸送性化合物と第２の正孔輸送性化合物は同一であることを特徴とする発光素子である。

【 0 0 3 4 】

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第２の発光層の膜厚が 2 nm 以上 20 nm 以下である発光素子である。

【 0 0 3 5 】

50

また、本発明の他の構成は、上記構成を有する発光素子において、第2の発光層の膜厚が5nm以上10nm以下である発光素子である。

【0036】

また、本発明の他の一態様は、上記構成を有する発光素子を備えた発光装置、発光表示装置、電子機器及び照明装置である。

【0037】

なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子を用いた画像表示デバイスを含む。また、発光装置にコネクタ、例えば異方導電性フィルム、TCP(Tape Carrier Package)が取り付けられたモジュール、TCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、又は発光装置にCOG(Chip On Glass)方式によりIC(集積回路)が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。さらに、照明器具等に用いられる発光装置も含むものとする。

【発明の効果】

【0038】

本発明の一態様では、発光効率が高い発光素子を提供できる。本発明の一態様では、該発光素子を用いることにより、消費電力の低減された発光装置、発光表示装置、電子機器、及び照明装置のいずれかを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0039】

【図1】発光素子の概念図。

【図2】発光素子の概念図。

【図3】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図4】パッシブマトリクス型発光装置の概念図。

【図5】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図6】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図7】照明装置の概念図。

【図8】電子機器を表す図。

【図9】電子機器を表す図。

【図10】照明装置を表す図。

【図11】照明装置を表す図。

【図12】車載表示装置及び照明装置を表す図。

【図13】電子機器を表す図。

【図14】発光素子1の発光スペクトル。

【図15】発光素子1の輝度-電流効率特性。

【図16】発光素子1の輝度-外部量子効率特性。

【図17】発光素子1の電圧-輝度特性。

【図18】発光素子1の輝度-パワー効率特性。

【図19】発光素子2及び発光素子3の発光スペクトル。

【図20】発光素子2及び発光素子3の輝度-電流効率特性。

【図21】発光素子2及び発光素子3の輝度-外部量子効率特性。

【図22】発光素子2及び発光素子3の電圧-輝度特性。

【図23】発光素子2及び発光素子3の輝度-パワー効率特性。

【図24】発光素子4の発光スペクトル。

【図25】発光素子4の輝度-電流効率特性。

【図26】発光素子4の輝度-外部量子効率特性。

【図27】発光素子4の電圧-輝度特性。

【図28】発光素子4の輝度-パワー効率特性。

【図29】発光素子4の規格化輝度時間変化。

【図30】35DCzPPyのりん光スペクトル。

【図31】PCCPのりん光スペクトル。

10

20

30

40

50

【図 3 2】 2 m D B T P D B q - I I のりん光スペクトル。

【図 3 3】 P C B A 1 B P のりん光スペクトル。

【図 3 4】 2 m D B T B P D B q - I I のりん光スペクトル。

【図 3 5】 P C B N B B のりん光スペクトル。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 4 0 】

以下、本発明の実施の態様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。

10

【 0 0 4 1 】

(実施の形態 1)

まず、本発明の一態様の発光素子の動作原理について説明する。本発明の主旨は、第 1 のりん光性化合物と、該第 1 のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第 2 のりん光性化合物を用い、第 1 のりん光性化合物及び第 2 のりん光性化合物の両方を効率良く発光させることにより、高効率な多色発光素子を得るというものである。

【 0 0 4 2 】

りん光性化合物を用いた多色発光素子を得る一般的な手法としては、何らかの宿主材料中に、異なる発光色の複数のりん光性化合物を適当な比率で分散する手法が考えられる。しかしながらこのような手法の場合、最も長波長の発光を示すりん光性化合物が発光しやすくなってしまうため、多色発光を得るための素子構造（特に宿主材料中の各りん光性化合物の濃度）の設計・制御は非常に困難である。

20

【 0 0 4 3 】

多色発光素子を得る他の手法として、異なる発光色の発光素子を直列に積層する、いわゆるタンデム構造が挙げられる。例えば、青色発光素子と、緑色発光素子と、赤色発光素子の 3 つを直列に積層して同時に発光させれば、容易に多色光（この場合白色光）が得られる。素子構造も、青、緑、赤色の各素子をそれぞれに最適化すればよいので、その設計・制御は比較的容易である。しかしながら、3 つの素子を積層するため、層数は増大し、作製は煩雑となる。また、各素子の接続部（いわゆる中間層）での電氣的接触に問題が生じると、駆動電圧の増大、すなわち電力ロスを招いてしまう場合がある。

30

【 0 0 4 4 】

一方、本発明の一態様の発光素子は、一対の電極間に、第 1 のりん光性化合物と第 1 の宿主材料とを含む第 1 の発光層と、第 1 のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第 2 のりん光性化合物と第 1 の電子輸送性化合物と第 1 の正孔輸送性化合物を含む第 2 の発光層とが積層された発光素子である。この時、第 1 の宿主材料の三重項励起エネルギーは、第 1 の電子輸送性化合物と第 1 の正孔輸送性化合物のいずれかの三重項励起エネルギーより高く、第 1 の発光層及び第 2 の発光層は、タンデム構造とは異なり、互いに接して設けられている。

【 0 0 4 5 】

図 1 に、上述した本発明の一態様の発光素子の素子構造を模式的に示す。図 1 には第 1 の電極 1 0 1、第 2 の電極 1 0 2、E L 層 1 0 3 が記載されている。E L 層 1 0 3 には少なくとも発光層 1 1 3 が設けられており、その他の層については適宜設ければよい、図 1 においては、正孔注入層 1 1 1、正孔輸送層 1 1 2、電子輸送層 1 1 4 及び電子注入層 1 1 5 が設けられている構成を仮に示してある。なお、第 1 の電極 1 0 1 は陽極として機能し、第 2 の電極 1 0 2 は陰極として機能するものとする。

40

【 0 0 4 6 】

また、図 1 (a)、(b) は、当該発光素子における発光層 1 1 3 を拡大して示した図である。図 1 (a)、(b) には第 1 の発光層 1 1 3 a、第 2 の発光層 1 1 3 b、当該 2 層を合わせた発光層 1 1 3、第 1 のりん光性化合物 1 1 3 D a、第 2 のりん光性化合物 1 1 3 D b、第 1 の宿主材料 1 1 3 H a 1、第 1 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₁、第

50

2のキャリア輸送性化合物113H₂が示されている。なお、図1(b)は、第1の発光層113aにさらに第2のホスト材料113Ha2が含まれている場合の模式図である。なお、第1のホスト材料113Ha1と第1のキャリア輸送性化合物113H₁は同一でも異なった材料でもよく、第2のホスト材料113Ha2と第2のキャリア輸送性化合物113H₂も同一でも異なった材料でもよい。また、第1の発光層113a及び第2の発光層113bはそのどちらが陽極側であっても、陰極側であってもよい。また、第1のホスト材料113Ha1と第2のホスト材料113Ha2はどちらか一方が電子輸送性化合物であり、他方が正孔輸送性化合物である。同様に、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂も一方が電子輸送性化合物であり、他方が正孔輸送性化合物である。

10

【0047】

発光層内の再結合領域の設定は、各発光層に含まれる第1のホスト材料113Ha1、第2のホスト材料113Ha2、第1のキャリア輸送性化合物113H₁及び第2のキャリア輸送性化合物113H₂の混合割合によって調整することができる。第1のホスト材料113Ha1と第2のホスト材料113Ha2、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂は、上述のように、どちらか一方が電子輸送性化合物、他方が正孔輸送性化合物である。そのため、これらの混合比を変えることによって、各発光層のキャリアの輸送性を調整することができ、結果として再結合領域の制御を簡便に行うことができる。

20

【0048】

なお、第2の発光層113bにて直接励起子が生成すると、第1のりん光性化合物113Daの発光が得にくいため、キャリアの再結合領域は、第1の発光層113a内部、又は、第1の発光層113aと第2の発光層113bの界面近傍であることが好ましい。

【0049】

このように、キャリアの再結合領域を第1の発光層113aと第2の発光層113bの界面近傍とするためには、第1の発光層113aが陽極側にある場合には、第1の発光層113aを正孔輸送性に、陰極側にある場合には第1の発光層113aを電子輸送性にすればよい。そして、第2の発光層113bを各々の反対の輸送性とすることによって、再結合領域を第1の発光層113aと第2の発光層113bとの界面近傍とすることができる。また、キャリアの再結合領域を第1の発光層113a内とするためには、上述の構成を基本として、第1の発光層113aのバイポーラ性を高めればよい。

30

【0050】

図1(a)のような構成である場合、第1の発光層113aが陽極側にある場合には第1のホスト材料113Ha1を正孔輸送性に、陰極側にある場合には第1のホスト材料113Ha1を電子輸送性にし、第2の発光層113bは第1のキャリア輸送性化合物113H₁及び第2のキャリア輸送性化合物113H₂の混合割合を変化させることによって第1の発光層113aと反対のキャリア輸送性に調整すればよい。

【0051】

第2の発光層113b及び図1(b)に示したような第1の発光層113aである場合は、発光層内に含まれる電子輸送性化合物と正孔輸送性化合物の混合割合を変化させることで各々の輸送性を調節することができる。

40

【0052】

ただし、再結合領域が第1の発光層113a内部、又は第1の発光層と第2の発光層の界面である場合、今度は第1のりん光性化合物と比較して第2のりん光性化合物113Dbによる発光強度比が小さくなってしまう場合がある。そこで本発明の一態様では、図1(a)の構成の場合は、第1のホスト材料113Ha1の三重項励起エネルギーが、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂のいずれか一方又は両方よりも大きくなるように材料の組み合わせを選択する。このことによって、キャリアの再結合による三重項励起エネルギーは、その一部が第1のホスト材料113Ha1から第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H

50

のいずれか一方又は両方の三重項励起準位に移動し、第2のりん光性化合物113Dbを発光させることができる。

【0053】

また、図1(b)のように、第1の発光層113aにさらに第2のホスト材料113Ha2を含む場合は、第2のホスト材料113Ha2の三重項励起エネルギーも、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂のいずれか一方又は両方よりも大きくなるように選択する。このことによって、キャリアの再結合による三重項励起エネルギーは、その一部が第2のホスト材料113Ha2から第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂のいずれか一方又は両方の三重項励起準位に移動し、第2のりん光性化合物113Dbを発光させることができる。

10

【0054】

このように、キャリアの再結合により生成される励起エネルギーの75%を占める三重項励起エネルギーの移動を考慮した構成とすることによって、第2のりん光性化合物113Dbの発光を所望の強度で得ることができる。

【0055】

一方、第1のホスト材料113Ha1又は第2のホスト材料113Ha2の一重項励起エネルギーが、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂のそれよりも高い場合は、デクスター機構により移動が起こる。また、この場合、第1のホスト材料113Ha1又は第2のホスト材料113Ha2が蛍光発光性であれば、フェルスター機構によってもエネルギー移動が起こる。

20

【0056】

ここで、より発光効率の高い発光素子を得るために、りん光性化合物へのエネルギー移動について考える。本説明においては、りん光性化合物へエネルギーを与える物質のことをホスト材料と呼ぶことにする。

【0057】

キャリアの再結合は、ホスト材料とりん光性化合物との両方で行われるため、発光効率の向上のためには、ホスト材料からりん光性化合物へのエネルギー移動を効率化する必要がある。ホスト材料からりん光性化合物へのエネルギー移動にはデクスター機構、フェルスター機構の二つの機構が提唱されている。

30

【0058】

ホスト分子からゲスト分子へのエネルギー移動効率 Φ_{ET} は、下記式で表される。 k_r は、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りん光）の速度定数を表し、 k_n は、非発光過程（熱失活や項間交差）の速度定数を表し、 τ は、実測される励起状態の寿命を表す。

【0059】

【数1】

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

40

【0060】

まず、上記数式より、エネルギー移動効率 Φ_{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良いことがわかる。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、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りん光スペクトル）とゲスト

50

分子（第2の発光層においてはりん光性化合物）の吸収スペクトルとの重なりが大きい方がよい。

【0061】

ここで、ホスト分子の発光スペクトルとりん光性化合物の吸収スペクトルとの重なりを考える上で、りん光性化合物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。

【0062】

りん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、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近傍にあり、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（
10
蛍光スペクトル及びりん光スペクトル）は、りん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。

【0063】

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として、500～600nm付近にブロードな吸収帯が現れる場合が多い。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 - * 遷移や一重項MLCT
20
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、ホスト材料の発光スペクトルが大きく重なる状態が好ましい。

【0064】

ここでまず、ホスト材料の三重項励起状態からのエネルギー移動を考えてみる。上述の議論から、三重項励起状態からのエネルギー移動においては、ホスト材料のりん光スペクトルとりん光性化合物の最も長波長側の吸収帯との重なりが大きくなればよい。

【0065】

しかしながら、このとき問題となるのは、ホスト分子の一重項励起状態からのエネルギー移動である。三重項励起状態からのエネルギー移動に加え、一重項励起状態からのエネルギー移動も効率よく行おうとすると、上述の議論から、ホスト材料のりん光スペクトルだけでなく、
30
蛍光スペクトルをもゲスト材料の最も長波長側の吸収帯と重ねるように設計しなければならない。換言すれば、ホスト材料の蛍光スペクトルが、りん光スペクトルと同じような位置に来るようにホスト材料を設計しなければ、ホスト材料の一重項励起状態及び三重項励起状態の双方からのエネルギー移動を効率よく行うことはできないということになる。

【0066】

ところが、一般に、一重項励起準位と三重項励起準位は大きく異なる（一重項励起準位 > 三重項励起準位）ため、蛍光の発光波長とりん光の発光波長も大きく異なる（蛍光の発光波長 < りん光の発光波長）。例えば、りん光性化合物を用いた発光素子において良く用いられる4,4'-ジ（N-カルバゾリル）ビフェニル（略称：CBP）は、500nm
40
付近にりん光スペクトルを有するが、一方で蛍光スペクトルは400nm付近であり、100nmもの隔たりがある。この例から考えてみても、ホスト材料の蛍光スペクトルがりん光スペクトルと同じような位置に来るようにホスト材料を設計することは、極めて困難である。

【0067】

また、ある物質における一重項励起準位は、三重項励起準位よりもエネルギー準位が高いことから、蛍光スペクトルがゲスト材料の最も長波長側の吸収スペクトルに近接するような波長にあるホスト材料の三重項励起準位は、ゲスト材料の三重項励起準位を下回ってしまう。

【0068】

ここで、2種類の材料からなる励起状態である励起錯体について述べる。励起錯体の蛍

10

20

30

40

50

光スペクトルは、2種類の材料のうち、浅い方のHOMO準位と深いほうのLUMO準位のエネルギー差に由来する発光を呈するため、元の物質単体の蛍光スペクトルより長波長側にスペクトルを有する発光となる。このため、励起錯体を形成する2つの化合物の三重項励起エネルギーをゲスト材料の三重項励起エネルギーより高く保ったまま、一重項励起状態からのエネルギー移動を最大限に高めることができる。

【0069】

さらにまた、励起錯体は三重項励起準位と一重項励起準位が近接している状態であるため、蛍光スペクトルとりん光スペクトルがほぼ同じ位置に存在する。このことから、ゲスト分子の一重項基底状態から三重項励起状態への遷移に相当する吸収（ゲスト分子の吸収スペクトルにおける最も長波長側に存在するブロードな吸収帯）に励起錯体の蛍光スペクトル及びりん光スペクトルの両方を大きく重ねることができるため、エネルギー移動効率が高い発光素子を得ることができる。

10

【0070】

このように、第2の発光層においては、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と、第2のキャリア輸送性化合物113H₂は励起錯体を形成する組み合わせであることが好ましい。さらには、第2のりん光性化合物113Dbの最も低エネルギー側の吸収帯と、当該励起錯体の発光スペクトルが重なることで、より発光効率の良好な発光素子を得ることができる。また、第2のりん光性化合物113Dbの最も低エネルギー側の吸収帯のピーク波長と、当該励起錯体の発光スペクトルのピーク波長のエネルギー換算値の差が0.2eV以下であるとスペクトル同士の重なりが大きくなり好ましい構成である。

20

【0071】

また、図1(b)のような構成である場合には、第1のホスト材料113Ha1と、第2のホスト材料113Ha2は励起錯体を形成する組み合わせであることが好ましい。さらには、第1のりん光性化合物の最も低エネルギー側の吸収帯と、当該励起錯体の発光スペクトルが重なることで、より発光効率の良好な発光素子を得ることができる。また、第1のりん光性化合物113Daの最も低エネルギー側の吸収帯のピーク波長と、当該励起錯体の発光スペクトルのピーク波長のエネルギー換算値の差が0.2eV以下であるとスペクトル同士の重なりが大きくなり好ましい構成である。

【0072】

励起錯体の発光は、上述のように、当該励起錯体を構成する2種類の物質のうち、浅い方のHOMO準位と深いほうのLUMO準位のエネルギー差に由来する。そのため、励起錯体をホストとして用いると、材料の組み合わせを変更することによって、発光スペクトルを変化させることができるため、りん光性化合物の長波長側の吸収にあわせた発光を容易に得ることができる。

30

【0073】

また、第1のホスト材料113Ha1及び第2のホスト材料113Ha2は、第1のりん光性化合物113Daを消光させないよう、該第1のりん光性化合物113Daよりも高い三重項励起エネルギーを有していることが好ましい。また、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂は、第2のりん光性化合物113Dbを消光させないよう、該第2のりん光性化合物113Dbよりも高い三重項励起エネルギーを有していることが好ましい。

40

【0074】

以上のような構成を有する発光素子は、発光効率が高く、且つ、バランスよく各々のりん光性化合物から発光を得ることが可能な発光素子とすることができる。

【0075】

第1のホスト材料113Ha1、第2のホスト材料113Ha2、第1のキャリア輸送性化合物113H₁及び第2のキャリア輸送性化合物113H₂として用いることができる電子輸送性化合物及び正孔輸送性化合物としては、以下のような化合物が挙げられる。なお、第1のホスト材料113Ha1、第2のホスト材料113Ha2はどちらか一方が電子輸送性化合物であり、他方が正孔輸送性化合物であり、第1のキャリア輸送性化合物

50

1 1 3 H₁ 及び第 2 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₂ もどちらか一方が電子輸送性化合物であり、他方が正孔輸送性化合物である。また、これら組み合わせを選択する際、励起錯体を形成する組み合わせを選択することが好ましい。

【0076】

電子輸送性化合物としては、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(II)(略称: 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: ZnPBQ)、ビス[2-(2-ベンゾチアゾリル)フェノラト]亜鉛(II)(略称: ZnBTZ)などの金属錯体や、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)、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)、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)、9-[4-(5-フェニル-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル)フェニル]-9H-カルバゾール(略称: CO11)、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール)(略称: TPBI)、2-[3-(ジベンゾチオフエン-4-イル)フェニル]-1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール(略称: mDBTBIm-II)などのポリアゾール骨格を有する複素環化合物や、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)、2-[3'-(ジベンゾチオフエン-4-イル)ピフェニル-3-イル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称: 2mCzBPDBq)、4,6-ビス[3-(フェナントレン-9-イル)フェニル]ピリミジン(略称: 4,6mPnP2Pm)、4,6-ビス[3-(4-ジベンゾチエニル)フェニル]ピリミジン(略称: 4,6mDBTP2Pm-II)などのジアジン骨格を有する複素環化合物や、3,5-ビス[3-(9H-カルバゾール-9-イル)フェニル]ピリジン(略称: 35DCzPPy)、1,3,5-トリ[(3-ピリジル)-フェン-3-イル]ベンゼン(略称: TmPyPB)などのピリジン骨格を有する複素環化合物が挙げられ、電子不足型複素芳香族化合物が好ましい。上述した中でも、ジアジン骨格を有する複素環化合物やピリジン骨格を有する複素環化合物は、信頼性が良好であり好ましい。特に、ジアジン(ピリミジンやピラジン)骨格を有する複素環化合物は、電子輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与する。

【0077】

正孔輸送性化合物は、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)、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1'-ピフェニル]-4,4'-ジアミン(略称: TPD)、4,4'-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]ピフェニル(略称: BSPB)、4-フェニル-4'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称: BPAPLP)、4-フェニル-3'-(9-フェニルフルオレン-9-イル)トリフェニルアミン(略称: mBPAPLP)、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: PCBAP1BP)、4,4'-ジフェニル-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: PCBBI1BP)、4-(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: PCBANB)、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: PCBNNBB)、9,9-ジメチル-N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-フルオレン-2-アミン(略称: PCBAPF)、N-フェニル-N-[4-(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)フェニル]-スピロ-9,9'-ビフルオレン-2-

10

20

30

40

50

アミン（略称：PCBASf）などの芳香族アミン骨格を有する化合物や、1,3-ビス（N-カルバゾリル）ベンゼン（略称：mCP）、4,4'-ジ（N-カルバゾリル）ビフェニル（略称：CBP）、3,6-ビス（3,5-ジフェニルフェニル）-9-フェニルカルバゾール（略称：CzTP）、3,3'-ビス（9-フェニル-9H-カルバゾール）（略称：PCCP）などのカルバゾール骨格を有する化合物や、4,4',4'''-（ベンゼン-1,3,5-トリイル）トリ（ジベンゾチオフエン）（略称：DBT3P-II）、2,8-ジフェニル-4-[4-（9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル）フェニル]ジベンゾチオフエン（略称：DBTFLP-II）、4-[4-（9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル）フェニル]-6-フェニルジベンゾチオフエン（略称：DBTFLP-IV）などのチオフエン骨格を有する化合物や、4,4',4'''-（ベンゼン-1,3,5-トリイル）トリ（ジベンゾフラン）（略称：DBF3P-II）、4-{3-[3-（9-フェニル-9H-フルオレン-9-イル）フェニル]フェニル}ジベンゾフラン（略称：mmDBFFLBi-II）などのフラン骨格を有する化合物が挙げられ、電子過剰型複素芳香族化合物が好ましい。上述した中でも、芳香族アミン骨格を有する化合物やカルバゾール骨格を有する化合物は、信頼性が良好であり、また、正孔輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与するため好ましい。

10

20

30

40

50

【0078】

以上のような構成を有する発光素子は、発光効率が良好であり、且つ複数の発光物質からの発光を得ることが可能な発光素子である。また当該発光素子は、タンデム型とは異なるため、製造工程も煩雑化せず、また、中間層による電力のロスも小さい。また、白色発光素子としての利用価値も高い。

【0079】

なお、図1(c)、(d)のように、発光層113を第1の発光層113a、第2の発光層113b、第3の発光層113cの三層で形成しても良い。この際第1の発光層113aと、第2の発光層113bとの関係は上述のとおりである。

【0080】

第3の発光層113cには、第3のりん光性化合物113Dc、第3のキャリア輸送性化合物113H₃及び第4のキャリア輸送性化合物113H₄が含まれる。第3のりん光性化合物113Dcの発光波長は、第2のりん光性化合物113Dbよりも長波長である。また、第3のキャリア輸送性化合物113H₃と第4のキャリア輸送性化合物113H₄はどちらか一方が電子輸送性化合物であり、他方が正孔輸送性化合物である。これら第3のキャリア輸送性化合物113H₃と第4のキャリア輸送性化合物113H₄として用いることができる化合物は、上述の第1のホスト材料113Ha1、第2のホスト材料113Ha2、第1のキャリア輸送性化合物113H₁及び第2のキャリア輸送性化合物113H₂として用いることができる化合物として挙げた化合物を用いることができる。

【0081】

第3のキャリア輸送性化合物113H₃と第4のキャリア輸送性化合物113H₄は、第1のキャリア輸送性化合物113H₁と第2のキャリア輸送性化合物113H₂や、第1のホスト材料113Ha1と第2のホスト材料113Ha2と同様の理由によって、励起錯体を形成することが好ましい。また、励起錯体から第3のりん光性化合物113Dcへのエネルギー移動を最適化するために、当該励起錯体の発光スペクトルと、第3のりん光性化合物113Dcの最も長波長側の吸収帯が重なっていることが好ましい。また、第3のりん光性化合物113Dcの最も低エネルギー側の吸収帯のピーク波長と、当該励起錯体の発光スペクトルのピーク波長のエネルギー換算値の差が0.2eV以下であるとスペクトル同士の重なりが大きくなり好ましい構成である。また、第3のキャリア輸送性化合物113H₃と第4のキャリア輸送性化合物113H₄は、第3のりん光性化合物113Dcを消光させないよう、該第3のりん光性化合物113Dcよりも高い三重項励起エネルギーを有していることが好ましい。

【0082】

第3の発光層113cは第1の発光層113a内、又は第1の発光層113aと第2の

発光層 1 1 3 b の界面近傍の再結合領域での再結合エネルギーが第 2 の発光層 1 1 3 b を介して移動することによって発光する。このため、第 1 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₁ 及び第 2 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₂ の三重項励起エネルギーは、第 3 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₃ と第 4 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₄ のいずれか一方の三重項励起エネルギーよりも大きいことが好ましい。

【0083】

また、再結合領域を第 1 の発光層 1 1 3 a 内、又は第 1 の発光層 1 1 3 a と第 2 の発光層 1 1 3 b の界面近傍とするために、第 3 の発光層 1 1 3 c の輸送性は、第 2 の発光層 1 1 3 b の輸送性と同一であることが好ましい。さらに、第 3 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₃ と第 4 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₄ とを構成する電子輸送性化合物と正孔輸送性化合物は、どちらか一方又は両方が第 1 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₁ と第 2 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₂ を構成する電子輸送性化合物と正孔輸送性化合物の一方又は両方と同一であってもよい。これによって、各層を構成する材料が共通化され、コスト的に有利となる。

【0084】

図 1 (c)、(d) の発光層 1 1 3 の構成を有する図 1 の発光素子は、第 1 の発光層 1 1 3 a が陽極側に形成されていても、陰極側に形成されていても良い。

【0085】

第 1 の発光層 1 1 3 a が陽極側に形成されている場合、第 1 の発光層 1 1 3 a は正孔輸送性の層であり、第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c は電子輸送性の層であることが好ましい。第 1 の発光層の輸送性は、図 1 (c) の構成である場合は第 1 のホスト材料 1 1 3 H a 1 を正孔輸送性の材料とすればよい。また、図 1 (d) の構成である場合は、第 1 のホスト材料 1 1 3 H a 1 と第 2 のホスト材料 1 1 3 H a 2 (すなわち電子輸送性化合物と正孔輸送性化合物) との混合比を変えることによって調整することができる。第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c においても、同様に第 1 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₁ 乃至第 4 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₄ の混合比を変えることによって所望の輸送性を有する発光層とすることができる。

【0086】

また、第 1 の発光層 1 1 3 a が陰極側に形成されている場合、第 1 の発光層 1 1 3 a は電子輸送性の層であり、第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c は正孔輸送性の層であることが好ましい。第 1 の発光層 1 1 3 a の輸送性は、図 1 (c) の構成である場合は第 1 のホスト材料 1 1 3 H a 1 を電子輸送性の材料とすればよい。また、図 1 (d) の構成である場合は、第 1 のホスト材料 1 1 3 H a 1 と第 2 のホスト材料 1 1 3 H a 2 (すなわち電子輸送性化合物と正孔輸送性化合物) との混合比を変えることによって調整することができる。第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c においても、同様に第 1 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₁ 乃至第 4 のキャリア輸送性化合物 1 1 3 H₄ の混合比を変えることによって所望の輸送性を有する発光層とすることができる。

【0087】

さらに、第 2 の発光層 1 1 3 b を介してエネルギー移動することから、第 2 の発光層 1 1 3 b の膜厚が厚すぎると第 3 の発光層 1 1 3 c までエネルギー移動が起こらず、第 3 のりん光性化合物 1 1 3 D c からの発光を得ることができないため、第 3 の発光層 1 1 3 c からの発光を得るためには、第 2 の発光層 1 1 3 b の膜厚は 2 nm 乃至 20 nm が好ましく、より好ましくは 5 nm 乃至 10 nm である。

【0088】

なお、図 1 (c)、(d) のような発光層 1 1 3 の構成を有する本実施の形態における発光素子は、第 1 のりん光性化合物 1 1 3 D a を青色系の発光を示す化合物、第 2 のりん光性化合物 1 1 3 D b を緑色系の発光を示す化合物、第 3 のりん光性化合物 1 1 3 D c を赤色系の発光を示す化合物とすることによって、良好な白色発光 (例えば J I S の照明規格に合致する白色発光) を得ることができる。またこのような白色発光は演色性も高い。また、このような白色発光素子は照明としての利用に非常に好適である。

【0089】

以上のような構成を有する発光素子は、複数の発光物質を用いた発光素子であって、発光効率の良好な発光素子とすることができる。また、当該複数の発光物質からの発光をバランスよく得ることが可能な発光素子とすることができる。

【0090】

(実施の形態2)

本実施の形態では実施の形態1で説明した発光素子の詳細な構造の例について図1を用いて以下に説明する。

【0091】

本実施の形態における発光素子は、一对の電極間に複数の層からなるEL層を有する。本実施の形態において、発光素子は、第1の電極101と、第2の電極102と、第1の電極101と第2の電極102との間に設けられたEL層103とから構成されている。なお、本形態では第1の電極101は陽極として機能し、第2の電極102は陰極として機能するものとして、以下説明をする。つまり、第1の電極101の方が第2の電極102よりも電位が高くなるように、第1の電極101と第2の電極102に電圧を印加したときに、発光が得られる構成となっている。

10

【0092】

第1の電極101は陽極として機能するため、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、およ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、例えば、酸化インジウム-酸化スズ(ITO: Indium Tin Oxide)、ケイ素若しくは酸化ケイ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、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。作製方法の例としては、酸化インジウム-酸化亜鉛は、酸化インジウムに対し1~20wt%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方法などがある。また、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)は、酸化インジウムに対し酸化タングステンを0.5~5wt%、酸化亜鉛を0.1~1wt%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もできる。この他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、または金属材料の窒化物(例えば、窒化チタン)等が挙げられる。グラフェンも用いることができる。なお、後述する複合材料をEL層103における第1の電極101と接する層に用いることで、仕事関数に関わらず、電極材料を選択することができるようになる。

20

30

【0093】

EL層103の積層構造については、発光層113が実施の形態1に示したような構成となれば他は特に限定されない。例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、キャリアブロック層等を適宜組み合わせる構成することができる。本実施の形態では、EL層103は、第1の電極101の上に順に積層した正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、電子輸送層114、電子注入層115を有する構成について説明する。各層を構成する材料について以下に具体的に示す。

40

【0094】

正孔注入層111は、正孔注入性の高い物質を含む層である。モリブデン酸化物やバナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等を用いることができる。この他、フタロシアニン(略称: H₂Pc)や銅フタロシアニン(略称: CuPC)等のフタロシアニン系の化合物、4,4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称: DPAB)、N,N'-ビス{4-[ビス(3-メチルフェニル)アミノ]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: DNTPD)等の芳香族アミン化合物、或いはポリ(エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸)(略称: PED

50

OT/PSS)等の高分子等によっても正孔注入層111を形成することができる。

【0095】

また、正孔注入層111として、正孔輸送性の物質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。なお、正孔輸送性の物質にアクセプター性物質を含有させたものを用いることにより、電極の仕事関数に依らず電極を形成する材料を選ぶことができる。つまり、第1の電極101として仕事関数の大きい材料だけでなく、仕事関数の小さい材料も用いることができるようになる。アクセプター性物質としては、7,7,8,8-テトラシアノ-2,3,5,6-テトラフルオロキノジメタン(略称:F₄-TCNQ)、クロラニル等を挙げることができる。また、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、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

【0096】

複合材料に用いる正孔輸送性の物質としては、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、デンドリマー、ポリマー等)など、種々の有機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。以下では、複合材料における正孔輸送性の物質として用いることのできる有機化合物を具体的に列挙する。

20

【0097】

例えば、芳香族アミン化合物としては、N,N'-ジ(p-トリル)-N,N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン(略称:DTDPPA)、4,4'-ビス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称:DPAB)、N,N'-ビス{4-[ビス(3-メチルフェニル)アミノ]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: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:DPAB3)等を挙げることができる。

【0098】

複合材料に用いることのできるカルバゾール誘導体としては、具体的には、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)等を挙げることができる。

30

【0099】

また、複合材料に用いることのできるカルバゾール誘導体としては、他に、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-(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)、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を用いることができる。

40

【0100】

また、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素としては、例えば、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:DPFA)、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

50

セン（略称：DPA nth）、2-tert-ブチルアントラセン（略称：t-BuA nth）、9,10-ビス（4-メチル-1-ナフチル）アントラセン（略称：DMNA）、2-tert-ブチル-9,10-ビス〔2-（1-ナフチル）フェニル〕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、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'-ビアントリル、10,10'-ジフェニル-9,9'-ビアントリル、10,10'-ビス（2-フェニルフェニル）-9,9'-ビアントリル、10,10'-ビス〔（2,3,4,5,6-ペンタフェニル）フェニル〕-9,9'-ビアントリル、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-ブチル）ペリレン等が挙げられる。また、この他、ペンタセン、コロネン等も用いることができる。このように、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有し、炭素数14～42である芳香族炭化水素を用いることがより好ましい。

【0101】

なお、複合材料に用いることのできる芳香族炭化水素は、ビニル骨格を有していてもよい。ビニル基を有している芳香族炭化水素としては、例えば、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）等が挙げられる。

【0102】

また、ポリ（N-ビニルカルバゾール）（略称：PVK）やポリ（4-ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）、ポリ〔N-（4-〔N'-〔4-（4-ジフェニルアミノ）フェニル〕フェニル-N'-フェニルアミノ〕フェニル）メタクリルアミド〕（略称：PTPDMA）、ポリ〔N,N'-ビス（4-ブチルフェニル）-N,N'-ビス（フェニル）ベンジジン〕（略称：Poly-TPD）等の高分子化合物を用いることもできる。

【0103】

正孔注入層を形成することによって、正孔の注入性が良好となり、駆動電圧の小さい発光素子を得ることが可能となる。

【0104】

正孔輸送層112は、正孔輸送性の物質を含む層である。正孔輸送性の物質としては、例えば、4,4'-ビス〔N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（略称：NPB）や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）、4,4',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-（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）、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）などの芳香族アミン化合物等を用いることができる。ここに述べた物質は、正孔輸送性が高く、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。また、上述の複合材料における正孔輸送性の物質として挙げた有機化合物も正孔輸送層112に用いることができる。また、ポリ（N-ビニルカルバゾール）（略称：PVK）やポリ（4-ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）等の高分子化合物を用いることもできる。なお、正孔輸送性の物質を含む層は、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。

【0105】

発光層113は、実施の形態1で説明したような構成を有している。このため、本実施の形態における発光素子は発光効率が良好であり、含まれる複数のりん光性化合物からバランスよく発光が得られる。発光層113の主な構成については実施の形態1の記載を参照されたい。

10

20

30

40

50

【0106】

発光層113において、第1のりん光性化合物113Da乃至第3のりん光性化合物113Dcとして用いることが可能な材料としては、実施の形態1で説明したような関係を有する組み合わせであれば、特に限定は無い。第1のりん光性化合物113Da乃至第3のりん光性化合物113Dcとしては例えば、以下のようなものが挙げられる。

【0107】

トリス{2-[5-(2-メチルフェニル)-4-(2,6-ジメチルフェニル)-4H-1,2,4-トリアゾール-3-イル-N2]フェニル-C}イリジウム(III)(略称:Ir(mppztz-dmp)₃)、トリス(5-メチル-3,4-ジフェニル-4H-1,2,4-トリアゾラト)イリジウム(III)(略称:Ir(Mptz)₃)、トリス[4-(3-ピフェニル)-5-イソプロピル-3-フェニル-4H-1,2,4-トリアゾラト]イリジウム(III)(略称:Ir(iPrptz-3b)₃)のような4H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-フェニル-1H-1,2,4-トリアゾラト]イリジウム(III)(略称:Ir(Mptz1-mp)₃)、トリス(1-メチル-5-フェニル-3-プロピル-1H-1,2,4-トリアゾラト)イリジウム(III)(略称:Ir(Prptz1-Me)₃)のような1H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、fac-トリス[1-(2,6-ジイソプロピルフェニル)-2-フェニル-1H-イミダゾール]イリジウム(III)(略称:Ir(iPrpmi)₃)、トリス[3-(2,6-ジメチルフェニル)-7-メチルイミダゾ[1,2-f]フェナントリジナト]イリジウム(III)(略称:Ir(dmpimpit-Me)₃)のようなイミダゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,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:FIracac)のような電子吸引基を有するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属イリジウム錯体が挙げられる。これらは青色のりん光発光を示す化合物であり、440nmから520nmに発光のピークを有する化合物である。上述した中でも、4H-トリアゾール、1H-トリアゾール、イミダゾールのようなボリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、正孔トラップ性が高い。したがって、これらの化合物を本発明の一態様の発光素子における第1のりん光性化合物として用い、且つ第1の発光層が第2の発光層よりも陰極側に設けられ、且つ第2の発光層が正孔輸送性である場合(具体的には、第2のホスト材料が正孔輸送材料である場合)、キャリアの再結合領域を第1の発光層内に制御することが容易となるため好ましい。なお、4H-トリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも優れるため、特に好ましい。

【0108】

また、トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(mpppm)₃)、トリス(4-t-ブチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(tBuppm)₃)、(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(mppm)₂(acac))、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(tBuppm)₂(acac))、(アセチルアセトナト)ビス[6-(2-ノルボルニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(略称:Ir(nbppm)₂(acac))、(アセチルアセトナト)ビス[5-メチル-6-(2-メチルフェニル)-4-フェニルピリミジナト]イリジウム(III)(略称:Ir(mppmpm)₂(acac))、(アセチルアセトナト

10

20

30

40

50

)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)₂(acac))のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(3,5-ジメチル-2-フェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(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))のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(略称:Ir(pppy)₃)、ビス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:Ir(pppy)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)、トリス(2-フェニルキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(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)アセチルアセトナト(略称:Ir(pq)₂(acac))のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、トリス(アセチルアセトナト)(モノフェナントロリン)テルビウム(III)(略称:Tb(acac)₃(Phen))のような希土類金属錯体が挙げられる。これらは主に緑色のりん光発光を示す化合物であり、500nm~600nmに発光のピークを有する。上述した中でも、ピリミジン、ピラジンのようなジアジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、正孔トラップ性が弱く、電子トラップ性が高い。したがって、これらの化合物を本発明の一態様の発光素子における第1のりん光性化合物として用い、且つ第1の発光層が第2の発光層よりも陽極側に設けられ、且つ第2の発光層が電子輸送性である場合(具体的には、第2のホスト材料が電子輸送材料である場合)、キャリアの再結合領域を第1の発光層内に制御することが容易となるため好ましい。なお、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも際だって優れるため、特に好ましい。

【0109】

また、(ジイソブチリルメタナト)ビス[4,6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト]イリジウム(III)(略称:Ir(5mdppm)₂(dibm))、ビス[4,6-ビス(3-メチルフェニル)ピリミジナト](ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:Ir(5mdppm)₂(dpm))、ビス[4,6-ジ(ナフタレン-1-イル)ピリミジナト](ジピバロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:Ir(d1npm)₂(dpm))のようなピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、(アセチルアセトナト)ビス(2,3,5-トリフェニルピラジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(tppr)₂(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)₂(dpm))、(アセチルアセトナト)ビス[2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト]イリジウム(III)(略称:Ir(Fdpq)₂(acac))のようなピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、トリス(1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)(略称:Ir(piq)₃)、ビス(1-フェニルイソキノリナト-N, C^{2'})イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:Ir(piq)₂(acac))のようなピリジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体の他、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)のような白金錯体や、トリス(1,3-ジフェニル-1,3-プロパンジオナト)(モノフェナントロリン)ユーロピウム(III)(略称:Eu(DBM)₃(Phen))、トリス[1-(2-テノイル)-3,3,3-トリフルオロアセトナト](モノフェナントロリン)ユーロピウム(III)(略称:Eu(TTA)₃(Phen))のような希土類金属錯体が挙げられる。これらは、赤色のりん光発光を示す化合物であり、600nmから700nmに発光のピークを有する。上述した中でも、ピリミジン、ピラジンのようなジアジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、正孔トラップ性が弱く、電子トラップ性が高い。したがって、ジアジン骨

10

20

30

40

50

格を有する有機金属イリジウム錯体を第2のりん光性化合物として用い、且つ第1の発光層が第2の発光層よりも陰極側に設けられ、且つ第2の発光層が正孔輸送性である場合（具体的には、第2のホスト材料が正孔輸送材料である場合）、キャリアの再結合領域を第1の発光層内に制御することが容易となるため好ましい。なお、ピリミジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、信頼性や発光効率にも際だって優れるため、特に好ましい。また、ピラジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体は、色度の良い赤色発光が得られるため、白色発光素子に適用すると演色性を高めることができる。

【0110】

また、以上で述べたりん光性化合物の他、公知のりん光性発光材料の中から、第1のりん光性化合物113Da乃至第3のりん光性化合物113Dcを選択し、用いてもよい。

10

【0111】

なお、りん光性化合物（第1のりん光性化合物113Da乃至第3のりん光性化合物113Dc）に換えて、熱活性化遅延蛍光を示す材料、すなわち熱活性化遅延蛍光（TADF）材料を用いても良い。ここで、遅延蛍光とは、通常の蛍光と同様のスペクトルを持ちながら、寿命が著しく長い発光をいう。その寿命は、 10^{-6} 秒以上、好ましくは 10^{-3} 秒以上である。熱活性化遅延蛍光材料として、具体的には、フラーレンやその誘導体、プロフラビン等のアクリジン誘導体、エオシン等が挙げられる。また、マグネシウム（Mg）、亜鉛（Zn）、カドミウム（Cd）、スズ（Sn）、白金（Pt）、インジウム（In）、もしくはパラジウム（Pd）等を含む金属含有ポルフィリンが挙げられる。該金属含有ポルフィリンとしては、例えば、プロトポルフィリン-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （Proto IX））、メソポルフィリン-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （Meso IX））、ヘマトポルフィリン-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （Hemato IX））、コプロポルフィリンテトラメチルエステル-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （Copro I I I - 4 Me））、オクタエチルポルフィリン-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （OEP））、エチオポルフィリン-フッ化スズ錯体（ SnF_2 （Etio I））、オクタエチルポルフィリン-塩化白金錯体（ PtCl_2 OEP）等が挙げられる。さらに、2-（ビフェニル-4-イル）-4,6-ビス（12-フェニルインドロ[2,3-a]カルバゾール-11-イル）-1,3,5-トリアジン（PIC-TRZ）等の電子過剰型複素芳香環及び電子不足型複素芳香環を有する複素環化合物を用いることもできる。なお、電子過剰型複素芳香環と電子不足型複素芳香環とが直接結合した物質は、電子過剰型複素芳香環のドナー性と電子不足型複素芳香環のアクセプター性が共に強くなり、 S_1 と T_1 のエネルギー差が小さくなるため、特に好ましい。

20

30

【0112】

上記第1のホスト材料113Ha1、第2のホスト材料113Ha2、第1のキャリア輸送性化合物113H₁乃至第4のキャリア輸送性化合物113H₄として用いることが可能な材料は、実施の形態1で明示したため、繰り返すこととなる記載を省略する。

【0113】

発光層113は、真空蒸着法での共蒸着や、混合溶液としてインクジェット法やスピンコート法やディップコート法などを用いて作製することができる。

【0114】

電子輸送層114は、電子輸送性の物質を含む層である。例えば、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（略称：Alq）、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（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（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（略称：BALq）など、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等からなる層である。また、この他ビス[2-（2-ヒドロキシフェニル）ベンゾオキサゾラト]亜鉛（略称：Zn（BOX）₂）、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）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、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1,3

40

50

、4 - オキサジアゾール（略称：PBD）や、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 - ビフェニリル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - tert - ブチルフェニル) - 1, 2, 4 - トリアゾール（略称：TAZ）、バソフェナントロリン（略称：BPhen）、バソキュプロイン（略称：BCP）なども用いることができる。ここに述べた物質は、電子輸送性が高く、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、上述した電子輸送性のホスト材料を電子輸送層 114 に用いても良い。

【0115】

また、電子輸送層 114 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。

【0116】

また、電子輸送層と発光層との間に電子キャリアの移動を制御する層を設けても良い。これは上述したような電子輸送性の高い材料に、電子トラップ性の高い物質を少量添加した層であって、電子キャリアの移動を抑制することによって、キャリアバランスを調節することが可能となる。このような構成は、発光層を電子が突き抜けてしまうことにより発生する問題（例えば素子寿命の低下）の抑制に大きな効果を発揮する。

【0117】

また、電子輸送層 114 と第 2 の電極 102 との間に、第 2 の電極 102 に接して電子注入層 115 を設けてもよい。電子注入層 115 としては、フッ化リチウム（LiF）、フッ化セシウム（CsF）、フッ化カルシウム（CaF₂）等のようなアルカリ金属又は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。例えば、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属又はそれらの化合物を含有させたものを用いることができる。なお、電子注入層 115 として、電子輸送性を有する物質からなる層中にアルカリ金属又はアルカリ土類金属を含有させたものを用いることにより、第 2 の電極 102 からの電子注入が効率良く行われるためより好ましい。

【0118】

第 2 の電極 102 を形成する物質としては、仕事関数の小さい（具体的には 3.8 eV 以下）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。このような陰極材料の具体例としては、リチウム（Li）やセシウム（Cs）等のアルカリ金属、およびマグネシウム（Mg）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）等の元素周期表の第 1 族または第 2 族に属する元素、およびこれらを含む合金（MgAg、AlLi）、ユウロピウム（Eu）、イッテルビウム（Yb）等の希土類金属およびこれらを含む合金等が挙げられる。しかしながら、第 2 の電極 102 と電子輸送層との間に、電子注入層を設けることにより、仕事関数の大小に関わらず、Al、Ag、酸化インジウム - 酸化錫、ケイ素若しくは酸化ケイ素を含有した酸化インジウム - 酸化錫等様々な導電性材料を第 2 の電極 102 として用いることができる。これら導電性材料は、スパッタリング法やインクジェット法、スピンコート法等を用いて成膜することが可能である。

【0119】

また、EL 層 103 の形成方法としては、乾式法、湿式法を問わず、種々の方法を用いることができる。例えば、真空蒸着法、インクジェット法またはスピンコート法など用いても構わない。また各電極または各層ごとに異なる成膜方法を用いて形成しても構わない。

【0120】

電極についても、ゾル - ゲル法を用いて湿式法で形成しても良いし、金属材料のペーストを用いて湿式法で形成してもよい。また、スパッタリング法や真空蒸着法などの乾式法を用いて形成しても良い。

【0121】

以上のような構成を有する発光素子は、第 1 の電極 101 と第 2 の電極 102 との間に生じた電位差により電流が流れ、発光性の高い物質を含む層である発光層 113 において正孔と電子とが再結合し、発光するものである。つまり発光層 113 に発光領域が形成さ

10

20

30

40

50

れるような構成となっている。

【0122】

発光は、第1の電極101または第2の電極102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101または第2の電極102のいずれか一方または両方は、透光性を有する電極で成る。第1の電極101のみが透光性を有する電極である場合、発光は第1の電極101を通して取り出される。また、第2の電極102のみが透光性を有する電極である場合、発光は第2の電極102を通して取り出される。第1の電極101および第2の電極102がいずれも透光性を有する電極である場合、発光は第1の電極101および第2の電極102を通して、両方から取り出される。

【0123】

なお、第1の電極101と第2の電極102との間に設けられる層の構成は、上記のものには限定されない。しかし、発光領域と電極やキャリア注入層に用いられる金属とが近接することによって生じる消光が抑制されるように、第1の電極101および第2の電極102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が好ましい。

【0124】

また、発光層113に接する正孔輸送層や電子輸送層、特に発光層113における発光領域に近い方に接するキャリア輸送層は、発光層で生成した励起子からのエネルギー移動を抑制するため、その三重項励起エネルギーが発光層を構成する物質が有する三重項励起エネルギーより大きい物質で構成することが好ましい。

【0125】

本実施の形態における発光素子は、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に作製すればよい。基板上に作製する順番としては、第1の電極101側から順に積層しても、第2の電極102側から順に積層しても良い。発光装置は一基板上に一つの発光素子を形成したものでも良いが、複数の発光素子を形成しても良い。一基板上にこのような発光素子を複数作製することで、素子分割された照明装置やパッシ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、ガラス、プラスチックなどからなる基板上に、例えば薄膜トランジスタ(TFT)を形成し、TFTと電気的に接続された電極上に発光素子を作製してもよい。これにより、TFTによって発光素子の駆動を制御するアクティブマトリクス型の発光装置を作製できる。なお、TFTの構造は、特に限定されない。スタガ型のTFTでもよいし逆スタガ型のTFTでもよい。また、TFTに用いる半導体の結晶性についても特に限定されず、非晶質半導体を用いてもよいし、結晶性半導体を用いてもよい。また、TFT基板に形成される駆動回路についても、N型およびP型のTFTからなるものでもよいし、若しくはN型のTFTまたはP型のTFTのいずれか一方からのみなるものであってもよい。

【0126】

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。

【0127】

(実施の形態3)

本実施の形態では、複数の発光ユニットを積層した構成の発光素子(以下、積層型素子ともいう)の態様について、図2を参照して説明する。この発光素子は、第1の電極と第2の電極との間に、複数の発光ユニットを有する発光素子である。一つの発光ユニットは、図1で示したEL層103と同様な構成を有する。つまり、図1で示した発光素子は、1つの発光ユニットを有する発光素子であり、本実施の形態では、複数の発光ユニットを有する発光素子ということができる。

【0128】

図2において、第1の電極501と第2の電極502との間には、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512が積層されており、第1の発光ユニット511と第2の発光ユニット512の間には電荷発生層513が設けられている。第1の電極501と第2の電極502はそれぞれ図1における第1の電極101と第2の電極102に相当し、図1の説明で述べたものと同じものを適用することができる。また、第1の発光ユニ

10

20

30

40

50

ット 5 1 1 と第 2 の発光ユニット 5 1 2 は同じ構成であっても異なる構成であってもよい。

【 0 1 2 9 】

電荷発生層 5 1 3 には、有機化合物と金属酸化物の複合材料が含まれている。この有機化合物と金属酸化物の複合材料は、図 1 で示した正孔注入層 1 1 1 に用いることができる複合材料を用いることができる。有機化合物としては、芳香族アミン化合物、カルバゾール化合物、芳香族炭化水素、高分子化合物（オリゴマー、デンドリマー、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、有機化合物としては、正孔移動度が $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であるものを適用することが好ましい。ただし、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。有機化合物と金属酸化物の複合材料は、キャリア注入性、キャリア輸送性に優れているため、低電圧駆動、低電流駆動を実現することができる。なお、発光ユニットの陽極側の面が電荷発生層に接している場合は、電荷発生層が発光ユニットの正孔輸送層の役割も担うことができるため、発光ユニットは正孔輸送層を設けなくとも良い。

10

【 0 1 3 0 】

なお、電荷発生層 5 1 3 は、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と他の材料により構成される層を積層構造として形成してもよい。例えば、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と、電子供与性物質の中から選ばれた一の化合物と電子輸送性の高い化合物とを含む層とを積層して形成してもよい。また、有機化合物と金属酸化物の複合材料を含む層と、透明導電膜とを積層して形成してもよい。

20

【 0 1 3 1 】

いずれにしても、第 1 の発光ユニット 5 1 1 と第 2 の発光ユニット 5 1 2 に挟まれる電荷発生層 5 1 3 は、第 1 の電極 5 0 1 と第 2 の電極 5 0 2 に電圧を印加したときに、一方の発光ユニットに電子を注入し、他方の発光ユニットに正孔を注入するものであれば良い。例えば、図 2 において、第 1 の電極の電位の方が第 2 の電極の電位よりも高くなるように電圧を印加した場合、電荷発生層 5 1 3 は、第 1 の発光ユニット 5 1 1 に電子を注入し、第 2 の発光ユニット 5 1 2 に正孔を注入するものであればよい。

【 0 1 3 2 】

図 2 では、2 つの発光ユニットを有する発光素子について説明したが、3 つ以上の発光ユニットを積層した発光素子についても、同様に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、一对の電極間に複数の発光ユニットを電荷発生層で仕切って配置することで、電流密度を低く保ったまま、高輝度発光を可能とし、さらに長寿命な素子を実現できる。また、低電圧駆動が可能で消費電力が低い発光装置を実現することができる。

30

【 0 1 3 3 】

また、それぞれの発光ユニット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 つの発光ユニットを有する発光素子において、第 1 の発光ユニットで赤と緑の発光色、第 2 の発光ユニットで青の発光色を得ることで、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。

【 0 1 3 4 】

なお、複数のユニットのうち、少なくとも一つのユニットに、上記発光層 1 1 3 の構成が用いられていることによって、当該ユニットの製造工程を削減することができるため、実用化に有利な多色発光素子を提供することができる。

40

【 0 1 3 5 】

なお、上記構成は、他の実施の形態や本実施の形態中の他の構成と適宜組み合わせることが可能である。

【 0 1 3 6 】

（実施の形態 4）

本実施の形態では、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いた発光装置について説明する。

50

【0137】

本実施の形態では、実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子を用いて作製された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およびC-Dで切断した断面図である。この発光装置は、発光素子の発光を制御するものとして、点線で示された駆動回路部(ソース線駆動回路)601、画素部602、駆動回路部(ゲート線駆動回路)603を含んでいる。また、604は封止基板、605はシール材であり、シール材605で囲まれた内側は、空間607になっている。

【0138】

なお、引き回し配線608はソース線駆動回路601及びゲート線駆動回路603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(フレキシブルプリントサーキット)609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もしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

10

【0139】

次に、断面構造について図3(B)を用いて説明する。素子基板610上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース線駆動回路601と、画素部602中の一つの画素が示されている。

20

【0140】

なお、ソース線駆動回路601はnチャネル型TFT623とpチャネル型TFT624とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路は、種々のCMOS回路、PMOS回路もしくは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。

【0141】

また、画素部602はスイッチング用TFT611と、電流制御用TFT612とそのドレインに電氣的に接続された第1の電極613とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極613の端部を覆って絶縁物614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。

30

【0142】

また、被覆性を良好なものとするため、絶縁物614の上端部また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614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614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614として、ネガ型の感光性樹脂、或いはポジ型の感光性樹脂のいずれも使用することができる。

【0143】

第1の電極613上には、EL層616、および第2の電極617がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極613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、またはケイ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、タングステン膜、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、さらに陽極として機能させることができる。

40

【0144】

また、EL層616は、蒸着マスクを用いた蒸着法、インクジェット法、スピンコート法等の種々の方法によって形成される。EL層616は、実施の形態1乃至実施の形態3

50

で説明したような構成を含んでいる。また、E L 層 6 1 6 を構成する他の材料としては、低分子化合物、または高分子化合物（オリゴマー、デンドリマーを含む）であっても良い。

【0145】

さらに、E L 層 6 1 6 上に形成され、陰極として機能する第 2 の電極 6 1 7 に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料（A l、M g、L i、C a、またはこれらの合金や化合物、M g A g、M g I n、A l L i 等）を用いることが好ましい。なお、E L 層 6 1 6 で生じた光が第 2 の電極 6 1 7 を透過させる場合には、第 2 の電極 6 1 7 として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（I T O、2 ~ 2 0 w t % の酸化亜鉛を含む酸化インジウム、ケイ素を含有したインジウム錫酸化物、酸化亜鉛（Z n O）等）との積層を用いるのが良い。

10

【0146】

なお、第 1 の電極 6 1 3、E L 層 6 1 6、第 2 の電極 6 1 7 でもって、発光素子が形成されている。当該発光素子は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 の構成を有する発光素子である。なお、画素部は複数の発光素子が形成されてなっているが、本実施の形態における発光装置では、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子と、それ以外の構成を有する発光素子の両方が含まれていても良い。

【0147】

さらにシール材 6 0 5 で封止基板 6 0 4 を素子基板 6 1 0 と貼り合わせることで、素子基板 6 1 0、封止基板 6 0 4、およびシール材 6 0 5 で囲まれた空間 6 0 7 に発光素子 6 1 8 が備えられた構造になっている。なお、空間 6 0 7 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ほか、シール材 6 0 5 で充填される場合もある。封止基板には凹部を形成し、そこに乾燥材 6 2 5 を設けると水分の影響による劣化を抑制することができ、好ましい構成である。

20

【0148】

なお、シール材 6 0 5 にはエポキシ系樹脂やガラスフリット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 6 0 4 に用いる材料としてガラス基板や石英基板のほか、F R P（F i b e r g l a s s - R e i n f o r c e d P l a s t i c s）、P V F（ポリビニルフロライド）、ポリエステルまた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

【0149】

以上のようにして、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いて作製された発光装置を得ることができる。

【0150】

本実施の形態における発光装置は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いているため、良好な特性を備えた発光装置を得ることができる。具体的には、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 で示した発光効率の良好な発光素子であり、消費電力の低減された発光装置とすることができる。また、駆動電圧の小さい発光素子であり、駆動電圧の小さい発光装置を得ることができる。

【0151】

40

以上のように、本実施の形態では、アクティブマトリクス型の発光装置について説明したが、この他、パッシブマトリクス型の発光装置であってもよい。図 4 には本発明を適用して作製したパッシブマトリクス型の発光装置を示す。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。図 4 において、基板 9 5 1 上には、電極 9 5 2 と電極 9 5 6 との間には E L 層 9 5 5 が設けられている。電極 9 5 2 の端部は絶縁層 9 5 3 で覆われている。そして、絶縁層 9 5 3 上には隔壁層 9 5 4 が設けられている。隔壁層 9 5 4 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っていくような傾斜を有する。つまり、隔壁層 9 5 4 の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層 9 5 3 の面方向と同様の方向を向き、絶縁層 9 5 3 と接する辺）の方が上辺（絶縁層 9 5 3 の面方向と同様の方向を向き、絶縁層 9

50

5 3 と接しない辺) よりも短い。このように、隔壁層 9 5 4 を設けることで、静電気等に起因した発光素子の不良を防ぐことができる。また、パッシブマトリクス型の発光装置においても、低駆動電圧で動作する実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を有することによって、低消費電力で駆動させることができる。また、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を含むことによって、低消費電力で駆動させることができる。また、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を有することによって信頼性の高い発光装置とすることが可能となる。

【0152】

また、フルカラー表示とするためには、発光素子からの光が発光装置の外部に出る為の光路上に着色層もしくは色変換層を設ければ良い。着色層等を設けることによってフルカラー化した発光装置の例を図 5 (A) 及び (B) に示す。図 5 (A) には基板 1 0 0 1、下地絶縁膜 1 0 0 2、ゲート絶縁膜 1 0 0 3、ゲート電極 1 0 0 6、1 0 0 7、1 0 0 8、第 1 の層間絶縁膜 1 0 2 0、第 2 の層間絶縁膜 1 0 2 1、周辺部 1 0 4 2、画素部 1 0 4 0、駆動回路部 1 0 4 1、発光素子の第 1 の電極 1 0 2 4 W、1 0 2 4 R、1 0 2 4 G、1 0 2 4 B、隔壁 1 0 2 5、EL 層 1 0 2 8、発光素子の第 2 の電極 1 0 2 9、封止基板 1 0 3 1、シール材 1 0 3 2 などが図示されている。また、着色層 (赤色の着色層 1 0 3 4 R、緑色の着色層 1 0 3 4 G、青色の着色層 1 0 3 4 B) は透明な基材 1 0 3 3 に設ける。また、黒色層 (ブラックマトリックス) 1 0 3 5 をさらに設けても良い。着色層及び黒色層が設けられた透明な基材 1 0 3 3 は、位置合わせし、基板 1 0 0 1 に固定する。なお、着色層、及び黒色層は、オーバーコート層 1 0 3 6 で覆われている。また、本実施の形態においては、光が着色層を透過せずに外部へ出る発光層と、各色の着色層を透過して外部に光が出る発光層とがあり、着色層を透過しない光は白、着色層を透過する光は赤、青、緑となることから、4 色の画素で映像を表現することができる。

【0153】

また、以上に説明した発光装置では、TF T が形成されている基板 1 0 0 1 側に光を取り出す構造 (ボトムエミッション型) の発光装置としたが、封止基板 1 0 3 1 側に発光を取り出す構造 (トップエミッション型) の発光装置としても良い。トップエミッション型の発光装置の断面図を図 6 に示す。この場合、基板 1 0 0 1 は光を通さない基板を用いることができる。TF T と発光素子の陽極とを接続する接続電極を作製するまでは、ボトムエミッション型の発光装置と同様に形成する。その後、第 3 の層間絶縁膜 1 0 3 7 を電極 1 0 2 2 を覆って形成する。この絶縁膜は平坦化の役割を担っていても良い。第 3 の層間絶縁膜 1 0 3 7 は第 2 の層間絶縁膜と同様の材料の他、他の公知の材料を用いて形成することができる。

【0154】

発光素子の第 1 の電極 1 0 2 4 W、1 0 2 4 R、1 0 2 4 G、1 0 2 4 B はここでは陽極とするが、陰極であっても構わない。また、図 6 のようなトップエミッション型の発光装置である場合、第 1 の電極を反射電極とすることが好ましい。EL 層 1 0 2 8 の構成は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 で説明したような構成とし、白色の発光が得られるような素子構造とする。白色の発光が得られる構成としては、EL 層を 2 層用いた場合には一方の EL 層における発光層から青色の光が、もう一方の EL 層における発光層から橙色の光が得られるような構成や、一方の EL 層における発光層から青色の光が、もう一方の EL 層における発光層からは赤色と緑色の光が得られるような構成などが考えられる。また、EL 層を 3 層用いた場合には、それぞれの発光層から、赤色、緑色、青色の発光が得られるようにすることで白色発光を呈する発光素子を得ることができる。なお、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 で示した構成を適用しているのであれば、白色発光を得る構成はこれに限らないことはもちろんである。

【0155】

着色層は、発光素子からの光が外部へと出る光路上に設ける。図 5 (A) のようなボトムエミッション型の発光装置の場合、透明な基材 1 0 3 3 に着色層 1 0 3 4 R、1 0 3 4 G、1 0 3 4 B を設けて基板 1 0 0 1 に固定することによって設けることができる。また

、図 5 (B) のように着色層をゲート絶縁膜 1 0 0 3 と第 1 の層間絶縁膜 1 0 2 0 との間に設ける構成としても良い。図 6 のようなトップエミッションの構造であれば着色層 (赤色の着色層 1 0 3 4 R、緑色の着色層 1 0 3 4 G、青色の着色層 1 0 3 4 B) を設けた封止基板 1 0 3 1 で封止を行うこともできる。封止基板 1 0 3 1 には画素と画素との間に位置するように黒色層 (ブラックマトリックス) 1 0 3 5 を設けても良い。着色層 (赤色の着色層 1 0 3 4 R、緑色の着色層 1 0 3 4 G、青色の着色層 1 0 3 4 B) や黒色層 (ブラックマトリックス) はオーバーコート層 1 0 3 6 によって覆われていても良い。なお封止基板 1 0 3 1 は透光性を有する基板をもちいることとする。

【 0 1 5 6 】

こうして得られた有機発光素子の一对の電極間に電圧を印加すると白色の発光領域 1 0 4 4 W が得られる。また、着色層と組み合わせることで、赤色の発光領域 1 0 4 4 R と、青色の発光領域 1 0 4 4 B と、緑色の発光領域 1 0 4 4 G とが得られる。本実施の形態の発光装置は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いていることから、消費電力の小さい発光装置の実現が可能である。

【 0 1 5 7 】

また、ここでは赤、緑、青、白の 4 色でフルカラー表示を行う例を示したが特に限定されず、赤、緑、青の 3 色でフルカラー表示を行ってもよい。

【 0 1 5 8 】

また、本実施の形態は他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

【 0 1 5 9 】

(実施の形態 5)

本実施の形態では、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を照明装置として用いる例を図 7 を参照しながら説明する。図 7 (B) は照明装置の上面図、図 7 (A) は図 7 (B) における e - f 断面図である。

【 0 1 6 0 】

本実施の形態における照明装置は、支持体である透光性を有する基板 4 0 0 上に、第 1 の電極 4 0 1 が形成されている。第 1 の電極 4 0 1 は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 における第 1 の電極 1 0 1 に相当する。

【 0 1 6 1 】

第 1 の電極 4 0 1 上には補助電極 4 0 2 が設けられている。本実施の形態では、第 1 の電極 4 0 1 側から発光を取り出す例を示したため、第 1 の電極 4 0 1 は透光性を有する材料により形成する。補助電極 4 0 2 は透光性を有する材料の導電率の低さを補うために設けられており、第 1 の電極 4 0 1 の抵抗が高いことによる電圧降下を起因とする発光面内の輝度むらを抑制する機能を有する。補助電極 4 0 2 は少なくとも第 1 の電極 4 0 1 の材料よりも導電率の大きい材料を用いて形成し、好ましくはアルミニウムなどの導電率の大きい材料を用いて形成すると良い。なお、補助電極 4 0 2 における第 1 の電極 4 0 1 と接する部分以外の表面は絶縁層で覆われていることが好ましい。これは、取り出すことができない補助電極 4 0 2 上部からの発光を抑制するためであり、電力効率の低下を抑制するためである。なお、補助電極 4 0 2 の形成と同時に第 2 の電極 4 0 4 に電圧を供給するためのパッド 4 1 2 を形成しても良い。

【 0 1 6 2 】

第 1 の電極 4 0 1 と補助電極 4 0 2 上には E L 層 4 0 3 が形成されている。E L 層 4 0 3 は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に説明した構成を有する。なお、これら構成については当該記載を参照されたい。なお、E L 層 4 0 3 は第 1 の電極 4 0 1 よりも平面的に見て少し大きく形成することが、第 1 の電極 4 0 1 と第 2 の電極 4 0 4 とのショートを抑制する絶縁層の役割も担えるため好ましい構成である。

【 0 1 6 3 】

E L 層 4 0 3 を覆って第 2 の電極 4 0 4 を形成する。第 2 の電極 4 0 4 は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 における第 2 の電極 1 0 2 に相当し、同様の構成を有する。本実施の形態においては、発光は第 1 の電極 4 0 1 側から取り出されるため、第 2 の電極 4 0 4 は反

10

20

30

40

50

射率の高い材料によって形成されることが好ましい。本実施の形態において、第2の電極404はパッド412と接続することによって、電圧が供給されるものとする。

【0164】

以上、第1の電極401、EL層403、及び第2の電極404（及び補助電極402）を有する発光素子を本実施の形態で示す照明装置は有している。当該発光素子は発光効率の高い発光素子であるため、本実施の形態における照明装置は消費電力の小さい照明装置とすることができる。また、当該発光素子は信頼性の高い発光素子であることから、本実施の形態における照明装置は信頼性の高い照明装置とすることができる。

【0165】

以上の構成を有する発光素子を、シール材405を用いて封止基板407を固着し、封止することによって照明装置が完成する。シール材405はどちらか一方でもかまわない。また、内側のシール材405には乾燥剤を混ぜることもでき、これにより、水分を吸着することができ、信頼性の向上につながる。

【0166】

また、パッド412、第1の電極401及び補助電極402の一部をシール材405の外に伸張して設けることによって、外部入力端子とすることができる。また、その上にコンバータなどを搭載したICチップ420などを設けても良い。

【0167】

以上、本実施の形態に記載の照明装置は、EL素子に実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子を有することから、消費電力の小さい照明装置とすることができる。また、駆動電圧の低い照明装置とすることができる。また、信頼性の高い照明装置とすることができる。

【0168】

（実施の形態6）

本実施の形態では、実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子をその一部を含む電子機器の例について説明する。実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子は発光効率が良好であり、消費電力が低減された発光素子である。その結果、本実施の形態に記載の電子機器は、消費電力が低減された発光部を有する電子機器とすることが可能である。また、実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子は、駆動電圧の小さい発光素子であるため、駆動電圧の小さい電子機器とすることが可能である。

【0169】

上記発光素子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、またはテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器の具体例を以下に示す。

【0170】

図8（A）は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置は、筐体7101に表示部7103が組み込まれている。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。表示部7103により、映像を表示することが可能であり、表示部7103は、実施の形態1乃至実施の形態3に記載の発光素子をマトリクス状に配列して構成されている。当該発光素子は、発光効率の良好な発光素子とすることが可能である。また、駆動電圧の小さい発光素子とすることが可能である。また、寿命の長い発光素子とすることが可能である。そのため、当該発光素子で構成される表示部7103を有するテレビジョン装置は消費電力の低減されたテレビジョン装置とすることができる。また、駆動電圧の小さいテレビジョン装置とすることが可能である。また、信頼性の高いテレビジョン装置とすることができる。

【0171】

テレビジョン装置の操作は、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

10

20

30

40

50

により、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部 7 1 0 3 に表示される映像を操作することができる。また、リモコン操作機 7 1 1 0 に、当該リモコン操作機 7 1 1 0 から出力する情報を表示する表示部 7 1 0 7 を設ける構成としてもよい。

【0172】

なお、テレビジョン装置は、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また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）または双方向（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。

【0173】

図 8（B1）はコンピュータであり、本体 7 2 0 1、筐体 7 2 0 2、表示部 7 2 0 3、キーボード 7 2 0 4、外部接続ポート 7 2 0 5、ポインティングデバイス 7 2 0 6 等を含む。なお、このコンピュータは、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 で説明したものと同様の発光素子をマトリクス状に配列して表示部 7 2 0 3 に用いることにより作製される。図 8（B1）のコンピュータは、図 8（B2）のような形態であっても良い。図 8（B2）のコンピュータは、キーボード 7 2 0 4、ポインティングデバイス 7 2 0 6 の代わりに第 2 の表示部 7 2 1 0 が設けられている。第 2 の表示部 7 2 1 0 はタッチパネル式となっており、第 2 の表示部 7 2 1 0 に表示された入力用の表示を指や専用のペンで操作することによって入力を行うことができる。また、第 2 の表示部 7 2 1 0 は入力用表示だけでなく、その他の画像を表示することも可能である。また表示部 7 2 0 3 もタッチパネルであっても良い。二つの画面がヒンジで接続されていることによって、収納や運搬をする際に画面を傷つける、破損するなどのトラブルの発生も防止することができる。なお、このコンピュータは、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子をマトリクス状に配列して表示部 7 2 0 3 に用いることにより作製される。当該発光素子は発光効率の良好な発光素子とすることが可能である。そのため、当該発光素子で構成される表示部 7 2 0 3 を有するコンピュータは消費電力の低減されたコンピュータとすることができる。

【0174】

図 8（C）は携帯型遊技機であり、筐体 7 3 0 1 と筐体 7 3 0 2 の 2 つの筐体で構成されており、連結部 7 3 0 3 により、開閉可能に連結されている。筐体 7 3 0 1 には、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 で説明した発光素子をマトリクス状に配列して作製された表示部 7 3 0 4 が組み込まれ、筐体 7 3 0 2 には表示部 7 3 0 5 が組み込まれている。また、図 8（C）に示す携帯型遊技機は、その他、スピーカ部 7 3 0 6、記録媒体挿入部 7 3 0 7、LED ランプ 7 3 0 8、入力手段（操作キー 7 3 0 9、接続端子 7 3 1 0、センサ 7 3 1 1（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 7 3 1 2）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 7 3 0 4 および表示部 7 3 0 5 の両方、または一方に実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子をマトリクス状に配列して作製された表示部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 8（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 8（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。上述のような表示部 7 3 0 4 を有する携帯型遊技機は、表示部 7 3 0 4 に用いられている発光素子が、良好な発光効率を有することから、消費電力の低減された携帯型遊技機とすることができる。また、表示部 7 3 0 4 に用いられている発光素子が低い駆動電圧で駆動させることができることから、駆動電圧の小さい携帯型遊技機とすることができる。また、表示部 7 3 0 4 に用いられている発光素子が寿命の長い発光素子であることから、信頼性の高い携帯型遊技機とすることができる。

【0175】

図 8（D）は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機は、筐体 7 4 0 1 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、携帯電話機は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子をマトリクス状に配列して作製された表示部 7402 を有している。当該発光素子は発光効率の良好な発光素子とすることが可能である。また、駆動電圧の小さい発光素子とすることが可能である。また、寿命の長い発光素子とすることが可能である。そのため、当該発光素子で構成される表示部 7402 を有する携帯電話機は消費電力の低減された携帯電話機とすることができる。また、駆動電圧の小さい携帯電話機とすることが可能である。また、信頼性の高い携帯電話機とすることが可能である。

【0176】

図 8 (D) に示す携帯電話機は、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構成とすることもできる。この場合、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。

10

【0177】

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。

【0178】

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 の画面のほとんどにキーボードまたは番号ボタンを表示させることが好ましい。

20

【0179】

また、携帯電話機内部に、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。

【0180】

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

30

【0181】

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。

【0182】

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また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。

【0183】

なお、本実施の形態に示す構成は、実施の形態 1 乃至実施の形態 5 に示した構成を適宜組み合わせる用いることができる。

40

【0184】

以上の様に実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を備えた発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いることにより、消費電力の低減された電子機器を得ることができる。

【0185】

図 9 は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子をバックライトに適用した液晶表示装置の一例である。図 9 に示した液晶表示装置は、筐体 901、液晶層 902、バ

50

ックライトユニット 903、筐体 904 を有し、液晶層 902 は、ドライバ IC 905 と接続されている。また、バックライト 903 には、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子が用いられおり、端子 906 により、電流が供給されている。

【0186】

実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を液晶表示装置のバックライトに適用したことにより、消費電力の低減されたバックライトが得られる。また、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いることで、面発光の照明装置が作製でき、また大面積化も可能である。これにより、バックライトの大面積化が可能であり、液晶表示装置の大面積化も可能になる。さらに、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を適用した発光装置は従来と比較し厚みを小さくできるため、表示装置の薄型化も可能となる。

10

【0187】

図 10 は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を、照明装置である電気スタンドに用いた例である。図 10 に示す電気スタンドは、筐体 2001 と、光源 2002 を有し、光源 2002 として、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子が用いられている。

【0188】

図 11 は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を、室内の照明装置 3001 として用いた例である。実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は消費電力の低減された発光装置であるため、消費電力の低減された照明装置とすることができる。また、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は大面積化が可能であるため、大面積の照明装置として用いることができる。また、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は、薄型であるため、薄型化した照明装置として用いることが可能となる。

20

【0189】

実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は、自動車のフロントガラスやダッシュボードにも搭載することができる。図 12 に実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を自動車のフロントガラスやダッシュボードに用いる一態様を示す。表示領域 5000 乃至表示領域 5005 は実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いて設けられる。

【0190】

表示領域 5000 と表示領域 5001 は自動車のフロントガラスに設けられた実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を搭載した表示装置である。実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は、第 1 の電極と第 2 の電極を透光性を有する電極で作製することによって、反対側が透けて見える、いわゆるシースルー状態の表示装置とすることができる。シースルー状態の表示であれば、自動車のフロントガラスに設置したとしても、視界の妨げになることなく設置することができる。なお、駆動のためのトランジスタなどを設ける場合には、有機半導体材料による有機トランジスタや、酸化物半導体を用いたトランジスタなど、透光性を有するトランジスタを用いると良い。

30

【0191】

表示領域 5002 はピラー部分に設けられた実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を搭載した表示装置である。表示領域 5002 には、車体に設けられた撮像手段からの映像を映し出すことによって、ピラーで遮られた視界を補完することができる。また、同様に、ダッシュボード部分に設けられた表示領域 5003 は車体によって遮られた視界を、自動車の外側に設けられた撮像手段からの映像を映し出すことによって、死角を補い、安全性を高めることができる。見えない部分を補完するように映像を映すことによって、より自然に違和感なく安全確認を行うことができる。

40

【0192】

表示領域 5004 や表示領域 5005 はナビゲーション情報、スピードメーターやタコメーター、走行距離、給油量、ギア状態、エアコンの設定など、その他様々な情報を提供することができる。表示は使用者の好みに合わせて適宜その表示項目やレイアウトを変更

50

することができる。なお、これら情報は表示領域 5 0 0 0 乃至表示領域 5 0 0 3 にも設けることができる。また、表示領域 5 0 0 0 乃至表示領域 5 0 0 5 は照明装置として用いることも可能である。

【0193】

実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子は発光効率の高い発光素子とすることができる。また、消費電力の小さい発光装置とすることができる。このことから、表示領域 5 0 0 0 乃至表示領域 5 0 0 5 のような大きな画面を数多く設けても、バッテリーに負荷をかけることが少なく、快適に使用することができることから実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を用いた発光装置または照明装置は、車載用の発光装置又は照明装置として好適に用いることができる。

10

【0194】

図 1 3 (A) 及び図 1 3 (B) は 2 つ折り可能なタブレット型端末の一例である。図 1 3 (A) は、開いた状態であり、タブレット型端末は、筐体 9 6 3 0、表示部 9 6 3 1 a、表示部 9 6 3 1 b、表示モード切り替えスイッチ 9 0 3 4、電源スイッチ 9 0 3 5、省電力モード切り替えスイッチ 9 0 3 6、留め具 9 0 3 3、操作スイッチ 9 0 3 8、を有する。なお、当該タブレット端末は、実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の発光素子を備えた発光装置を表示部 9 6 3 1 a、表示部 9 6 3 1 b の一方又は両方に用いることにより作製される。

【0195】

表示部 9 6 3 1 a は、一部をタッチパネル領域 9 6 3 2 a とすることができ、表示された操作キー 9 6 3 7 にふれることでデータ入力を行うことができる。なお、表示部 9 6 3 1 a においては、一例として半分の領域が表示のみの機能を有する構成、もう半分の領域がタッチパネルの機能を有する構成を示しているが該構成に限定されない。表示部 9 6 3 1 a の全ての領域がタッチパネルの機能を有する構成としても良い。例えば、表示部 9 6 3 1 a の全面をキーボードボタン表示させてタッチパネルとし、表示部 9 6 3 1 b を表示画面として用いることができる。

20

【0196】

また、表示部 9 6 3 1 b においても表示部 9 6 3 1 a と同様に、表示部 9 6 3 1 b の一部をタッチパネル領域 9 6 3 2 b とすることができる。また、タッチパネルのキーボード表示切り替えボタン 9 6 3 9 が表示されている位置に指やスタイラスなどでふれることで表示部 9 6 3 1 b にキーボードボタンを表示することができる。

30

【0197】

また、タッチパネル領域 9 6 3 2 a とタッチパネル領域 9 6 3 2 b に対して同時にタッチ入力することもできる。

【0198】

また、表示モード切り替えスイッチ 9 0 3 4 は、縦表示または横表示などの表示の向きを切り替え、白黒表示やカラー表示の切り替えなどを選択できる。省電力モード切り替えスイッチ 9 0 3 6 は、タブレット型端末に内蔵している光センサで検出される使用時の外光の光量に応じて表示の輝度を最適なものとすることができる。タブレット型端末は光センサだけでなく、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサなどの他の検出装置を内蔵させてもよい。

40

【0199】

また、図 1 3 (A) では表示部 9 6 3 1 b と表示部 9 6 3 1 a の表示面積が同じ例を示しているが特に限定されず、一方のサイズともう一方のサイズが異なってもよく、表示の品質も異なってもよい。例えば一方が他方よりも高精細な表示を行える表示パネルとしてもよい。

【0200】

図 1 3 (B) は、閉じた状態であり、本実施の形態におけるタブレット型端末では、筐体 9 6 3 0、太陽電池 9 6 3 3、充放電制御回路 9 6 3 4、バッテリー 9 6 3 5、DCDC コンバータ 9 6 3 6 を備える例を示す。なお、図 1 3 (B) では充放電制御回路 9 6 3

50

4 の一例としてバッテリー 9 6 3 5、D C D C コンバータ 9 6 3 6 を有する構成について示している。

【0 2 0 1】

なお、タブレット型端末は 2 つ折り可能なため、未使用時に筐体 9 6 3 0 を閉じた状態にすることができる。従って、表示部 9 6 3 1 a、表示部 9 6 3 1 b を保護できるため、耐久性に優れ、長期使用の観点からも信頼性の優れたタブレット型端末を提供できる。

【0 2 0 2】

また、この他にも図 1 3 (A) 及び図 1 3 (B) に示したタブレット型端末は、様々な情報 (静止画、動画、テキスト画像など) を表示する機能、カレンダー、日付又は時刻などを表示部に表示する機能、表示部に表示した情報をタッチ入力操作又は編集するタッチ

10

【0 2 0 3】

タブレット型端末の表面に装着された太陽電池 9 6 3 3 によって、電力をタッチパネル、表示部、または映像信号処理部等に供給することができる。なお、太陽電池 9 6 3 3 は、筐体 9 6 3 0 の一面または二面に設けられていると効率的なバッテリー 9 6 3 5 の充電を行う構成とすることができるため好適である。

【0 2 0 4】

また、図 1 3 (B) に示す充放電制御回路 9 6 3 4 の構成、及び動作について図 1 3 (C) にブロック図を示し説明する。図 1 3 (C) には、太陽電池 9 6 3 3、バッテリー 9 6 3 5、D C D C コンバータ 9 6 3 6、コンバータ 9 6 3 8、スイッチ S W 1 乃至 S W 3、表示部 9 6 3 1 について示しており、バッテリー 9 6 3 5、D C D C コンバータ 9 6 3 6、コンバータ 9 6 3 8、スイッチ S W 1 乃至 S W 3 が、図 1 3 (B) に示す充放電制御回路 9 6 3 4 に対応する箇所となる。

20

【0 2 0 5】

まず外光により太陽電池 9 6 3 3 により発電がされる場合の動作の例について説明する。太陽電池で発電した電力は、バッテリー 9 6 3 5 を充電するための電圧となるよう D C D C コンバータ 9 6 3 6 で昇圧または降圧がなされる。そして、表示部 9 6 3 1 の動作に太陽電池 9 6 3 3 で充電された電力が用いられる際にはスイッチ S W 1 をオンにし、コンバータ 9 6 3 8 で表示部 9 6 3 1 に必要な電圧に昇圧または降圧をすることとなる。また、表示部 9 6 3 1 での表示を行わない際には、S W 1 をオフにし、S W 2 をオンにしてバッテリー 9 6 3 5 の充電を行う構成とすればよい。

30

【0 2 0 6】

なお、太陽電池 9 6 3 3 については、発電手段の一例として示したが、発電手段は特に限定されず、圧電素子 (ピエゾ素子) や熱電変換素子 (ペルティエ素子) などの他の発電手段によってバッテリー 9 6 3 5 の充電を行う構成であってもよい。無線 (非接触) で電力を送受信して充電する無接点電力伝送モジュールや、また他の充電手段を組み合わせる構成としてもよく、発電手段を有さなくとも良い。

【0 2 0 7】

また、上記表示部 9 6 3 1 a 又は 9 6 3 1 b を具備していれば、図 1 3 に示した形状のタブレット型端末に限定されない。

40

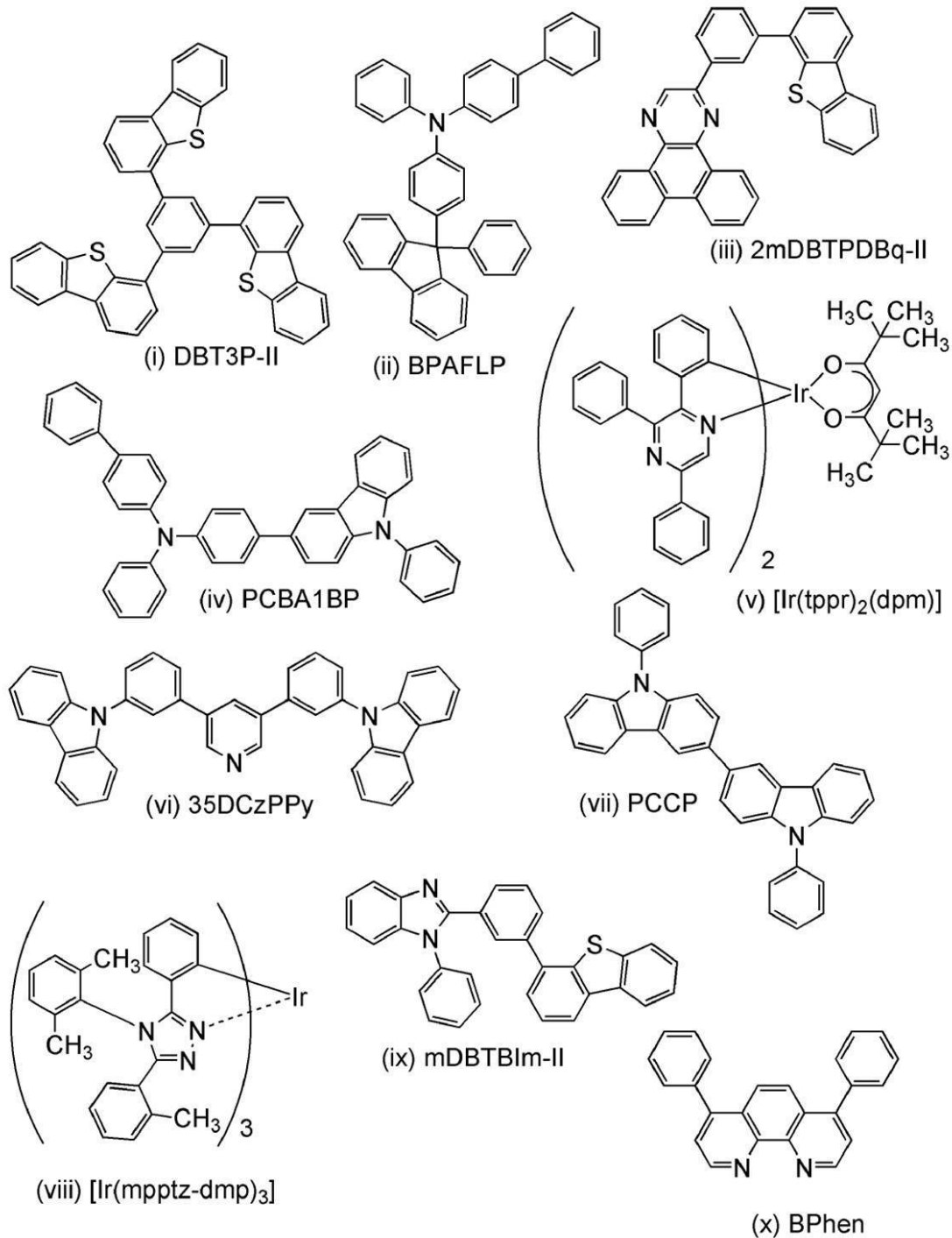
【実施例 1】

【0 2 0 8】

本実施例では実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の本発明の一態様に相当する発光素子の作製方法及び特性について説明する。以下に、本実施例で使用した有機化合物の構造式を示す。

【0 2 0 9】

【化 1】



【 0 2 1 0 】

次に、本実施例の発光素子の作製方法を示す。

【 0 2 1 1 】

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化錫 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 101 を形成した。なお、その膜厚は 110 nm とし、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。ここで、第 1 の電極 101 は、発光素子の陽極として機能する電極である。

【 0 2 1 2 】

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

【 0 2 1 3 】

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

【0214】

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板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101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により上記構造式(i)で表される4, 4', 4'' - (ベンゼン - 1, 3, 5 - 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111を形成した。その膜厚は、40 nmとし、DBT3P - IIと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=DBT3P - II:酸化モリブデン)となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

10

【0215】

次に、正孔注入層111上に、上記構造式(ii)で表される、4 - フェニル - 4' - (9 - フェニルフルオレン - 9 - イル)トリフェニルアミン(略称: BPAFLP)を20 nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層112を形成した。

【0216】

さらに、正孔輸送層112上に、上記構造式(iii)で表される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)と上記構造式(iv)で表される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)と上記構造式(v)で表される(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)₂(dpm)])とを、重量比0.5:0.5:0.05(=2mDBTPDBq - II:PCBA1BP:[Ir(tppr)₂(dpm)])となるように20 nm共蒸着して第2の発光層113bとし、上記構造式(vi)で表される3, 5 - ビス[3 - (9H - カルバゾール - 9 - イル)フェニル]ピリジン(略称: 35DCzPPy)と上記構造式(vii)で表される、3, 3' - ビス(9 - フェニル - 9H - カルバゾール)(略称: PCCP)と、上記構造式(viii)で表されるトリス{2 - [5 - (2 - メチルフェニル) - 4 - (2, 6 - ジメチルフェニル) - 4H - 1, 2, 4 - トリアゾール - 3 - イル - N2]フェニル - C}イリジウム(III)(略称: [Ir(mppztz - dmp)₃])とを、重量比0.5:0.5:0.06(=35DCzPPy:PCCP:[Ir(mppztz - dmp)₃])となるように30 nm共蒸着して、第1の発光層113aを形成した。

20

30

【0217】

その後、発光層113上に上記構造式(ix)で表される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: mDBTBIm - II)を膜厚10 nmとなるように成膜し、さらに、上記構造式(x)で表されるバソフェナントロリン(略称: BPhen)を20 nmとなるように成膜して、電子輸送層114を形成した。

40

【0218】

電子輸送層114を形成したら、その後、フッ化リチウム(LiF)を1 nmの膜厚となるように蒸着し、電子注入層115を形成した。

【0219】

最後に、陰極として機能する第2の電極102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1を作製した。

【0220】

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。

【0221】

以上により得られた発光素子1の素子構造を表1に示す。

50

【 0 2 2 2 】

【 表 1 】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層		電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子 1	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoOx (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	*	**	mDBTBIIm-II (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* 2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tppr)₂(dpm)] (0.5:0.5:0.05 20nm)** 35DCzPPy:PCCP:[Ir(mpptz-dmp)₃] (0.5:0.5:0.06 30nm)

10

【 0 2 2 3 】

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、大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に 80℃ にて 1 時間熱処理）を行った。

【 0 2 2 4 】

この発光素子の素子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 2 5 】

発光素子 1 に 0.1 mA の電流を流した際の発光スペクトルを、図 1 4 に示す。図 1 4 より、発光素子 1 は [Ir(mpptz-dmp)₃] 由来の青色の波長の光と [Ir(tppr)₂(dpm)] 由来の赤色の波長の光がどちらも含まれる発光スペクトルを示すことがわかった。

20

【 0 2 2 6 】

続いて、発光素子 1 の輝度 - 電流効率特性を図 1 5 に、輝度 - 外部量子効率特性を図 1 6 に、電圧 - 輝度特性を図 1 7 に、輝度 - パワー効率特性を図 1 8 に示す。また、1000 cd/m² 付近における主要な特性を表 2 に示す。

【 0 2 2 7 】

【 表 2 】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	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 1	4.6	0.11	2.6	(0.53,0.36)	36	24	25

30

【 0 2 2 8 】

以上のように、発光素子 1 は良好な素子特性を示すことがわかった。特に、図 1 5、図 1 6 からわかるように、非常に良好な発光効率を有し、外部量子効率は実用輝度（1000 cd/m²）付近において、25%と高い値を示した。また、図 1 7 から、発光素子 1 が良好な電圧 - 輝度特性を有し、駆動電圧の小さい発光素子であることがわかる。結果として図 1 8 に示すように、良好なパワー効率を有する発光素子となった。

40

【 0 2 2 9 】

このように本発明の一態様に相当する発光素子 1 は良好な素子特性を有し、且つ、2 種類の発光中心物質からの光がバランスよく得られる発光素子であることがわかった。

【 実施例 2 】

【 0 2 3 0 】

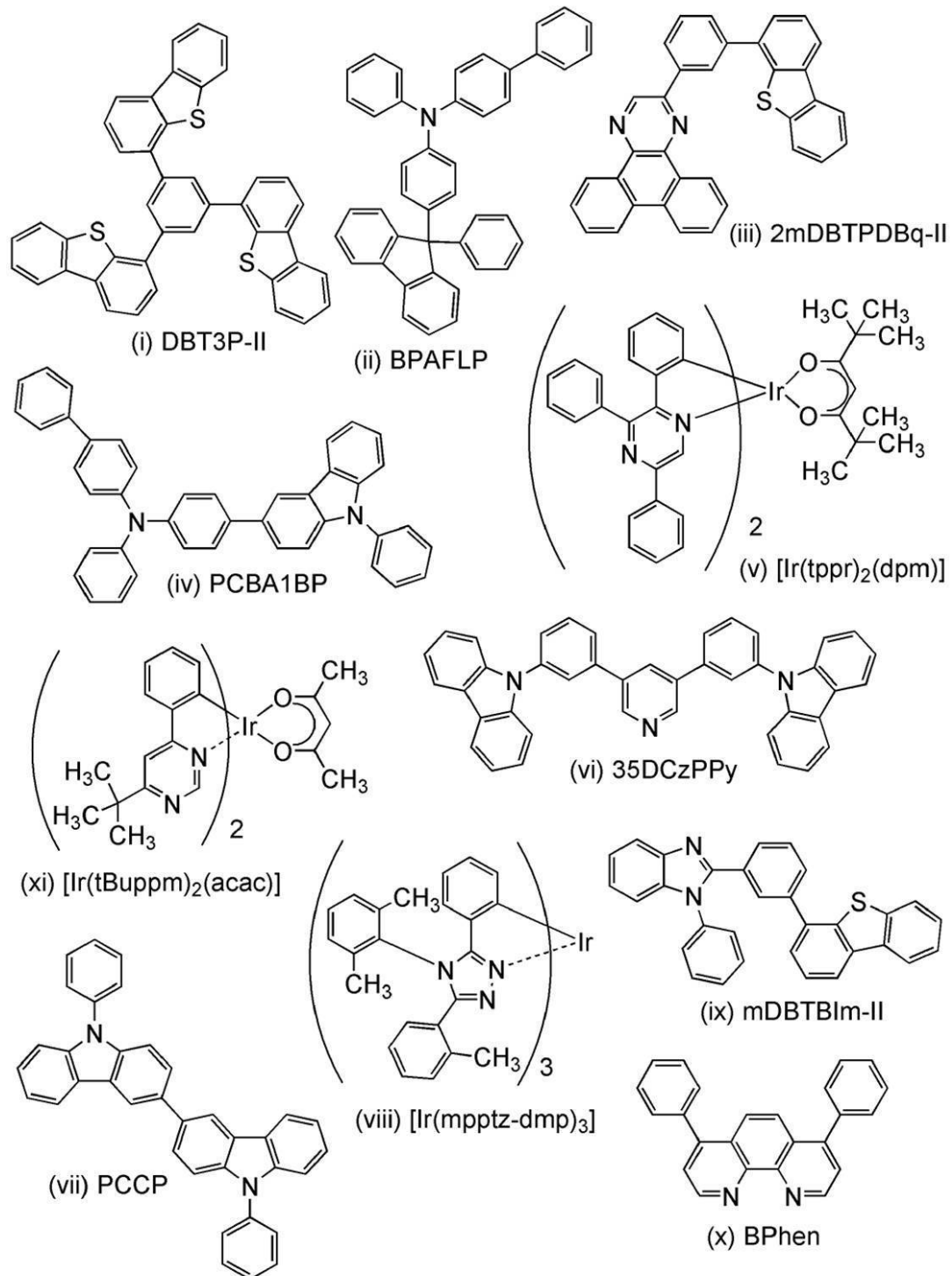
本実施例では実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の本発明の一態様に相当する発光素子の作製方法及び特性について説明する。以下に、本実施例で使用した有機化合物の構造

50

式を示す。本実施例では発光層 1 1 3 に第 1 の発光層 1 1 3 a、第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c が含まれる発光素子 2 及び発光素子 3 を作製した。

【 0 2 3 1 】

【 化 2 】



10

20

30

40

50

【 0 2 3 2 】

次に、本実施例の発光素子 2 の作製方法を示す。

【 0 2 3 3 】

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化錫 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 1 0 1 を形成した。なお、その膜厚は 110 nm とし、電極面積は 2 mm × 2 mm とした。ここで、第 1 の電極 1 0 1 は、発光素子の陽極として機能する電極である。

【0234】

次に、基板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。

【0235】

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、基板を30分程度放冷した。

【0236】

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板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101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により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111を形成した。その膜厚は、40nmとし、DBT3P-IIと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=DBT3P-II:酸化モリブデン)となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

10

【0237】

次に、正孔注入層111上に、BPAFLPを20nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層112を形成した。

【0238】

さらに、正孔輸送層112上に、2mDBTPDBq-IIとPCBA1BPと[Ir(tppr)₂(dpm)]とを、重量比0.5:0.5:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tppr)₂(dpm)])となるように10nm共蒸着して第3の発光層113cとし、2mDBTPDBq-IIとPCBA1BPと上記構造式(xi)で表される(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)₂(acac)])とを、重量比0.5:0.5:0.05(=2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tBuppm)₂(acac)])となるように5nm共蒸着して第2の発光層113bとし、35DCzPPyとPCCPと[Ir(mppztz-dmp)₃]とを、重量比0.5:0.5:0.06(=35DCzPPy:PCCP:[Ir(mppztz-dmp)₃])となるように30nm共蒸着して、第1の発光層113aを形成した。

20

30

【0239】

その後、発光層113上にmDBTBIm-IIを膜厚10nmとなるように成膜し、さらに、BPhenを20nmとなるように成膜して、電子輸送層114を形成した。

【0240】

電子輸送層114を形成したら、その後、フッ化リチウム(LiF)を1nmの膜厚となるように蒸着し、電子注入層115を形成した。

【0241】

最後に、陰極として機能する第2の電極102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。

40

【0242】

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。

【0243】

続いて、発光素子3の作製方法について説明する。発光素子3は、発光素子2における第2の発光層113bの膜厚を5nmから10nmに変更することによって作製した。その他の構成については発光素子2と同じである。

【0244】

以上により得られた発光素子2及び発光素子3の素子構造を表3に示す。

【0245】

【表 3】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層			電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子 2	ITSO (110nm)	DBT3P-II:MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	*	**	***	mDBTBIIm-II (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
発光素子 3	ITSO (110nm)	DBT3P-II:MoO _x (4:2 40nm)	BPAFLP (20nm)	*	****	***	mDBTBIIm-II (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* 2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tppr)₂(dpm)] (0.5:0.5:0.05 10nm)

** 2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.5:0.5:0.05 5nm)

*** 35DCzPPy:PCCP:[Ir(mpptz-dmp)₃] (0.5:0.5:0.06 30nm)

**** 2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.5:0.5:0.05 10nm)

【0246】

発光素子 2 及び発光素子 3 を、窒素雰囲気中のグローブボックス内において、大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に 80℃にて 1 時間熱処理）を行った。

【0247】

この発光素子の素子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。

【0248】

発光素子 2 及び発光素子 3 に 0.1 mA の電流を流した際の発光スペクトルを、図 19 に示す。図 19 では発光素子 2 及び発光素子 3 共に、[Ir(mpptz-dmp)₃] 由来の青色の波長の光と、[Ir(tBuppm)₂(acac)] 由来の緑色の光、そして [Ir(tppr)₂(dpm)] 由来の赤色の波長の光がいずれも含まれる発光スペクトルを示すことがわかった。特に発光素子 2 は照明における JIS 規格に合致する光を発光した。

【0249】

続いて、発光素子 2 及び発光素子 3 の輝度 - 電流効率特性を図 20 に、輝度 - 外部量子効率特性を図 21 に、電圧 - 輝度特性を図 22 に、輝度 - パワー効率特性を図 23 に示す。また、1000 cd/m² 付近における主要な特性を表 4 に示す。

【0250】

【表 4】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	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 2	4.6	0.083	2.1	(0.46,0.44)	47	32	22
発光素子 3	4.6	0.084	2.1	(0.44,0.46)	52	36	22

【0251】

以上のように、発光素子 2 及び発光素子 3 は良好な素子特性を示すことがわかった。特に、図 20、図 21 からわかるように、非常に良好な発光効率を有し、外部量子効率は実用輝度（1000 cd/m²）付近において、20%を越える高い値を示した。また、図 2

2 から、発光素子 2 及び発光素子 3 が良好な電圧 - 輝度特性を有し、駆動電圧の小さい発光素子であることがわかる。結果として図 2 3 に示すように、良好なパワー効率を有する発光素子となった。

【 0 2 5 2 】

このように本発明の一態様に相当する発光素子 2 及び発光素子 3 は良好な素子特性を有し、且つ、3 種類の発光中心物質からの光がバランスよく得られる発光素子であることがわかった。

【 実施例 3 】

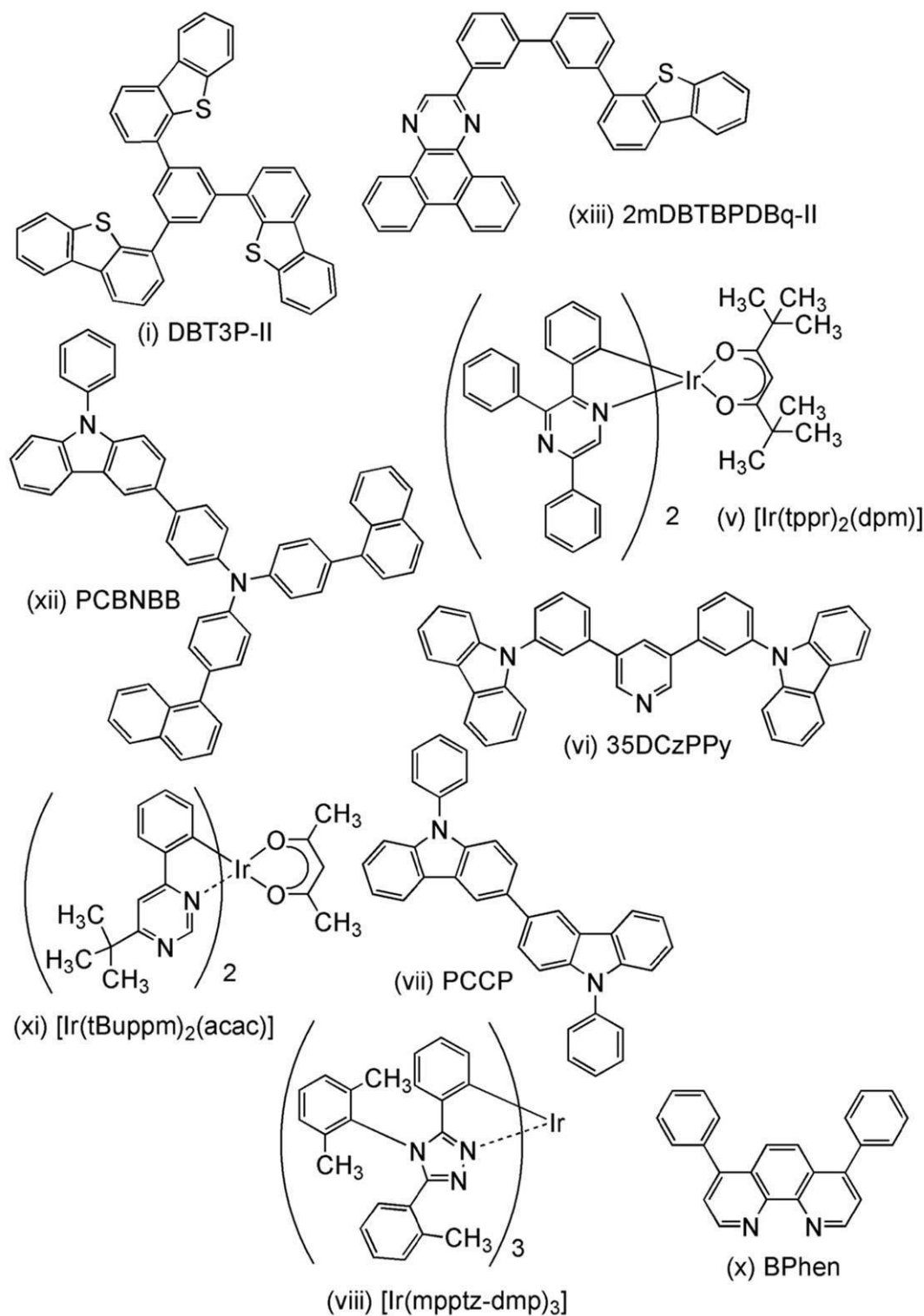
【 0 2 5 3 】

本実施例では実施の形態 1 乃至実施の形態 3 に記載の本発明の一態様に相当する発光素子の作製方法及び特性について説明する。以下に、本実施例で使用した有機化合物の構造式を示す。本実施例では発光層 1 1 3 に第 1 の発光層 1 1 3 a、第 2 の発光層 1 1 3 b 及び第 3 の発光層 1 1 3 c が含まれる発光素子 4 を作製した。

10

【 0 2 5 4 】

【化 3】



10

20

30

40

【0255】

次に、本実施例の発光素子4の作製方法を示す。

【0256】

まず、ガラス基板上に、酸化珪素を含む酸化インジウム - 酸化錫 (ITO) をスパッタリング法にて成膜し、第1の電極101を形成した。なお、その膜厚は110nmとし、電極面積は2mm×2mmとした。ここで、第1の電極101は、発光素子の陽極として機能する電極である。

【0257】

次に、基板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

50

で1時間焼成した後、UVオゾン処理を370秒行った。

【0258】

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、基板を30分程度放冷した。

【0259】

次に、第1の電極101が形成された面が下方となるように、第1の電極101が形成された基板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101上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により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111を形成した。その膜厚は、40nmとし、DBT3P-IIと酸化モリブデンの比率は、重量比で4:2(=DBT3P-II:酸化モリブデン)となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

10

【0260】

次に、正孔注入層111上に、上記構造式(xii)で表される4,4'-ジ(1-ナフチル)-4,4'-((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20nmの膜厚となるように成膜し、正孔輸送層112を形成した。

【0261】

さらに、正孔輸送層112上に、上記構造式(xiii)で表される2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ピフェニル-3-イル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン(略称:2mDBTBPD Bq-II)とPCBNBBと[Ir(tppr)₂(dpm)]とを、重量比0.5:0.5:0.05(=2mDBTBPD Bq-II:PCBNBB:[Ir(tppr)₂(dpm)])となるように20nm共蒸着して第3の発光層113cとし、2mDBTBPD Bq-IIとPCBNBBと[Ir(tBuppm)₂(acac)]とを、重量比0.5:0.5:0.05(=2mDBTBPD Bq-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)])となるように10nm共蒸着して第2の発光層113bとし、35DCzPPyとPCCPと[Ir(mpp tz-dmp)₃]とを、重量比0.7:0.3:0.06(=35DCzPPy:PCCP:[Ir(mpp tz-dmp)₃])となるように30nm共蒸着して、第1の発光層113aを形成した。

20

30

【0262】

その後、発光層113上に35DCzPPyを膜厚10nmとなるように成膜し、さらに、BPhenを20nmとなるように成膜して、電子輸送層114を形成した。

【0263】

電子輸送層114を形成したら、その後、フッ化リチウム(LiF)を1nmの膜厚となるように蒸着し、電子注入層115を形成した。

【0264】

最後に、陰極として機能する第2の電極102として、アルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子4を作製した。

40

【0265】

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。

【0266】

以上により得られた発光素子4の素子構造を表5に示す。

【0267】

【表 5】

	第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層			電子輸送層		電子注入層	第2の電極
発光素子 4	ITSO (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 40nm)	PCBNBB (20nm)	*	**	***	35DCzPPy (10nm)	Bphen (20nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

* 2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(tppr)₂(dpm)] (0.5:0.5:0.05 20nm)

** 2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.5:0.5:0.05 10nm)

*** 35DCzPPy:PCCP:[Ir(mpptz-dmp)₃] (0.7:0.3:0.06 30nm)

10

【0268】

発光素子4を、窒素雰囲気グローブボックス内において、大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業（シール材を素子の周囲に塗布し、封止時に80℃にて1時間熱処理）を行った。

【0269】

この発光素子の素子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。

【0270】

発光素子4に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図24に示す。図24では、[Ir(mpptz-dmp)₃]由来の青色の波長の光と、[Ir(tBuppm)₂(acac)]由来の緑色の光、そして[Ir(tppr)₂(dpm)]由来の赤色の波長の光がいずれも含まれる発光スペクトルを示すことがわかった。

20

【0271】

続いて、発光素子4の輝度-電流効率特性を図25に、輝度-外部量子効率特性を図26に、電圧-輝度特性を図27に、輝度-パワー効率特性を図28に示す。また、1000cd/m²付近における主要な特性を表6に示す。

【0272】

【表 6】

	電圧 (V)	電流 (mA)	電流密度 (mA/cm ²)	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 4	4.4	0.092	2.3	(0.53,0.41)	38	27	23

30

【0273】

以上のように、発光素子4は良好な素子特性を示すことがわかった。特に、図25、図26からわかるように、非常に良好な発光効率を有し、外部量子効率は実用輝度（1000cd/m²）付近において、20%を越える高い値を示した。また、図27から、発光素子4が良好な電圧-輝度特性を有し、駆動電圧の小さい発光素子であることがわかる。結果として図28に示すように、良好なパワー効率を有する発光素子となった。

40

【0274】

このように本発明の一態様に相当する発光素子4は良好な素子特性を有し、且つ、3種類の発光中心物質からの光がバランスよく得られる発光素子であることがわかった。

【0275】

また、初期輝度を3000cd/m²とし、電流密度一定の条件で発光素子4を駆動して、信頼性試験を行った結果を図29に示す。図29は、初期輝度を100%とした規格化輝度の変化を示している。この結果から、発光素子4は駆動時間に伴う輝度低下の小さ

50

い、良好な信頼性を有する発光素子であることがわかる。

【0276】

(参考例1)

上述した実施例において各発光素子に用いた35DCzPPy、PCCP、2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、2mDBTPDBq-II、PCBNBBの三重項励起エネルギーについて測定した。なお、三重項励起エネルギーの測定は、各物質の燐光発光を測定し、燐光発光波長をエレクトロンボルトに換算することにより求めた。測定条件としては、325nmの励起光を各物質に照射し、測定温度10Kで測定した。なお、エネルギー準位の測定は、発光波長より吸収波長から算出した方が精度は高い。しかしながら、三重項励起エネルギーの吸収は極めて微弱であり、測定が困難であることから、こ

10

【0277】

測定した燐光発光を図30乃至図35に示す。また、測定結果を表7にまとめた。この結果からわかるように、第1の発光層に用いられた35DCzPPy及びPCCPは、第2の発光層又は第3の発光層に用いられた2mDBTPDBq-II、PCBA1BP、2mDBTPDBq-II、PCBNBBより三重項励起エネルギーが高いことがわかる。

【0278】

【表7】

20

各物質の三重項励起エネルギー準位

35DCzPPy	2.74 eV
PCCP	2.64 eV
2mDBTPDBq-II	2.40 eV
PCBA1BP	2.46 eV
2mDBTPDBq-II	2.41 eV
PCBNBB	2.21 eV

【0279】

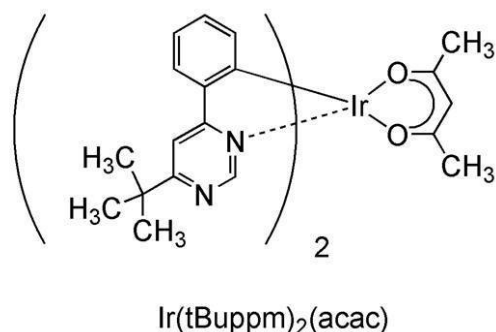
(参考例2)

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-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-²O,O')イリジウム(III))(略称:[Ir(tBuppm)₂(acac)])の合成例を示す。なお、[Ir(tBuppm)₂(acac)]の構造を以下に示す。

30

【0280】

【化4】



40

【0281】

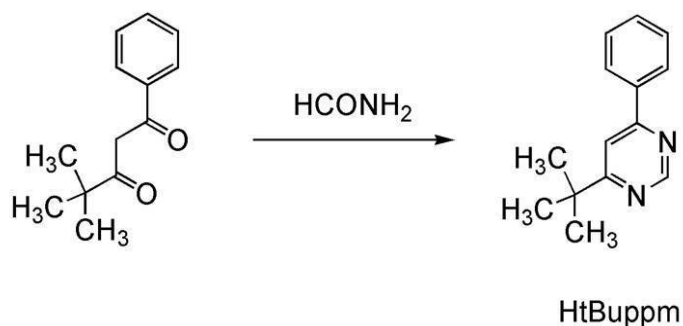
<ステップ1; 4-tert-ブチル-6-フェニルピリミジン(略称:HtBuppm)の合成>

50

まず、4,4-ジメチル-1-フェニルペンタン-1,3-ジオン 2.5 g とホルムアミド 5.0 g 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 の合成スキームを以下に示す。

【0282】

【化 5】



10

【0283】

20

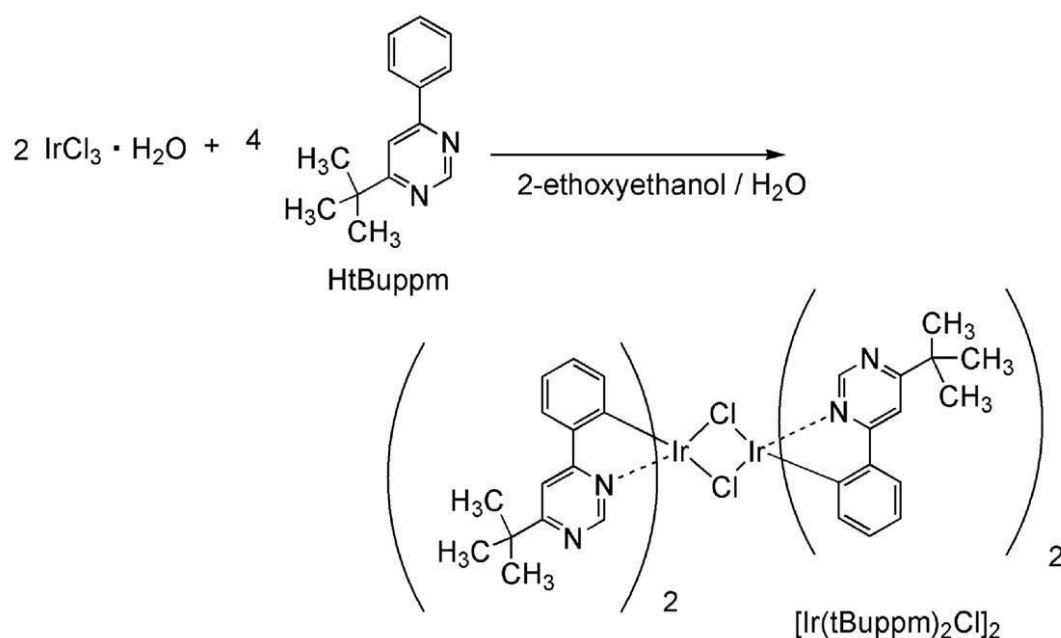
<ステップ 2 ; ジ - μ - クロロ - ビス [ビス (6 - tert - ブチル - 4 - フェニルピリミジナト) イリジウム (III)] (略称 : $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2\text{Cl}]_2$) の合成 >

次に、2-エトキシエタノール 15 mL と水 5 mL、上記ステップ 1 で得た HtBuppm 1.49 g、塩化イリジウム水和物 ($\text{IrCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) 1.04 g 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 (2.45 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吸引濾過、洗浄し、複核錯体 $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2\text{Cl}]_2$ を得た (黄緑色粉末、収率 73%)。ステップ 2 の合成スキームを以下に示す。

【0284】

30

【化 6】



40

【0285】

<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

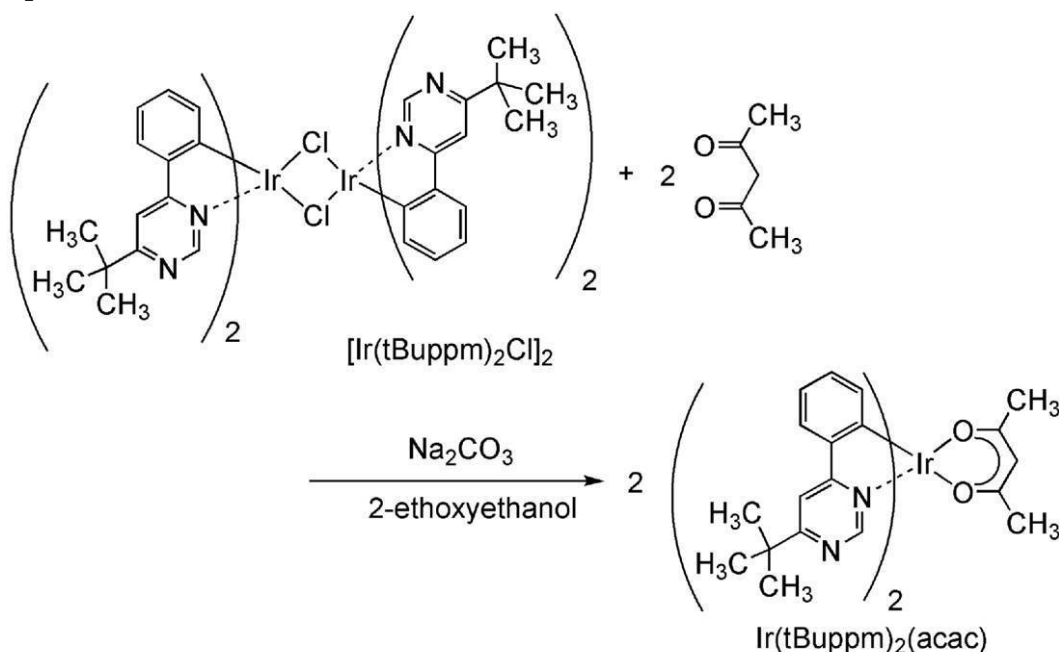
50

ミジナト)イリジウム(III)(略称:[Ir(tBuppm)₂(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)₂Cl]₂ 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の合成スキームを以下に示す。

【0286】

【化7】



【0287】

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、有機金属錯体Ir(tBuppm)₂(acac)が得られたことがわかった。

【0288】

¹H NMR. (CDCl₃): 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)

【0289】

(参考例3)

本参考例では、上記実施例で用いたトリス{2-[5-(2-メチルフェニル)-4-(2,6-ジメチルフェニル)-4H-1,2,4-トリアゾール-3-イル-N2]フェニル-C}イリジウム(III)(略称:[Ir(mppztz-dmp)₃])の合成方法について説明する。[Ir(mppztz-dmp)₃]の構造を以下に示す。

【0290】

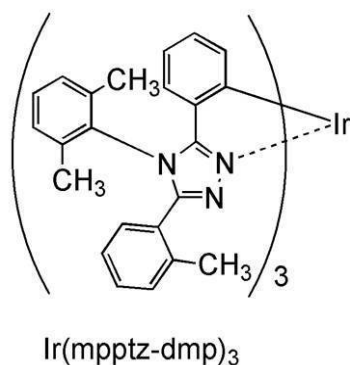
10

20

30

40

【化 8】



10

【0291】

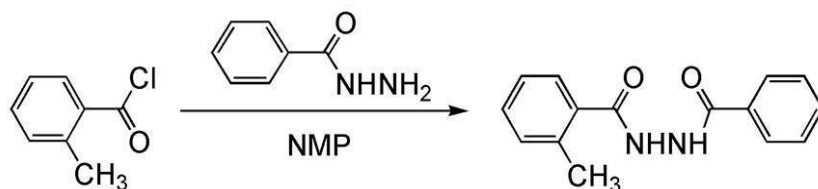
<ステップ1；N - ベンゾイル - N' - 2 - メチルベンゾイルヒドラジドの合成>

まず、ベンゾイルヒドラジン 15.0 g (110.0 mmol)、N - メチル - 2 - ピロリジノン (NMP) 75 ml を 300 ml 三口フラスコに入れ、氷冷下で攪拌した。この混合溶液に o - トルイル酸クロリド 17.0 g (110.0 mmol) と N - メチル - 2 - ピロリジノン (NMP) 15 ml の混合溶液をゆっくり滴下した。滴下後、室温で 24 時間攪拌した。所定時間反応後、この反応溶液を水 500 ml にゆっくり加えると、白色固体が析出した。析出した固体を水と 1 M 塩酸で交互に超音波洗浄した。その後、ヘキサンで超音波洗浄を行い、N - ベンゾイル - N' - 2 - メチルベンゾイルヒドラジドの白色固体を 19.5 g、収率 70 % で得た。以下に、ステップ 1 の合成スキームを示す。

20

【0292】

【化 9】



30

【0293】

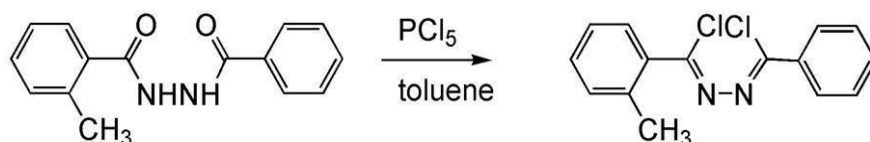
<ステップ2；N - [1 - クロロ - 1 - (2 - メチルフェニル)メチリデン - N' - [1 - クロロ - (1 - フェニル)メチリデン]ヒドラジンの合成>

次に、上記ステップ 1 で得た N - ベンゾイル - N' - 2 - メチルベンゾイルヒドラジド 12.0 g (47.2 mmol)、トルエン 200 ml を 500 ml 三口フラスコに入れた。この混合溶液に五塩化リン 19.4 g (94.4 mmol) を加え、120 °C で 6 時間加熱攪拌した。所定時間反応後、反応溶液を水 200 ml にゆっくりと注ぎ、1 時間攪拌した。攪拌後、有機層と水層を分離し、有機層を水および飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。洗浄後、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。この混合物から自然ろ過により硫酸マグネシウムを除去し、ろ液を濃縮することで、N - [1 - クロロ - 1 - (2 - メチルフェニル)メチリデン] - N' - [1 - クロロ - (1 - フェニル)メチリデン]ヒドラジンの褐色液体を 12.6 g、収率 92 % で得た。ステップ 2 の合成スキームを以下に示す。

40

【0294】

【化 10】



50

【0295】

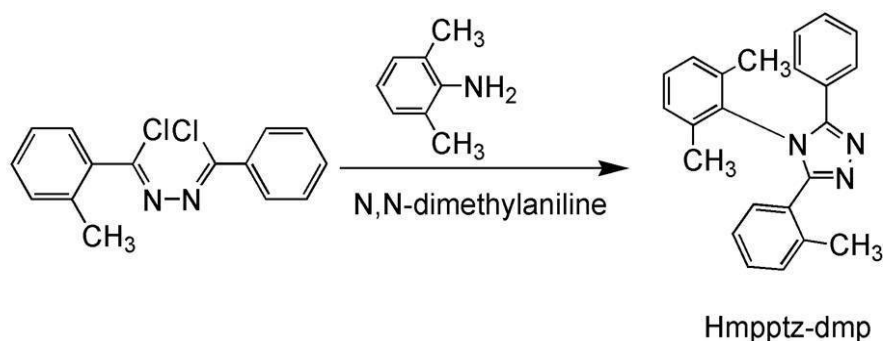
<ステップ3；3 - (2 - メチルフェニル) - 4 - (2, 6 - ジメチルフェニル) - 5 - フェニル - 4H - 1, 2, 4 - トリアゾール (略称；Hmpptz - dmp) の合成>

まず、上記ステップ2で得られたN - [1 - クロロ - 1 - (2 - メチルフェニル) メチリデン] - N' - [1 - クロロ - (1 - フェニル) メチリデン] ヒドラジン12.6g (43.3mmol)、2, 6 - ジメチルアニリン15.7g (134.5mmol)、N, N - ジメチルアニリン100mlを500mlナスフラスコに入れ、120℃で20時間加熱撹拌した。所定時間反応後、この反応溶液を1N塩酸200mlにゆっくり加えた。この溶液にジクロロメタンを加え有機層に目的物を抽出した。得られた有機層を水、炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。自然ろ過により硫酸マグネシウムを除去し、得られたろ液を濃縮し、黒色の液体を得た。この液体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製した。展開溶媒は酢酸エチル：ヘキサン = 1：5とした。得られたフラクションを濃縮し、白色固体を得た。この固体を酢酸エチルにより再結晶を行い、Hmpptz - dmpの白色固体を4.5g、収率31%で得た。ステップ3の合成スキームを以下に示す。

10

【0296】

【化11】



20

【0297】

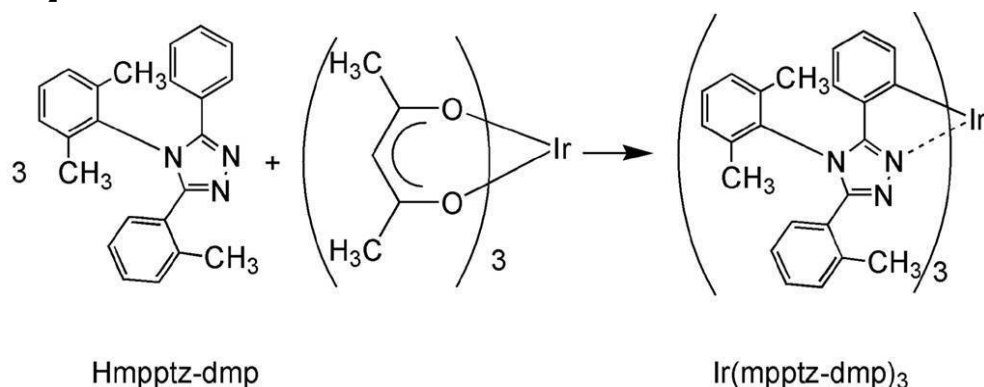
<ステップ4；[Ir(mpptz - dmp)₃]の合成>

上記ステップ3で得た配位子Hmpptz - dmp2.5g (7.4mmol)、トリス(アセチルアセトナト)イリジウム(III)0.7g (1.5mmol)を高温加熱容器に入れ、脱気した。この反応容器を、内部をArフローしながら250℃で48時間加熱撹拌した。所定時間反応後、得られた固体をジクロロメタンで洗浄し、不溶物の緑色固体を吸引ろ過により得た。この固体をトルエンに溶解させ、アルミナとセライトの積層を通してろ過した。得られたフラクションを濃縮し、緑色固体を得た。この固体をトルエンで再結晶を行い、緑色粉末を0.8g、収率45%で得た。ステップ4の合成スキームを以下に示す。

30

【0298】

【化12】



40

【0299】

なお、上記ステップ4で得られた緑色粉末の核磁気共鳴分光法 (¹H - NMR) による

50

分析結果を以下に示す。これより、本合成方法によって、 $[Ir(mppztz-dmp)_3]$ が得られたことがわかった。

【0300】

1H -NMR. (toluene- d_8): 1.82 (s, 9H), 1.90 (s, 9H), 2.64 (s, 9H), 6.56 - 6.62 (m, 9H), 6.67 - 6.75 (m, 9H), 6.82 - 6.88 (m, 3H), 6.91 - 6.97 (t, 3H), 7.00 - 7.12 (m, 6H), 7.63 - 7.67 (d, 3H)

【符号の説明】

【0301】

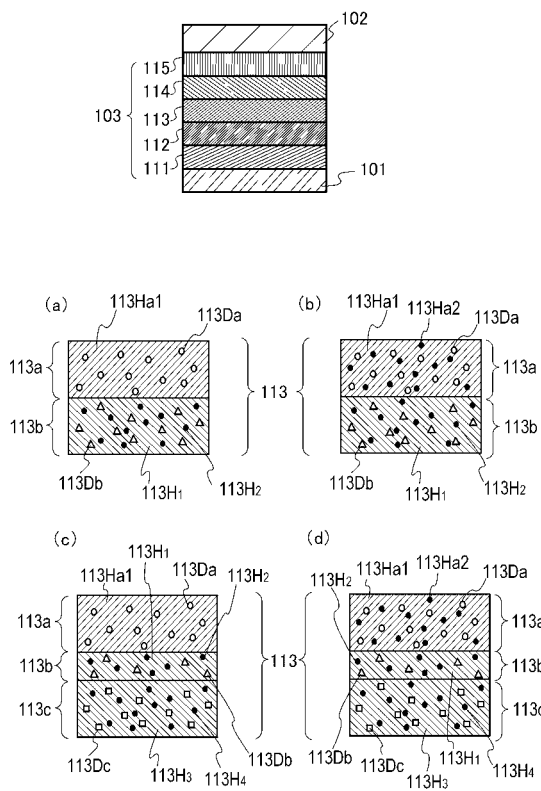
101	第1の電極	10
102	第2の電極	
103	EL層	
111	正孔注入層	
112	正孔輸送層	
113	発光層	
113a	第1の発光層	
113Da	第1のりん光性化合物	
113Ha1	第1のホスト材料	
113Ha2	第2のホスト材料	
113b	第2の発光層	20
113Db	第2のりん光性化合物	
113H ₁	第1のキャリア輸送性化合物	
113H ₂	第2のキャリア輸送性化合物	
113c	第3の発光層	
113Dc	第3のりん光性化合物	
113H ₃	第3のキャリア輸送性化合物	
113H ₄	第4のキャリア輸送性化合物	
114	電子輸送層	
115	電子注入層	
400	基板	30
401	第1の電極	
402	補助電極	
403	EL層	
404	第2の電極	
405	シール材	
407	封止基板	
412	パッド	
420	ICチップ	
501	第1の電極	
502	第2の電極	40
511	第1の発光ユニット	
512	第2の発光ユニット	
513	電荷発生層	
601	駆動回路部(ソース線駆動回路)	
602	画素部	
603	駆動回路部(ゲート線駆動回路)	
604	封止基板	
605	シール材	
607	空間	
608	配線	50

6 0 9	F P C (フレキシブルプリントサーキット)	
6 1 0	素子基板	
6 1 1	スイッチング用 T F T	
6 1 2	電流制御用 T F T	
6 1 3	第 1 の電極	
6 1 4	絶縁物	
6 1 6	E L 層	
6 1 7	第 2 の電極	
6 1 8	発光素子	
6 2 3	n チャネル型 T F T	10
6 2 4	p チャネル型 T F T	
6 2 5	乾燥材	
9 0 1	筐体	
9 0 2	液晶層	
9 0 3	バックライトユニット	
9 0 4	筐体	
9 0 5	ドライバ I C	
9 0 6	端子	
9 5 1	基板	
9 5 2	電極	20
9 5 3	絶縁層	
9 5 4	隔壁層	
9 5 5	E L 層	
9 5 6	電極	
1 0 0 1	基板	
1 0 0 2	下地絶縁膜	
1 0 0 3	ゲート絶縁膜	
1 0 0 6	ゲート電極	
1 0 0 7	ゲート電極	
1 0 0 8	ゲート電極	30
1 0 2 0	第 1 の層間絶縁膜	
1 0 2 1	第 2 の層間絶縁膜	
1 0 2 2	電極	
1 0 2 4 W	発光素子の第 1 の電極	
1 0 2 4 R	発光素子の第 1 の電極	
1 0 2 4 G	発光素子の第 1 の電極	
1 0 2 4 B	発光素子の第 1 の電極	
1 0 2 5	隔壁	
1 0 2 8	E L 層	
1 0 2 9	発光素子の第 2 の電極	40
1 0 3 1	封止基板	
1 0 3 2	シール材	
1 0 3 3	透明な基材	
1 0 3 4 R	赤色の着色層	
1 0 3 4 G	緑色の着色層	
1 0 3 4 B	青色の着色層	
1 0 3 5	黒色層 (ブラックマトリックス)	
1 0 3 6	オーバーコート層	
1 0 3 7	第 3 の層間絶縁膜	
1 0 4 0	画素部	50

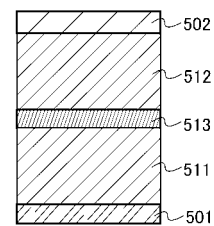
1 0 4 1	駆動回路部	
1 0 4 2	周辺部	
1 0 4 4 W	白色の発光領域	
1 0 4 4 R	赤色の発光領域	
1 0 4 4 B	青色の発光領域	
1 0 4 4 G	緑色の発光領域	
2 0 0 1	筐体	
2 0 0 2	光源	
3 0 0 1	照明装置	
5 0 0 0	表示領域	10
5 0 0 1	表示領域	
5 0 0 2	表示領域	
5 0 0 3	表示領域	
5 0 0 4	表示領域	
5 0 0 5	表示領域	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 3	表示部	
7 1 0 5	スタンド	
7 1 0 7	表示部	
7 1 0 9	操作キー	20
7 1 1 0	リモコン操作機	
7 2 0 1	本体	
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 2 1 0	第2の表示部	
7 3 0 1	筐体	
7 3 0 2	筐体	30
7 3 0 3	連結部	
7 3 0 4	表示部	
7 3 0 5	表示部	
7 3 0 6	スピーカ部	
7 3 0 7	記録媒体挿入部	
7 3 0 8	LED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 4 0 1	筐体	40
7 4 0 2	表示部	
7 4 0 3	操作ボタン	
7 4 0 4	外部接続ポート	
7 4 0 5	スピーカ	
7 4 0 6	マイク	
9 0 3 3	留め具	
9 0 3 4	スイッチ	
9 0 3 5	電源スイッチ	
9 0 3 6	スイッチ	
9 0 3 8	操作スイッチ	50

9 6 3 0	筐体
9 6 3 1	表示部
9 6 3 1 a	表示部
9 6 3 1 b	表示部
9 6 3 2 a	タッチパネル領域
9 6 3 2 b	タッチパネル領域
9 6 3 3	太陽電池
9 6 3 4	充放電制御回路
9 6 3 5	バッテリー
9 6 3 6	D C D C コンバータ
9 6 3 7	操作キー
9 6 3 8	コンバータ
9 6 3 9	ボタン

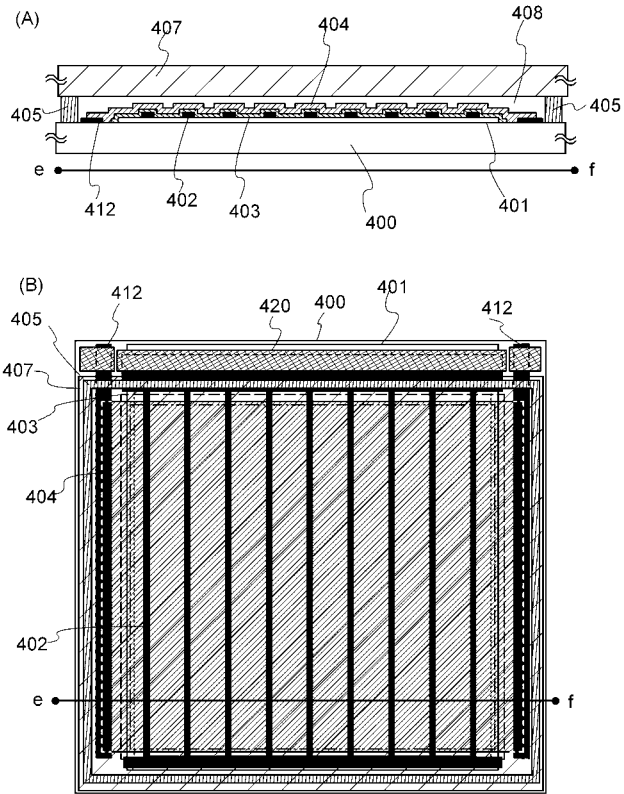
【 図 1 】



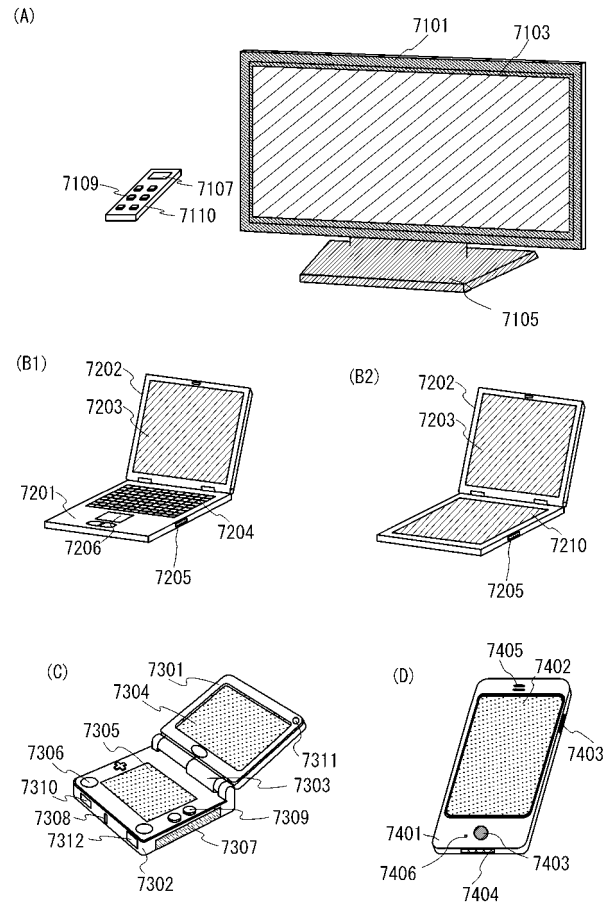
【 図 2 】



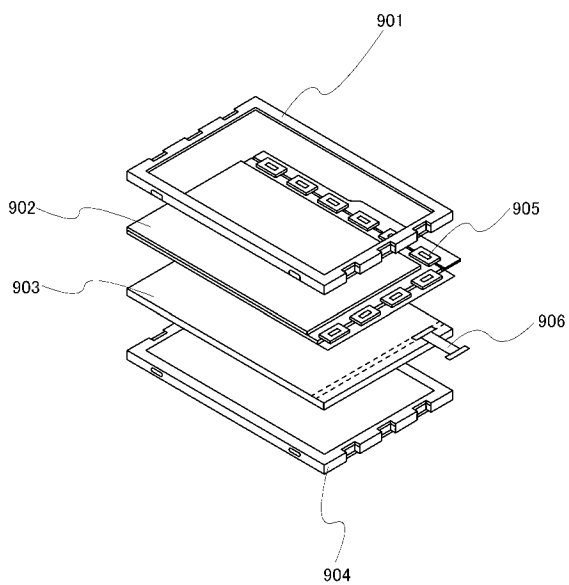
【図 7】



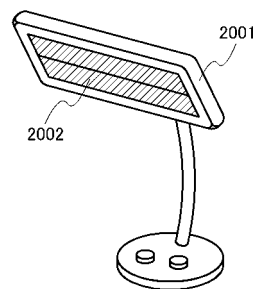
【図 8】



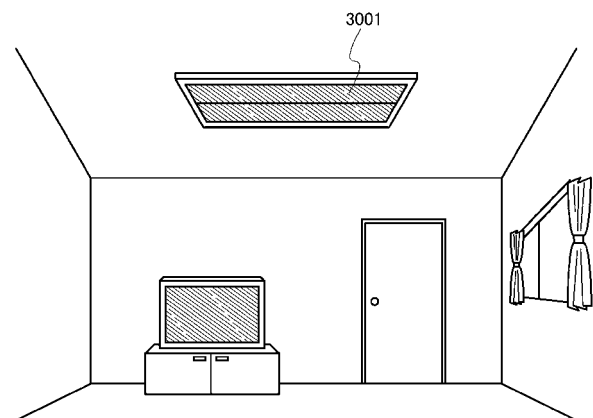
【図 9】



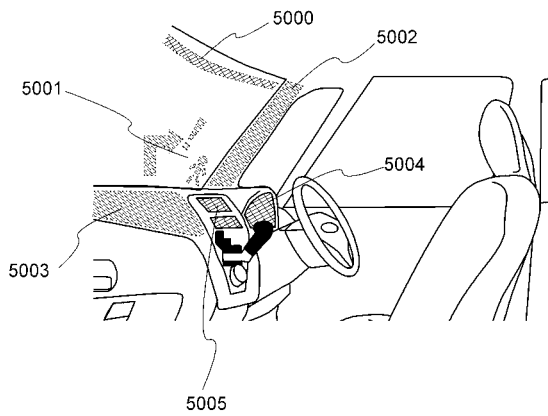
【図 10】



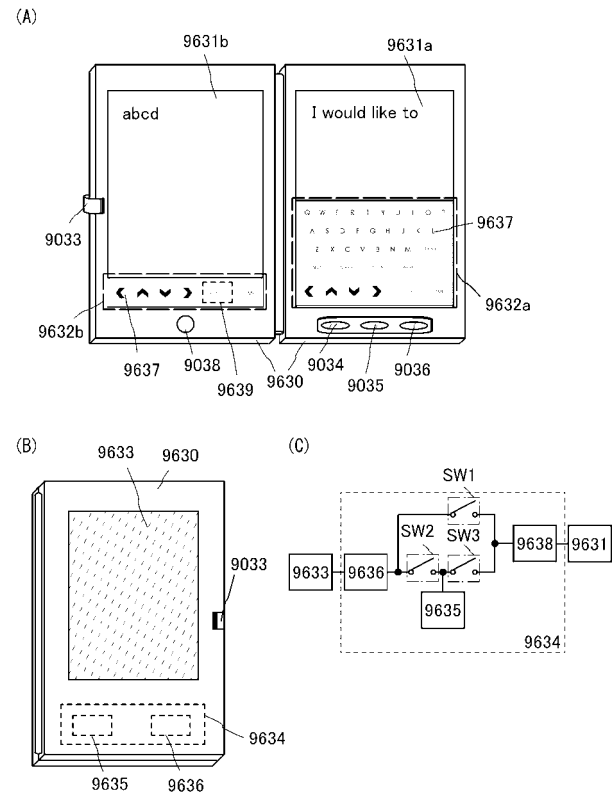
【図 11】



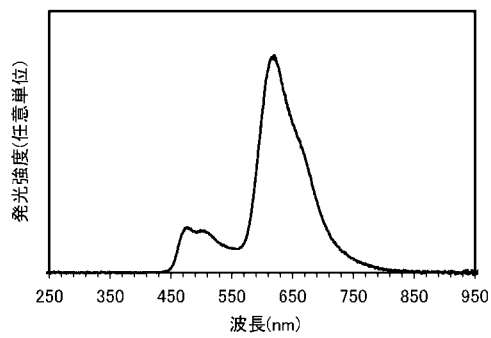
【図 1 2】



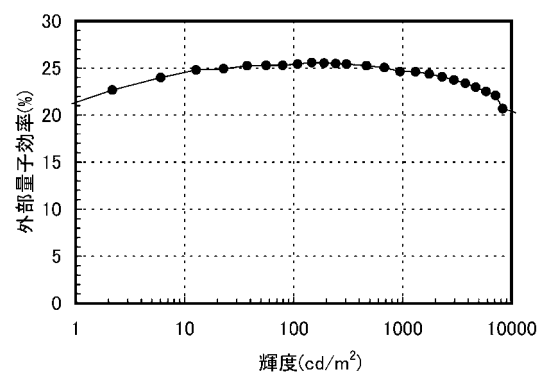
【図 1 3】



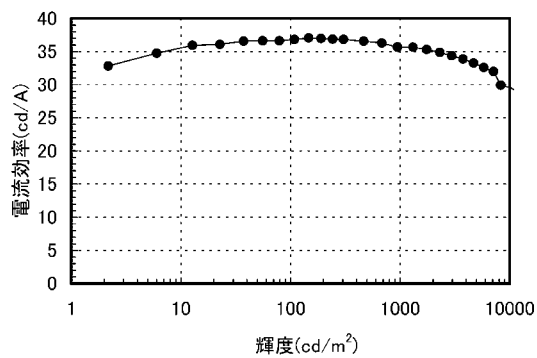
【図 1 4】



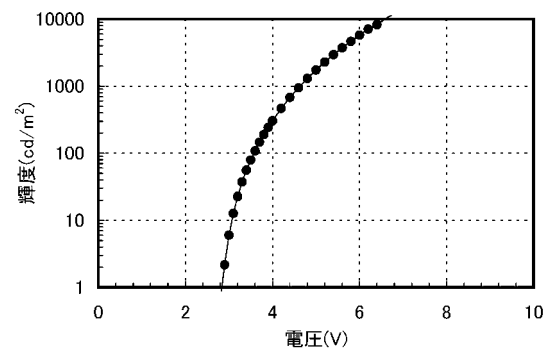
【図 1 6】



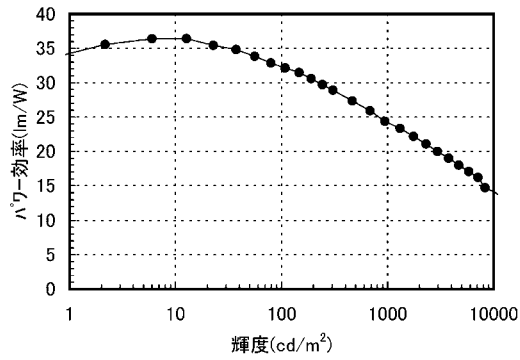
【図 1 5】



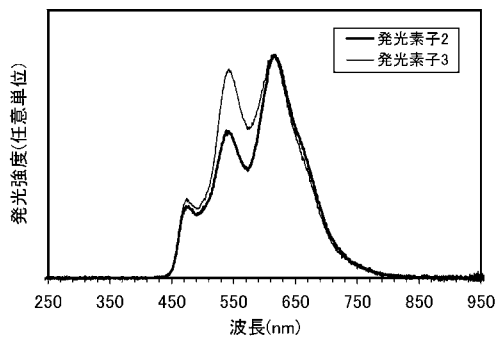
【図 1 7】



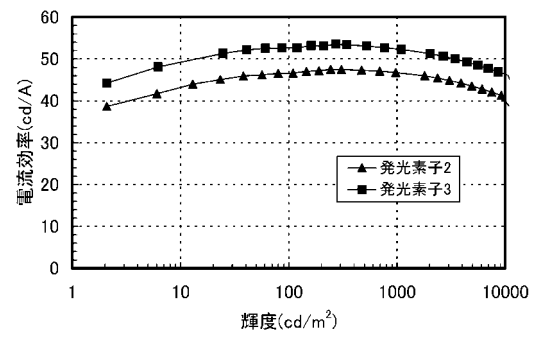
【図 18】



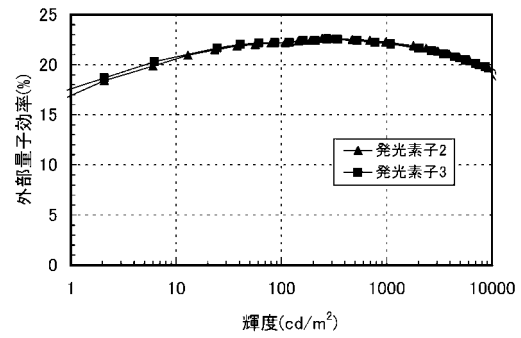
【図 19】



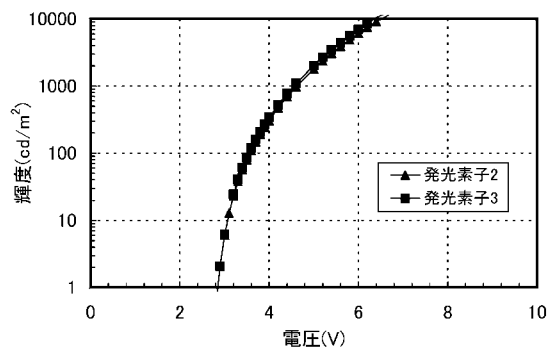
【図 20】



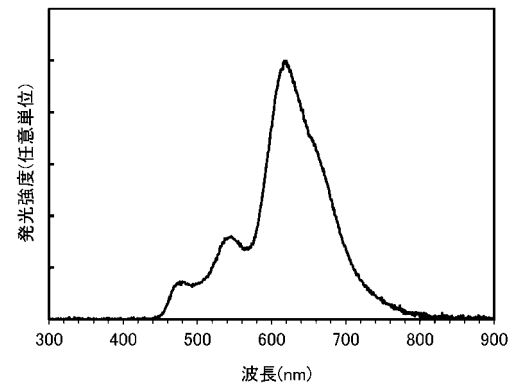
【図 21】



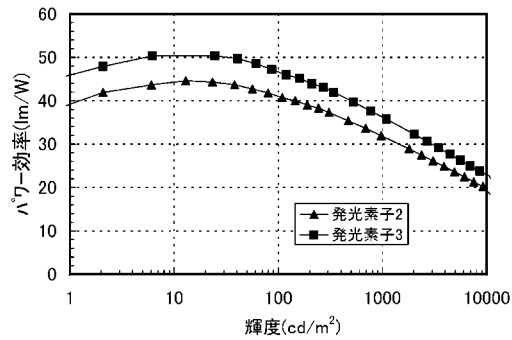
【図 22】



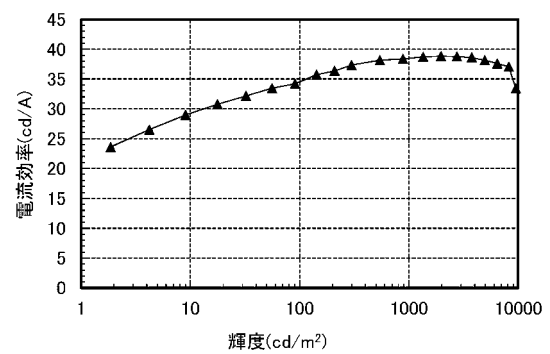
【図 24】



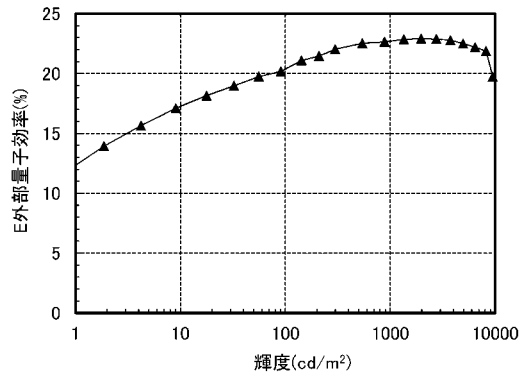
【図 23】



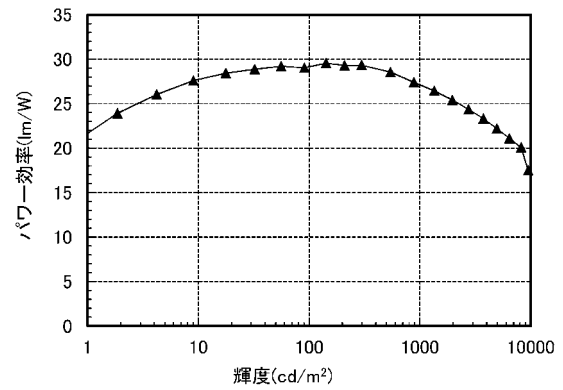
【図 25】



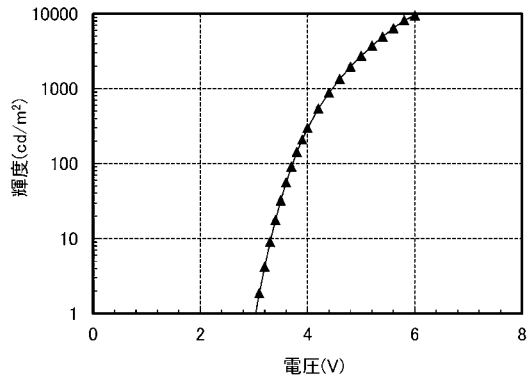
【図 2 6】



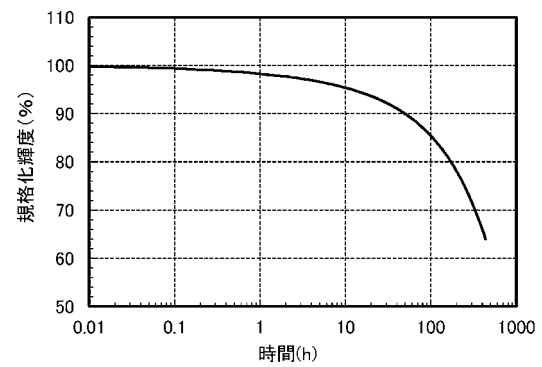
【図 2 8】



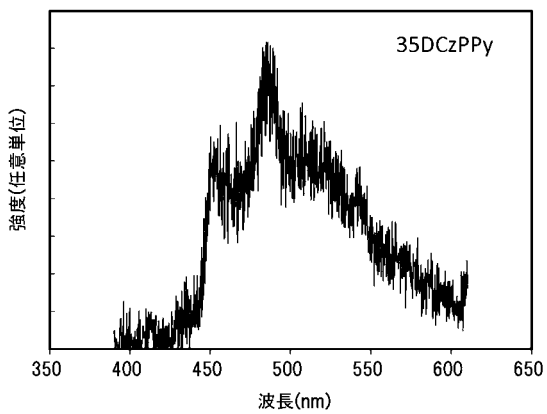
【図 2 7】



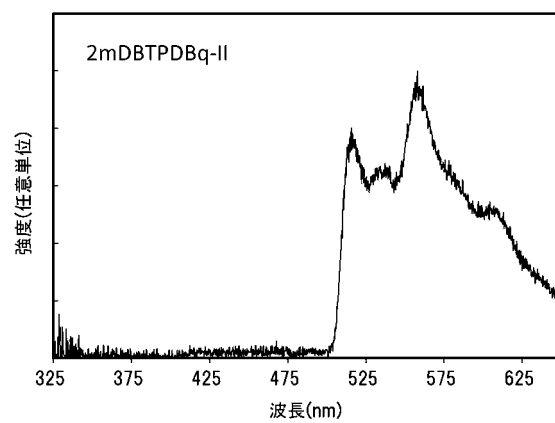
【図 2 9】



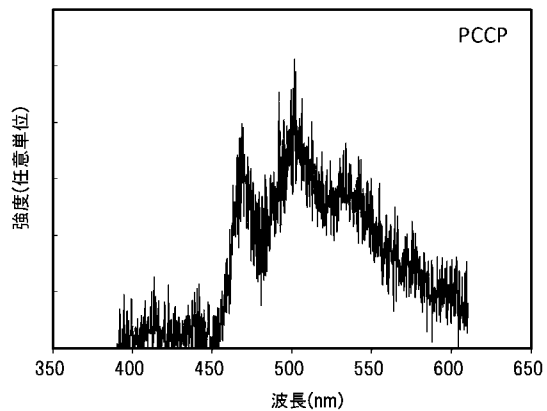
【図 3 0】



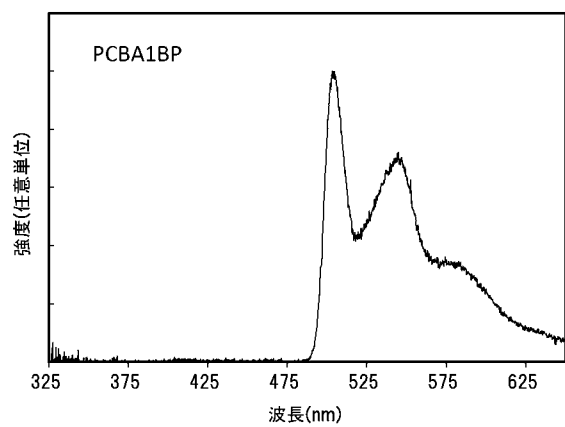
【図 3 2】



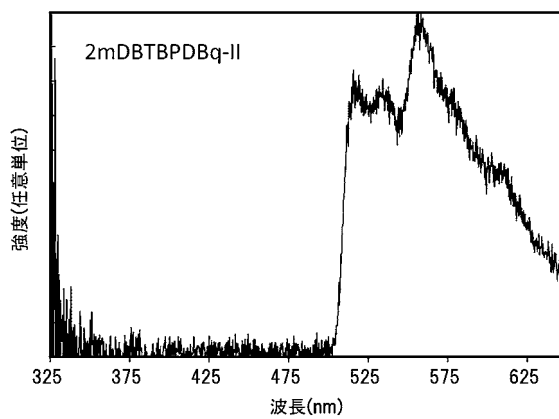
【図 3 1】



【 図 3 3 】



【 図 3 4 】



【 図 3 5 】

