

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6219067号  
(P6219067)

(45) 発行日 平成29年10月25日 (2017.10.25)

(24) 登録日 平成29年10月6日 (2017.10.6)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/14 B

H O 5 B 33/12 (2006.01)

H O 5 B 33/12 C

H O 1 L 27/32 (2006.01)

H O 1 L 27/32

G O 9 F 9/30 (2006.01)

G O 9 F 9/30 3 6 5

F 2 1 Y 115/15 (2016.01)

F 2 1 Y 115:15

請求項の数 17 (全 50 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2013-115222 (P2013-115222)

(22) 出願日 平成25年5月31日 (2013.5.31)

(65) 公開番号 特開2014-7402 (P2014-7402A)

(43) 公開日 平成26年1月16日 (2014.1.16)

審査請求日 平成28年5月4日 (2016.5.4)

(31) 優先権主張番号 特願2012-124943 (P2012-124943)

(32) 優先日 平成24年5月31日 (2012.5.31)

(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

(72) 発明者 山崎 舜平

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

審査官 横川 美穂

最終頁に続く

(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) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一対の電極間に、第1の発光層乃至第3の発光層を有し、

前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、

前記第2の発光層は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、

前記第3の発光層は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、

前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、

前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、

前記第2のりん光性化合物は、前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、

前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記 は、波長を表し、

前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、

前記第2の発光層は、1nm以上5nm未満の膜厚を有する発光素子。

【請求項2】

一対の電極間に、第1の発光層乃至第3の発光層を有し、

前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、

前記第2の発光層は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、

10

20

前記第3の発光層は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、  
前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、  
前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup>で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、  
前記第2のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に発光スペクトル  
のピークを有し、  
前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup>で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、  
前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、  
前記 ( ) は、波長を表し、  
前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、  
前記第2の発光層は、1nm以上5nm未満の膜厚を有する発光素子。

10

【請求項3】

請求項1または請求項2において、  
前記第1の発光層は電子輸送性を有し、  
前記第2の発光層及び前記第3の発光層は正孔輸送性を有する発光素子。

【請求項4】

請求項1または請求項2において、  
前記第1の発光層は正孔輸送性を有し、  
前記第2の発光層及び前記第3の発光層は電子輸送性を有する発光素子。

20

【請求項5】

請求項1乃至4のいずれか一において、  
前記第1の発光層は、前記第2の発光層に接しており、  
前記第2の発光層は、前記第3の発光層に接している発光素子。

【請求項6】

請求項1乃至5のいずれか一において、  
前記第2の発光層は、1nm以上2nm以下の膜厚を有する発光素子。

【請求項7】

一对の電極間に、第1の発光層、複数の第2の島状発光領域、及び第3の発光層を有し

30

、  
前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、  
前記第2の島状発光領域は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、  
前記第3の発光層は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、  
前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、  
前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup>で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、  
前記第2のりん光性化合物は、前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、  
前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup>で  
表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、  
前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、  
前記 ( ) は、波長を表し、  
前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、  
前記第2の島状発光領域は、前記第1の発光層と前記第3の発光層との間に存在してい  
る発光素子。

40

【請求項8】

一对の電極間に、第1の発光層、複数の第2の島状発光領域、及び第3の発光層を有し

、  
前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、  
前記第2の島状発光領域は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、  
前記第3の発光層は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、

50

前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、

前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、

前記第2のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に発光スペクトルのピークを有し、

前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、

前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記 は、波長を表し、

前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、

前記第2の島状発光領域は、前記第1の発光層と前記第3の発光層との間に存在している発光素子。

#### 【請求項9】

一对の電極間に、第1の発光層、複数の第2の島状発光領域、及び複数の第3の島状発光領域を有し、

前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、

前記第2の島状発光領域は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、

前記第3の島状発光領域は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、

前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、

前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、

前記第2のりん光性化合物は、前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、

前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記 は、波長を表し、

前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、

前記複数の第2の島状発光領域及び前記複数の第3の島状発光領域は所望の割合で一定の厚さの中に混在して層を形成し、

前記複数の第2の島状発光領域及び前記複数の第3の島状領域が混在する層の一方の面は前記第1の発光層と接している発光素子。

#### 【請求項10】

一对の電極間に、第1の発光層、複数の第2の島状発光領域、及び複数の第3の島状発光領域を有し、

前記第1の発光層は、第1のりん光性化合物と、第1のホスト材料とを有し、

前記第2の島状発光領域は、第2のりん光性化合物と、第2のホスト材料とを有し、

前記第3の島状発光領域は、第3のりん光性化合物と、第3のホスト材料とを有し、

前記第1のりん光性化合物は、青色発光を呈し、

前記第2のりん光性化合物は、440nm乃至520nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、

前記第2のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に発光スペクトルのピークを有し、

前記第3のりん光性化合物は、520nm乃至600nmの波長範囲に ( )<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、

前記第3のりん光性化合物は、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈し、

前記 は、波長を表し、

前記 ( ) は、各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、

前記複数の第2の島状発光領域及び前記複数の第3の島状発光領域は所望の割合で一定の厚さの中に混在して層を形成し、

前記複数の第2の島状発光領域及び前記複数の第3の島状領域が混在する層の一方の面

10

20

30

40

50

は前記第 1 の発光層と接している発光素子。

【請求項 1 1】

請求項 7 乃至 1 0 のいずれか一において、  
前記第 1 のホスト材料は電子輸送性を有し、  
前記第 2 のホスト材料及び前記第 3 のホスト材料は正孔輸送性を有する発光素子。

【請求項 1 2】

請求項 7 乃至 1 0 のいずれか一において、  
前記第 1 のホスト材料は正孔輸送性を有し、  
前記第 2 のホスト材料及び前記第 3 のホスト材料は電子輸送性を有する発光素子。

【請求項 1 3】

請求項 1 乃至 1 2 のいずれか一において、  
前記極大値 A に比べて前記極大値 B の方が大きいことを特徴とする発光素子。

【請求項 1 4】

請求項 1 乃至 1 3 のいずれか一に記載の発光素子を有する照明装置。

【請求項 1 5】

請求項 1 乃至 1 3 のいずれか一に記載の発光素子と、前記発光素子を制御する手段と、  
を備えた発光装置。

【請求項 1 6】

請求項 1 乃至 1 3 のいずれか一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 1 7】

請求項 1 乃至 1 3 のいずれか一に記載の発光素子を有する電子機器。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

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】

【0 0 0 2】

近年、エレクトロルミネッセンス (E L : E l e c t r o l u m i n e s c e n c e ) 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。

【0 0 0 3】

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。

【0 0 0 4】

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 L E D 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。

【0 0 0 5】

発光物質に有機化合物を用い、一対の電極間に当該有機化合物を含む層を設けた有機 E L  
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有機化合物を含む層に注入され、電流が流れる。そして、  
注入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。

10

20

30

40

50

## 【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、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。

10

## 【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。

20

## 【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 100% 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。

30

## 【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（例えば青、緑、赤色を組み合わせた白色発光素子）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。

40

## 【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、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】

50

本発明では、分子間のエネルギー移動機構の一つであるフェルスター機構に注目し、エネルギーを与える側の分子の発光スペクトルの山と、エネルギーを受け取る側の分子の吸収スペクトルに波長の4乗を掛け合わせた特性曲線における最も長波長側の極大を有する山と、が重なりあうような分子の組み合わせを適用することによって上記フェルスター機構におけるエネルギー移動を効率よく可能とする。ここで、上記エネルギー移動は、一般的なホストからドーパントへのエネルギー移動ではなく、ドーパント間でのエネルギー移動であることが特徴の一つである。このように、ドーパン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ドーパントを適用し、さらには各ドーパント分子間の距離を適切に管理する素子構造を設計することで、本発明の一態様の発光素子を得ることができる。

10

**【0016】**

すなわち、本発明の一態様は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された第2の発光層と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された第3の発光層と、を含み、前記第1乃至第3の発光層がこの順に積層されており、第2の発光層の膜厚が5nm未満1nm以上である発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

20

**【0017】**

また、本発明の他の一態様は一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ520nm乃至600nmの範囲にりん光発光のピーク波長を有する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された第2の発光層と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された第3の発光層と、を含み、前記第1乃至第3の発光層がこの順に積層されており、第2の発光層の膜厚が5nm未満1nm以上である発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

30

**【0018】**

また、本発明の他の一態様は上記構成において、前記第1の発光層は電子輸送性であり、前記第2の発光層および前記第3の発光層は正孔輸送性である発光素子である。

**【0019】**

また、本発明の他の一態様は上記構成において、前記第1の発光層は正孔輸送性であり、前記第2の発光層および前記第3の発光層は電子輸送性である発光素子である。

**【0020】**

また、本発明の他の一態様は上記構成において、前記第1乃至第3の発光層はこの順に互いに接して積層されていることを特徴とする発光素子である。

40

**【0021】**

また、本発明の他の一態様は上記構成において、前記第2の発光層の膜厚は、2nm以下1nm以上であることを特徴とする発光素子である。

**【0022】**

また、本発明の他の一態様は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された複数の第2の島状発光領域と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>

50

<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された第3の発光層と、を含み、前記複数の第2の島状発光領域は前記第1の発光層と前記第3の発光層との間に存在している発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

【0023】

また、本発明の他の一態様は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ520nm乃至600nmの範囲にりん光発光のピーク波長を有する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された複数の第2の島状発光領域と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された第3の発光層と、を含み、前記複数の第2の島状発光領域は前記第1の発光層と前記第3の発光層との間に存在している発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

10

【0024】

また、本発明の他の一態様は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された複数の第2の島状発光領域と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された複数の第3の島状発光領域と、を含み、前記複数の第2の島状発光領域と前記複数の第3の島状発光領域は所望の割合で一定の厚さの中に混在して層を形成し、前記複数の第2の島状発光領域と前記複数の第3の島状領域が混在する層の一方の面は前記第1の発光層と接している発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

20

【0025】

また、本発明の他の一態様は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が、第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、440nm乃至520nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Aを有し、かつ520nm乃至600nmの範囲にりん光発光のピーク波長を有する第2のりん光性化合物が、第2のホスト材料に分散された複数の第2の島状発光領域と、520nm乃至600nmの範囲に( )<sup>4</sup>で表される関数の最も長波長側に位置する極大値Bを有し、かつ前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が、第3のホスト材料に分散された複数の第3の島状発光領域と、を含み、前記複数の第2の島状発光領域と前記複数の第3の島状発光領域は所望の割合で一定の厚さの中に混在して層を形成し、前記複数の第2の島状発光領域と前記複数の第3の島状領域が混在する層の一方の面は前記第1の発光層と接している発光素子である。(ただし、( )は各りん光性化合物のモル吸光係数を表し、波長の関数である。)

30

40

【0026】

また、本発明の他の一態様は、上記構成を有する発光素子において、前記第1のホスト材料は電子輸送性であり、前記第2のホスト材料および前記第3のホスト材料は正孔輸送性である発光素子である。

【0027】

また、本発明の他の一態様は、上記構成を有する発光素子において、前記第1のホスト材料は正孔輸送性であり、前記第2のホスト材料および前記第3のホスト材料は電子輸送性である発光素子である。

50

## 【0028】

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。

## 【0029】

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

10

## 【発明の効果】

## 【0030】

本発明の一態様は、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、及び照明装置を提供できる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0031】

【図1】発光素子の概念図。

【図2】発光層のエネルギー移動を表す図

【図3】青りん光からのフェルスター移動を説明する図。

20

【図4】青りん光からのフェルスター移動を説明する図。

【図5】青りん光からのフェルスター移動を説明する図。

【図6】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図7】パッシブマトリクス型発光装置の概念図。

【図8】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図9】アクティブマトリクス型発光装置の概念図。

【図10】照明装置の概念図。

【図11】電子機器を表す図。

【図12】電子機器を表す図。

【図13】照明装置を表す図。

30

【図14】照明装置および表示装置を表す図。

【図15】車載表示装置及び照明装置を表す図。

【図16】電子機器を表す図。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0032】

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。

## 【0033】

40

## (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、青色発光を呈する第1のりん光性化合物 (具体的には、440nm~520nmに発光のピークを有するりん光性化合物、または、CIE色度(x, y)が0.12 x 0.25かつ0.05 y 0.5となる色域の発光色を呈するりん光性化合物) と、該第1のりん光性化合物よりも長波長の発光 (例えば緑色発光や赤色発光) を示す第2及び第3のりん光性化合物を用い、第1~第3のりん光性化合物の全て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。

## 【0034】

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、何らかのホスト材

50



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ったため、多色発光を得るための素子構造（特にホスト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。

#### 【0035】

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。

10

#### 【0036】

一方、本発明の一態様の発光素子は、一对の電極間に、青色発光を呈する第1のりん光性化合物が第1のホスト材料に分散された第1の発光層と、前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第2のりん光性化合物が第2のホスト材料に分散された第2の発光層と、前記第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を呈する第3のりん光性化合物が第3のホスト材料に分散された第3の発光層とを含み、前記第1乃至第3の発光層がこの順に積層された発光素子である。この時、第1～第3の各発光層は、タンデム構造とは異なり、互いに接して設けられていても良い。

20

#### 【0037】

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(F)には第1の電極101、第2の電極102、EL層103が記載されている。EL層103には少なくとも発光層113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(F)においては、正孔注入層111、正孔輸送層112、電子輸送層114及び電子注入層115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する。

#### 【0038】

また、図1(a)、(b)は、当該発光素子における発光層113を拡大して示した図である。図1(a)、(b)には第1の発光層113B、第2の発光層113G、第3の発光層113R、当該3層を合わせた発光層113、第1のりん光性化合物113Bd、第2のりん光性化合物113Gd、第3のりん光性化合物113Rd、第1のホスト材料113Bh、第2のホスト材料113Gh、第3のホスト材料113Rh及び再結合領域113exが示されている。図1(a)は、第1の発光層113Bが陰極側に設けられている場合の、図1(b)は、第1の発光層113Bが陽極側に設けられている場合の模式図である。いずれの場合においても、各りん光性化合物（第1～第3のりん光性化合物）はホスト材料中に分散されているため、各りん光性化合物は各ホスト材料によって互いに隔離されている。なお、第1～第3の各ホスト材料は、同一であっても異なっても良い。

30

#### 【0039】

この場合、各りん光性化合物間において、電子交換相互作用（いわゆるデクスター機構）によるエネルギー移動は抑制される。すなわち、第1のりん光性化合物113Bdが励起された後、その励起エネルギーがデクスター機構により第2のりん光性化合物113Gdあるいは第3のりん光性化合物113Rdへ移動する現象を防ぐことができる。また、第2のりん光性化合物113Gdが励起された後、その励起エネルギーがデクスター機構により第3のりん光性化合物113Rdへ移動する現象も防ぐことができる。したがって、最も長波長の発光を示す第3のりん光性化合物113Rdが主として発光してしまう現象を抑制することができる。なお、第3の発光層113Rにて直接励起子が生成すると、やはり第3のりん光性化合物113Rdが主として発光してしまうため、キャリアの再結合領域113exは、第1の発光層113B内、あるいは第1の発光層113Bと第2の発

40

50

光層 1 1 3 G との界面近傍とする（すなわち、第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B d を主として励起する）ことが好ましい。

【 0 0 4 0 】

ただし、第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B d からのエネルギー移動が完全に抑制されてしまうと、今度は第 3 のりん光性化合物 1 1 3 R d の発光が得られないことになる。そこで本発明の一態様では、青色発光を呈する第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B d の励起エネルギーが、部分的に第 2 のりん光性化合物 1 1 3 G d へ移動し、さらには、第 2 のりん光性化合物 1 1 3 G d の励起エネルギーが、部分的に第 3 のりん光性化合物 1 1 3 R d へ移動するような素子設計を行う。このような隔離された分子間でのエネルギー移動は、双極子 - 双極子相互作用（フェルスター機構）を利用することによって可能となる。

10

【 0 0 4 1 】

ここで、フェルスター機構について説明する。以下では、励起エネルギーを与える側の分子をエネルギードナー、励起エネルギーを受け取る側の分子をエネルギーアクセプターと記す。すなわち、本発明の一態様においては、エネルギードナー、エネルギーアクセプターのいずれもりん光性化合物であり、ホスト材料によって互いに隔離されている。

【 0 0 4 2 】

フェルスター機構は、エネルギー移動に、分子間の直接的接触を必要としない。エネルギードナー及びエネルギーアクセプター間の双極子振動の共鳴現象を通じてエネルギー移動が起こる。双極子振動の共鳴現象によってエネルギードナーがエネルギーアクセプターにエネルギーを受け渡し、励起状態のエネルギードナーが基底状態になり、基底状態のエネルギーアクセプターが励起状態になる。フェルスター機構によるエネルギー移動の速度定数  $k_F$  を数式（ 1 ）に示す。

20

【 0 0 4 3 】

【 数 1 】

$$k_F = \frac{9000c^4 K^2 \phi \ln 10}{128\pi^5 n^4 N \tau R^6} \int \frac{F(\nu) \varepsilon(\nu)}{\nu^4} d\nu \quad \dots (1)$$

【 0 0 4 4 】

数式（ 1 ）において、 $\phi$  は、振動数を表し、 $F( )$  は、エネルギードナーの規格化された発光スペクトル（一重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は蛍光スペクトル、三重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合はりん光スペクトル）を表し、 $\varepsilon( )$  は、エネルギーアクセプターのモル吸光係数を表し、 $N$  は、アボガドロ数を表し、 $n$  は、媒体の屈折率を表し、 $R$  は、エネルギードナーとエネルギーアクセプターの分子間距離を表し、 $\tau$  は、実測される励起状態の寿命（蛍光寿命やりん光寿命）を表し、 $c$  は、光速を表し、 $\phi$  は、発光量子収率（一重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合は蛍光量子収率、三重項励起状態からのエネルギー移動を論じる場合はりん光量子収率）を表し、 $K^2$  は、エネルギードナーとエネルギーアクセプターの遷移双極子モーメントの配向を表す係数（ 0 ~ 4 ）である。なお、ランダム配向の場合は  $K^2 = 2 / 3$  である。

30

【 0 0 4 5 】

式（ 1 ）からわかるように、フェルスター機構によるエネルギー移動（フェルスター移動）の条件は、 1 . エネルギードナーとエネルギーアクセプターが離れすぎないこと（距離  $R$  に関連）、 2 . エネルギードナーが発光すること（発光量子収率に関連）、 3 . エネルギードナーの発光スペクトルとエネルギーアクセプターの吸収スペクトルが重なりを有すること（積分項に関連）、が挙げられる。

40

【 0 0 4 6 】

ここで、図 1 にて説明したように、各りん光性化合物（第 1 ~ 第 3 のりん光性化合物）は各ホスト材料中に分散されており、各りん光性化合物は各ホスト材料によって互いに隔離されているため、距離  $R$  は少なくとも一分子以上（ 1 nm 以上）の距離を有している。したがって、第 1 のりん光性化合物で生じた励起エネルギーの全てが、フェルスター機構に

50

よって第2乃至は第3のりん光性化合物にエネルギー移動してしまうことはない。一方で、式(1)からわかるようにエネルギー移動の速度定数 $k_F$ は距離の6乗に反比例するため、エネルギーアクセプターとエネルギードナー間の距離を適切に保つことが必要となる。フェルスター移動がより効率よく行われるために、Rは5nm未満1nm以上であることが好ましい。そのため、図1における第2の発光層113Gの膜厚を5nm未満とすることで、部分的なエネルギー移動が発生し、第1のりん光性化合物113Bd、第2のりん光性化合物113Gd、第3のりん光性化合物113Rdを効率よくを発光させることができる。このように、第1の発光層、第2の発光層、および第3の発光層の中で、発光のエネルギーが中間に位置する発光層、すなわち第2の発光層の膜厚を最も薄くすることが重要である。

10

#### 【0047】

また、より効率の良いエネルギー移動を実現するために、好ましくは、Rは2nm以下1nm以上であることが好ましい。

#### 【0048】

さらに、図1(c)、(d)のように、第2の発光層113Gを、第2のりん光性化合物113Gdと第2のホスト材料113Ghを含む複数の島状領域(第2の島状発光領域113Ga)として存在させても良い。このように微小な島状に第2の島状発光領域113Gaが形成されることによって、Rが小さくなり、エネルギー移動の速度定数 $k_F$ が大きくなるだけでなく、エネルギーアクセプターとエネルギードナーとが近接して存在する確率も向上するため、より効率よいエネルギー移動が見込める。また、当該構造を有する発光層では、第2の島状発光領域113Gaの厚みを2nm以下として形成すると、非常に効率の良いエネルギー移動が可能であり、電流効率の高い発光素子を得ることができる。

20

#### 【0049】

また、第3の発光層113Rを同様に、複数の島状発光領域(第3の島状発光領域113Ra)として形成しても良い。この場合、第2の島状発光領域113Gaと第3の島状発光領域113Raとを交互に複数回成膜することによって、図1(e)のように第2の島状発光領域113Gaと第3の島状発光領域113Raが交互もしくは所望の割合で複数積層される部分を有する構造を形成すると、所望の強度の発光を容易に得ることができ、発光色の調整を簡便に行うことができる。また、当該構造を有する発光層では第2の島状発光領域113Ga、第3の島状発光領域113Ra共に、厚みを2nm以下として形成すると、非常に効率の良いエネルギー移動が可能であり、電流効率の高い発光素子を得ることができる。

30

#### 【0050】

青色発光を呈する第1のりん光性化合物113Bdと、前記第1のりん光性化合物よりも長波長の発光(例えば緑色発光)を呈する第2のりん光性化合物113Gdと、前記第2のりん光性化合物113Gdよりも長波長の発光(例えば赤色発光)を呈する第3のりん光性化合物113Rdを用いた本発明の一態様の発光素子における、各りん光性化合物間でのフェルスター移動の模式図を図2に示す。図2においては、電極10、電極11の間に第1の発光層113B、第2の発光層113G及び第3の発光層113Rが積層された構成を示した。なお、電極10及び電極11はどちらか一方が陽極として機能し、他方が陰極として機能する電極である。図2に示すように、まず第1のりん光性化合物113Bdで生じた一重項励起状態( $S_B$ )は、項間交差により三重項励起状態( $T_B$ )に変換される。すなわち、第1の発光層113Bにおける励起子は、基本的に $T_B$ に集約される。

40

#### 【0051】

次に、この $T_B$ 状態の励起子のエネルギーは、一部はそのまま発光して青色発光に変換されるが、フェルスター機構を利用することにより、一部は第2のりん光性化合物113Gdの三重項励起状態( $T_G$ )に移動することができる。これは、第1のりん光性化合物113Bdが発光性である(りん光量子収率が高い)ことと、第2のりん光性化合物113Gdが一重項基底状態から三重項励起状態への電子遷移に相当する直接吸収を有している(三重項励起状態の吸収スペクトルが存在する)ことに起因している。これらの条件を

50

満たせば、 $T_B$  から  $T_G$  への三重項 - 三重項フェルスター移動が可能となる。また、 $T_B$  から第3のりん光性化合物 1 1 3 R d の一重項励起状態 ( $S_R$ ) へのエネルギー移動も、寄与は小さいものの、フェルスター移動の条件を満たせば発生し得る。これは、後述するが、第3のりん光性化合物 1 1 3 R d が赤色発光材料の場合に生じやすい。 $S_R$  は項間交差により、第3のりん光性化合物 1 1 3 R d の三重項励起状態 ( $T_R$ ) に変換されるため、第3のりん光性化合物 1 1 3 R d の発光に寄与する。なお、フェルスター機構におけるエネルギードナー（ここでは第1のりん光性化合物 1 1 3 B d）は発光性である必要があるため、第1のりん光性化合物 1 1 3 B d のりん光量子収率は、0.1以上であることが好ましい。

【0052】

なお、第2のりん光性化合物 1 1 3 G d の一重項励起状態 ( $S_G$ ) は、第1のりん光性化合物 1 1 3 B d の三重項励起状態 ( $T_B$ ) よりもエネルギーが高い場合が多いため、上述したエネルギー移動にあまり寄与しない場合が多い。したがってここでは割愛している。

【0053】

さらに、第2のりん光性化合物 1 1 3 G d の三重項  $T_G$  の状態の励起子のエネルギーは、一部はそのまま発光（例えば緑色発光）に変換されるが、フェルスター機構を利用することにより、一部は第3のりん光性化合物 1 1 3 R d の三重項励起状態 ( $T_R$ ) に移動することができる。これは、第2のりん光性化合物 1 1 3 G d が発光性である（りん光量子収率が高い）ことと、第3のりん光性化合物 1 1 3 R d が一重項基底状態から三重項励起状態への電子遷移に相当する直接吸収を有している（三重項励起状態の吸収スペクトルが存在する）ことに起因している。これらの条件を満たせば、 $T_G$  から  $T_R$  への三重項 - 三重項フェルスター移動が可能となる。なお、フェルスター機構におけるエネルギードナー（ここでは第2のりん光性化合物 1 1 3 G d）は発光性である必要があるため、第2のりん光性化合物 1 1 3 G d のりん光量子収率は、0.1以上であることが好ましい。

【0054】

以上で述べたようなエネルギー移動により生成した  $T_R$  は、第3のりん光性化合物 1 1 3 R d の発光（例えば赤色発光）に変換される。このようにして、第1～第3のりん光性化合物の各々から発光を得ることができる。

【0055】

なお、上述のフェルスター移動を、効率よくドーパントであるりん光性化合物間で発生させ、ホスト材料にはエネルギー移動しないように設計するためには、第1～第3のホスト材料は、青色の領域に吸収スペクトルを有さないことが好ましい。具体的には、吸収スペクトルの吸収端が440nm以下であることが好ましい。このように、ホスト材料（具体的には第2あるいは第3のホスト材料）を介することなく、ドーパント間で直接エネルギー移動を行わせることにより、余分なエネルギー移動の経路の発生を抑制し、高い発光効率に結びつけることができる。

【0056】

また、第1のホスト材料は、青色発光を呈する第1のりん光性化合物を消光させないように、該第1のりん光性化合物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。

【0057】

以上で述べたように、本発明の一態様の基本コンセプトは、まず第1～第3の各りん光性化合物をホスト材料および積層構造を用いて隔離しつつ、最も短波長の発光を示す第1のりん光性化合物を主として励起する素子構造とすることである。このような素子構造においては、ある程度の距離以内（20nm以下）であればフェルスター型のエネルギー移動が一部で生じるため、青色発光を呈する第1のりん光性化合物の励起エネルギーが、部分的に第2のりん光性化合物へ移動し、さらには、第2のりん光性化合物の励起エネルギーが、部分的に第3のりん光性化合物へ移動し、第1～第3の各りん光性化合物から発光を得ることができる。

【0058】

しかし、ここで本発明の一態様においてさらに重要な点は、そのエネルギー移動を考慮した材料の選択および素子構造である。

【 0 0 5 9 】

まず、フェルスター移動を発生させるためには、エネルギードナー側の発光量子収率が  
高い必要があるが、本発明の一態様においてはりん光性化合物（具体的には、りん光量子  
収率が 0 . 1 以上の発光性化合物）を用いるため、問題は生じない。重要な点は、式（ 1  
）の積分項を大きくする、すなわち、エネルギードナーの発光スペクトル  $F$ （ ）とエネ  
ルギーアクセプターのモル吸光係数（ ）をうまくオーバーラップさせることである。

【 0 0 6 0 】

一般には、エネルギーアクセプターのモル吸光係数（ ）が大きい波長領域で、エネ  
ルギードナーの発光スペクトル  $F$ （ ）を重ねればよい（つまり、 $F$ （ ）（ ）の積を  
大きくすればよい）と考えられている。しかし、これはフェルスター機構においては必ず  
しも真ではない。なぜならば、式（ 1 ）の積分項は、振動数 の 4 乗に反比例しており、  
波長依存性が存在するためである。

【 0 0 6 1 】

より分かりやすくするために、まず式（ 1 ）を変形する。光の波長を とすると、 $c = c$   
/ であるから、式（ 1 ）は下記式（ 2 ）の通り書き換えることができる。

【 0 0 6 2 】

【数 2】

$$k_F = \frac{9000K^2 \phi \ln 10}{128\pi^5 n^4 N \tau R^6} \int F(\lambda) \varepsilon(\lambda) \lambda^4 d\lambda \dots (2)$$

【 0 0 6 3 】

つまり、積分項は波長 が大きいほど大きくなることがわかる。端的には、長波長側ほど  
エネルギー移動は起こりやすくなることを意味している。つまり、モル吸光係数（ ）  
が大きい波長領域で  $F$ （ ）が重なればよいという単純なものではなく、（ ）<sup>4</sup> が  
大きい領域において  $F$ （ ）が重なるようにしなければならない。

【 0 0 6 4 】

したがって本発明の一態様の発光素子における第 2 のりん光性化合物 1 1 3 G d としては  
、青色発光を呈する第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B d（具体的には 4 4 0 n m ~ 5 2 0 n  
m に発光のピークを有するりん光性化合物）からのエネルギー移動効率を高めるために、  
4 4 0 n m ~ 5 2 0 n m の範囲に（ ）<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する  
極大値 A を有し、かつ前記第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B d よりも長波長の発光を呈する  
りん光性化合物（具体的には 5 2 0 n m ~ 6 0 0 n m の範囲に発光のピークを有するりん  
光性化合物）を用いる。また、第 3 のりん光性化合物 1 1 3 R d としては、第 2 のりん光  
性化合物 1 1 3 G d からのエネルギー移動効率を高めるために、5 2 0 n m ~ 6 0 0 n m  
の範囲に（ ）<sup>4</sup> で表される関数の最も長波長側に位置する極大値 B を有し、かつ前  
記第 2 のりん光性化合物 1 1 3 G d よりも長波長の発光を呈するりん光性化合物を用いる  
。

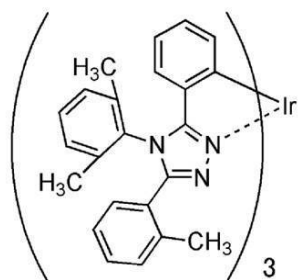
【 0 0 6 5 】

このようなりん光性化合物の構成（特に極大値 A や B ）に関し、理解を深めるため、以下  
では具体例を用いて説明する。ここでは、青色発光を示す第 1 のりん光性化合物 1 1 3 B  
d として、下記化合物（ 1 ）（トリス { 2 - [ 5 - ( 2 - メチルフェニル ) - 4 - ( 2 ,  
6 - ジメチルフェニル ) - 4 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 3 - イル - N 2 ] フェニ  
ル - C } イリジウム ( I I I )（略称：I r ( m p p t z - d m p )<sub>3</sub> ) ) を、第 1 の  
りん光性化合物 1 1 3 B d よりも長波長の発光（緑色発光）を示す第 2 のりん光性化合物  
1 1 3 G d として、下記化合物（ 2 ）（ ( アセチルアセトナト ) ビス ( 6 - t e r t - ブ  
チル - 4 - フェニルピリミジナト ) イリジウム ( I I I )（略称：I r ( t B u p p m )  
<sub>2</sub> ( a c a c ) ) ) を、第 2 のりん光性化合物 1 1 3 G d よりも長波長の発光（赤色発光

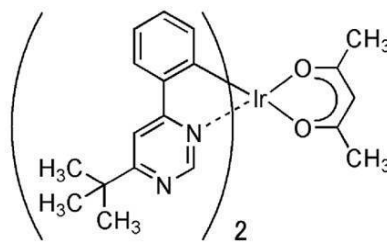
）を示す第3のりん光性化合物113Rdとして、下記化合物（3）（ビス（2,3,5-トリフェニルピラジナト）（ジビパロイルメタナト）イリジウム（III）（略称：Ir（tppr）<sub>2</sub>（dpm））を、それぞれ用いた場合を例に説明する。

【0066】

【化1】

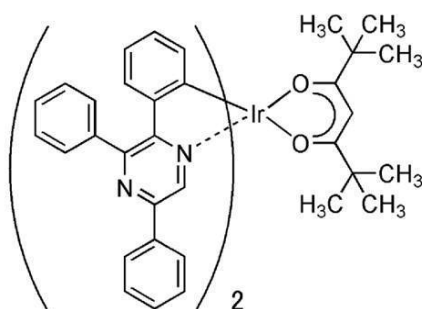


化合物(1)



化合物(2)

10



化合物(3)

20

【0067】

図3（a）は、第2のりん光性化合物である化合物（2）のモル吸光係数（ ）と、（ ）<sup>4</sup>とを示したものである。モル吸光係数（ ）は、長波長側になるにつれて低下していくが、（ ）<sup>4</sup>は490nm付近（化合物（2）の三重項MLCT吸収帯に相当する）で極大値Aを有している。この例からわかるように、<sup>4</sup>の項の影響で、第2のりん光性化合物の（ ）<sup>4</sup>は、最も長波長側に位置する吸収帯（三重項MLCT吸収帯）に極大値Aを有する。

30

【0068】

一方、図3（b）は、化合物（1）のフォトルミネッセンス（PL）スペクトルF（ ）と、化合物（2）の（ ）<sup>4</sup>とを示したものである。化合物（1）は第1のりん光性化合物であり、475nmおよび505nm付近に発光ピークを有する青色発光を呈する。この第1のりん光性化合物のPLスペクトルF（ ）は、第2のりん光性化合物の（ ）<sup>4</sup>の極大値A付近において、（ ）<sup>4</sup>と大きな重なりを有しており、第1のりん光性化合物から第2のりん光性化合物へフェルスター機構によるエネルギー移動が発生する。なおこの場合、極大値Aは三重項MLCT吸収帯に対応しているため、三重項-三重項のフェルスター型エネルギー移動である（図2におけるT<sub>B</sub>-T<sub>G</sub>エネルギー移動）。

40

【0069】

次に、図4（a）は、第3のりん光性化合物である化合物（3）のモル吸光係数（ ）と、（ ）<sup>4</sup>とを示したものである。モル吸光係数（ ）は、長波長側になるにつれて低下していくが、（ ）<sup>4</sup>は550nm付近（化合物（3）の三重項MLCT吸収帯に相当する）で極大値Bを有している。この例からわかるように、<sup>4</sup>の項の影響で、第3のりん光性化合物の（ ）<sup>4</sup>は、最も長波長側に位置する吸収帯（三重項ML

50

C T 吸収帯) に極大値 B を有する。

【0070】

一方、図4(b)は、化合物(2)のフォトルミネッセンス(PL)スペクトルF( )と、化合物(3)の( )<sup>4</sup>とを示したものである。化合物(2)は第2のりん光性化合物であり、545nm付近に発光ピークを有する緑色発光を呈する。この第2のりん光性化合物のPLスペクトルF( )は、第3のりん光性化合物の( )<sup>4</sup>の極大値B付近において、( )<sup>4</sup>と大きな重なりを有しており、第2のりん光性化合物から第3のりん光性化合物へフェルスター機構によるエネルギー移動が発生する。なおこの場合、極大値Bは三重項MLCT吸収帯に対応しているため、三重項-三重項のフェルスター型エネルギー移動である(図2におけるT<sub>G</sub>-T<sub>R</sub>エネルギー移動)。

10

【0071】

なお、以上のことから、第2および第3のりん光性化合物は、吸収スペクトルの最も長波長側に、一重項基底状態から三重項励起状態への電子遷移に相当する直接吸収(例えば、三重項MLCT吸収)を有していることが好ましい。このような構成とすることで、図2に示したような三重項-三重項のエネルギー移動が効率よく生じることになる。

【0072】

ここで、図3(b)と図4(b)を同一の図上にまとめ、さらに第3のりん光性化合物である化合物(3)のPLスペクトルも併せて記載した図を、図5に示す。化合物(1)のPLスペクトルと化合物(2)の( )<sup>4</sup>との重なり(極大値A付近)を使って化合物(1)から化合物(2)へ、そして、化合物(2)のPLスペクトルと化合物(3)の( )<sup>4</sup>との重なり(極大値B付近)を使って化合物(2)から化合物(3)へ、段階的にエネルギー移動が可能であることがわかる。なお、第1のりん光性化合物である化合物(1)から、第3のりん光性化合物である化合物(3)に直接エネルギー移動することもできる。これは、図5からわかるように、化合物(3)の三重項MLCT吸収帯(極大値B付近)よりも短波長側で、化合物(1)のPLスペクトルF( )と化合物(3)の( )<sup>4</sup>とが重なっているためであり、三重項-一重項のフェルスター型エネルギー移動が存在することが示唆される(図2におけるT<sub>B</sub>-S<sub>R</sub>エネルギー移動)。

20

【0073】

以上の図3、4、5からわかる重要なことは、<sup>4</sup>の影響により、第2のりん光性化合物に比べ、第3のりん光性化合物の方がエネルギーを受け取りやすい(エネルギーアクセプターとなりやすい)ことである。第2のりん光性化合物、第3のりん光性化合物共に、最も長波長側の三重項MLCT吸収帯のモル吸光係数( )は5000[M<sup>-1</sup>cm<sup>-1</sup>]程度であり、ほぼ同等である。にも関わらず、図5を見るとわかるように、( )<sup>4</sup>の極大値Aと極大値Bとを比較すると、極大値Bの方が1.6倍ほど大きくなっている。これは<sup>4</sup>の項の影響であり、より長波長に吸収帯を有している化合物の方が、( )<sup>4</sup>はより大きくなる傾向を示している。それ故に、第2のりん光性化合物に比べて、第3のりん光性化合物の方がエネルギーを受け取りやすいことを示している。

30

【0074】

そこで、第1乃至第3の発光層をこの順に積層し、さらにキャリアの再結合領域を、第1の発光層内、あるいは第1の発光層と第2の発光層との界面近傍とする(すなわち、第1のりん光性化合物を主として励起する)素子構造へ着目した(図1で示した通りである)。このような素子構造とすることで、よりエネルギーの高い第1のりん光性化合物がまず励起され、エネルギーの低い第2のりん光性化合物、第3のりん光性化合物へ効率よくエネルギー移動をさせることができる。

40

【0075】

なお、上述した再結合領域を得るために、第1の発光層は電子輸送性であり、前記第2の発光層および前記第3の発光層は正孔輸送性であることが好ましい(図1(b))。具体的には、例えば、第1のホスト材料として電子輸送性の材料を用い、第2のホスト材料および前記第3のホスト材料として、正孔輸送性の材料を用いればよい。

【0076】

50

また、上述した再結合領域を得る他の一態様として、第1の発光層は正孔輸送性であり、前記第2の発光層および前記第3の発光層は電子輸送性であることが好ましい(図1(a))。具体的には、例えば、第1のホスト材料として正孔輸送性の材料を用い、第2のホスト材料および前記第3のホスト材料として、電子輸送性の材料を用いればよい。

【0077】

(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。

【0078】

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。

【0079】

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。

【0080】

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、中間層等を適宜組み合わせる構成をすることができる。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。

【0081】

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:  $H_2Pc$ )や銅フタロシアニン( $CuPC$ )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)(PEDOT/PSS

10

20

30

40

50



）等の高分子等によっても正孔注入層 1 1 1 を形成することができる。

#### 【 0 0 8 2 】

また、正孔注入層 1 1 1 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 1 0 1 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：F<sub>4</sub> - 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、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高いため好ましい。中でも特に、酸化モリブデンは大気中でも安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため好ましい。

10

#### 【 0 0 8 3 】

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、 dendrimer、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

#### 【 0 0 8 4 】

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：DPA3B）等を挙げることができる。

#### 【 0 0 8 5 】

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

#### 【 0 0 8 6 】

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

#### 【 0 0 8 7 】

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：DPPA）、2 - tert - ブチル - 9, 10 - ビス（4 - フェニルフェニル）アントラセン（略称：t - BuDBA）、9, 10 - ジ（2 - ナフチル）アントラセン（略称：DNA）、9, 10 - ジフェニルアントラ

50

セン（略称：DPAanth）、2-tert-ブチルアントラセン（略称：t-BuAnth）、9,10-ビス（4-メチル-1-ナフチル）アントラセン（略称：DMNA）、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。

10

#### 【0088】

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。

#### 【0089】

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。

20

#### 【0090】

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。

#### 【0091】

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。

30

40

#### 【0092】

発光層113は、発光性の物質を含む層である。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とから、本実施の形態における発光素子は非常に発光効率の良好な発光素子とすることができる。発光層113の構成及び材料については実施の形態1の記載を参照されたい。

50

## 【0093】

発光層113において、発光物質、若しくは発光中心物質として用いることが可能な材料としては特に限定は無い。上記発光物質又は発光中心物質としては例えば、以下の様なものが挙げられる。

## 【0094】

第1のりん光性化合物は青色発光を示すものが好ましく、例えば440nm~520nmに発光のピークを有するりん光性化合物を選択することができる。具体的には、トリス{2-[5-(2-メチルフェニル)-4-(2,6-ジメチルフェニル)-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(mpp tz-dmp)<sub>3</sub>)、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)<sub>3</sub>)、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)<sub>3</sub>)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)<sub>3</sub>)、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)<sub>3</sub>)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)<sub>3</sub>)、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(dmpimp t-Me)<sub>3</sub>)のようなイミダゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体や、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)テトラキス(1-ピラゾリル)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<sup>2'</sup>]イリジウム(III)ピコリナート(略称:FIrpic)、ビス{2-[3',5'-ビス(トリフルオロメチル)フェニル]ピリジナト-N,C<sup>2'</sup>}イリジウム(III)ピコリナート(略称:Ir(CF<sub>3</sub>ppy)<sub>2</sub>(pic))、ビス[2-(4',6'-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N,C<sup>2'</sup>]イリジウム(III)アセチルアセトナート(略称:FIracac)のような電子吸引基を有するフェニルピリジン誘導体を配位子とする有機金属イリジウム錯体が挙げられる。上述した中でも、4H-トリアゾール、1H-トリアゾール、イミダゾールのようなポ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、本発明の一態様の発光素子における第1の発光層が電子輸送性である場合(具体的には、第1のホスト材料が電子輸送材料である場合)、ポリアゾール骨格を有する有機金属イリジウム錯体を第1のりん光性化合物として用いることで、キャリアの再結合領域を第1の発光層内、あるいは第1の発光層と第2の発光層との界面近傍に制御することができるため好ましい。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。

## 【0095】

第2のりん光性化合物は、第1のりん光性化合物よりも長波長の発光を示す化合物を用いればよいが、好ましくは、例えば520nm~600nmに発光のピークを有するりん光性化合物を選択することができる。具体的には、トリス(4-メチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(mppm)<sub>3</sub>)、トリス(4-t-ブチル-6-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(tBuppm)<sub>3</sub>)、(アセチルアセトナト)ビス(6-メチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(mppm)<sub>2</sub>(acac))、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(acac))、(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(nb ppm)

10

20

30

40

50

${}_2(acac)$ 、(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:  $Ir(mpppm)_2(acac)$ )、(アセチルアセトナト)ビス(4,6-ジフェニルピリミジナト)イリジウム(III)(略称:  $Ir(dppm)_2(acac)$ )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:  $Ir(ppy)_3$ )、ビス(2-フェニルピリジナト-N,  $C^{2'}$ )イリジウム(III)アセチルアセトナト(略称:  $Ir(ppy)_2(acac)$ )、ビス(ベンゾ[h]キノリナト)イリジウム(III)アセチルアセトナト(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。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、本発明の一態様の発光素子における第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)、ジアジン骨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ることで、キャリアの再結合領域を第1の発光層内、あるいは第1の発光層と第2の発光層との界面近傍に制御することができるため好ましい。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。

#### 【0096】

第3のりん光性化合物は、第2のりん光性化合物よりも長波長の発光を示す化合物を用いればよいが、好ましくは、例えば600nm~700nmに発光のピークを有する赤色発光のりん光性化合物を選択することができる。具体的には、(2,6-ジメチル-3,5-ヘプタンジオナト-2O, O')ビス[4-メチル-2-(3-メチル-4-ピリミジニル-N3)フェニル-C]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](ジビパロイルメタナト)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](ジビパロイルメタナト)イリジウム(III)(略称:  $Ir(d1nppm)_2(dpm)$ )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)(ジビパロイルメタナト)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:  $Ir(pi q)_3$ )、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:  $Ir(pi q)_2(acac)$ )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

10

20

30

40

50

- (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)<sub>3</sub>(Phen)) のような希土類金属錯体が挙げられる。上述した中でも、ピリミジン、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、本発明の一態様の発光素子における第3の発光層が正孔輸送性である場合 (具体的には、第3のホスト材料が正孔輸送材料である場合)、ジアジン骨格を有する有機金属イリジウム錯体を第3のりん光性化合物として用いることで、キャリアの再結合領域を第1の発光層内、あるいは第1の発光層と第2の発光層との界面近傍に制御することができるため好ましい。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、本発明の一態様の白色発光素子に適用することで演色性を高めることができる。

10

#### 【0097】

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、実施の形態1に示したような関係を有する第1のりん光材料、第2のりん光材料及び第3のりん光材料を選択し、用いてもよい。

#### 【0098】

また、上記第1～第3のホスト材料として用いることが可能な材料としては、特に限定はなく、種々のキャリア輸送材料を選択し、図1に示した素子構造が得られるように適宜組み合わせればよい。この時、上述した通り、電子輸送性のホスト材料と正孔輸送性のホスト材料を組み合わせる事が好ましい。

20

#### 【0099】

例えば、電子輸送性を有するホスト材料としては、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: BeBq<sub>2</sub>)、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: ZnPBO)、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-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール (略称: PBD)、3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール (略称: 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)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)、2-[3'-(ジベンゾチオフェン-4-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン (略称: 2mDBTBPDq-II)、2-[3'-(9H-カルバゾール-9-イル)ビフェニル-3-イル]ジベンゾ[f,h]キノキサリン (略称: 2mCzBPDq)、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-(3-ピリジル)-フェニル]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る。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

30

40

50

合物は、電子輸送性が高く、駆動電圧低減にも寄与する。

【0100】

第2の発光層及び第3の発光層を厚さ2nm以下の島状に形成する場合は、ホスト材料及び発光中心材料の蒸着源に対して、相対的に適切なスピードで成膜される面を移動させて成膜すると良い。また、当該島状の第2の発光領域及び第3の発光領域の積層膜を形成するには、共蒸着源を適切に離れた2箇所を用意し、成膜される面を適切な速度で公転させることによって形成することができる。なお、これら島状の発光領域及び積層膜を形成する方法については、上記に限られず、どのような方法によって実現されても良い。

【0101】

また、正孔輸送性を有するホスト材料としては、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:PCBA1BP)、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:PCBNBB)、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:PCBAF)、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-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)ピフェニル(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(ジベンゾチオフェン)(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]ジベンゾチオフェン(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ェン(略称:DBTFLP-IV)などのチオフェ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る。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。

【0102】

また、以上で述べたホスト材料の他、公知の物質の中からホスト材料を用いても良い。なお、ホスト材料としては、りん光性化合物の三重項準位(基底状態と三重項励起状態とのエネルギー差)よりも大きい三重項準位を有する物質を選択することが好ましい。また、これらホスト材料は青色の領域に吸収スペクトルを有さないことが好ましい。具体的には、吸収スペクトルの吸収端が440nm以下であることが好ましい。

【0103】

以上のような構成を有する発光層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

10

20

30

40

50

る。

#### 【0104】

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:  $Almq_3$ )、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナト)ベリリウム(略称:  $BeBq_2$ )、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)ベンズオキサゾラト]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-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:  $PBD$ )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-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:  $TAZ$ )、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。

10

#### 【0105】

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。

20

#### 【0106】

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。

#### 【0107】

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( $CaF_2$ )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。

30

#### 【0108】

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、 $Al$ 、 $Ag$ 、 $ITO$ 、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。

40

#### 【0109】

50

また、E L 層 1 0 3 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。

#### 【 0 1 1 0 】

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。

#### 【 0 1 1 1 】

以上のような構成を有する発光素子は、第 1 の電極 1 0 1 と第 2 の電極 1 0 2 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 1 1 3 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 1 1 3 に発光領域が形成されるような構成となっている。

#### 【 0 1 1 2 】

発光は、第 1 の電極 1 0 1 または第 2 の電極 1 0 2 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 1 0 1 または第 2 の電極 1 0 2 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 1 0 1 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 1 0 1 を通って取り出される。また、第 2 の電極 1 0 2 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 1 0 2 を通って取り出される。第 1 の電極 1 0 1 および第 2 の電極 1 0 2 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 1 0 1 および第 2 の電極 1 0 2 を通って、両方から取り出される。

#### 【 0 1 1 3 】

なお、第 1 の電極 1 0 1 と第 2 の電極 1 0 2 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 1 0 1 および第 2 の電極 1 0 2 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。

#### 【 0 1 1 4 】

また、発光層 1 1 3 に接する正孔輸送層や電子輸送層、特に発光層 1 1 3 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、そのバンドギャップが発光層を構成する発光物質もしくは、発光層に含まれる発光中心物質が有するバンドギャップより大きいバンドギャップを有する物質で構成することが好ましい。

#### 【 0 1 1 5 】

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 1 0 1 側から順に積層しても、第 2 の電極 1 0 2 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 ( T F T ) を形成し、 T F T と電氣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、 T F T 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、 T F T の構造は、特に限定されない。スタガ型の T F T でもよいし逆スタガ型の T F T でもよい。また、 T F T 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、 T F T 基板に形成される駆動用回路についても、 N 型および P 型の T F T からなるものでもよいし、若しくは N 型の T F T または P 型の T F T のいずれか一方からのみなるものであってもよい。

#### 【 0 1 1 6 】

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 1 7 】



(実施の形態 3)

本実施の形態では、実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を用いた発光装置について説明する。

【0118】

本実施の形態では、実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 6 を用いて説明する。なお、図 6 (A) は、発光装置を示す上面図、図 6 (B) は図 6 (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、625 は乾燥剤、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。

10

【0119】

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。

【0120】

20

次に、断面構造について図 6 (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。

【0121】

なお、ソース線駆動回路 601 は n チャンネル型 TFT 623 と p チャンネル型 TFT 624 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。

【0122】

30

また、画素部 602 はスイッチング用 TFT 611 と、電流制御用 TFT 612 とそのドレインに電気的に接続された第 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。

【0123】

駆動回路部及び画素部にはさまざまな構造のトランジスタを適用できる。また、これらのトランジスタのチャンネルが形成される領域には、さまざまな半導体を用いることができる。具体的には、アモルファスシリコン、ポリシリコン、単結晶シリコンの他、酸化物半導体などを用いることができる。

【0124】

40

トランジスタのチャンネルが形成される領域に単結晶半導体を用いると、トランジスタサイズを微細化することが可能となるため、表示部において画素をさらに高精細化することができる。

【0125】

半導体層を構成する単結晶半導体としては、代表的には、単結晶シリコン基板、単結晶ゲルマニウム基板、単結晶シリコンゲルマニウム基板など、第 14 族元素でなる単結晶半導体基板、化合物半導体基板 (SiC 基板、サファイア基板、GaN 基板等) などの半導体基板を用いることができる。好適には、絶縁表面上に単結晶半導体層が設けられた SOI (Silicon On Insulator) 基板を用いることができる。

【0126】

50

また、チャネルが形成される領域に、エネルギーギャップが  $3.0 \text{ eV}$  以上と大きく、酸化物半導体を適切な条件で加工し、そのキャリア密度を十分に低減して得られた酸化物半導体を用いたトランジスタにおいては、オフ状態でのソースとドレイン間のリーク電流（オフ電流）を、従来のシリコンを用いたトランジスタと比較して極めて低いものとすることができる。

#### 【0127】

適用可能な酸化物半導体としては、少なくともインジウム（ $\text{In}$ ）あるいは亜鉛（ $\text{Zn}$ ）を含むことが好ましい。特に  $\text{In}$  と  $\text{Zn}$  を含むことが好ましい。また、該酸化物半導体を用いたトランジスタの電気特性のばらつきを減らすためのスタビライザーとして、それらに加えてガリウム（ $\text{Ga}$ ）を有することが好ましい。また、スタビライザーとしてスズ（ $\text{Sn}$ ）を有することが好ましい。また、スタビライザーとしてハフニウム（ $\text{Hf}$ ）、ジルコニウム（ $\text{Zr}$ ）、チタン（ $\text{Ti}$ ）、スカンジウム（ $\text{Sc}$ ）、イットリウム（ $\text{Y}$ ）、ランタノイド（例えば、セリウム（ $\text{Ce}$ ）、ネオジム（ $\text{Nd}$ ）、ガドリニウム（ $\text{Gd}$ ））から選ばれた一種、または複数種が含まれていることが好ましい。

#### 【0128】

例えば、酸化物半導体として、酸化インジウム、酸化スズ、酸化亜鉛、二元系金属の酸化物である  $\text{In}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Sn}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Al}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Zn}-\text{Mg}$  系酸化物、 $\text{Sn}-\text{Mg}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Mg}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Ga}$  系酸化物、三元系金属の酸化物である  $\text{In}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物（ $\text{IGZO}$ とも表記する）、 $\text{In}-\text{Al}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Sn}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Sn}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Al}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{Sn}-\text{Al}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Hf}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Zr}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Ti}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Sc}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Y}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{La}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Ce}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Pr}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Nd}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Sm}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Eu}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Gd}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Tb}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Dy}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Ho}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Er}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Tm}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Yb}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Lu}-\text{Zn}$  系酸化物、四元系金属の酸化物である  $\text{In}-\text{Sn}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Hf}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Al}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Sn}-\text{Al}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Sn}-\text{Hf}-\text{Zn}$  系酸化物、 $\text{In}-\text{Hf}-\text{Al}-\text{Zn}$  系酸化物を用いることができる。

#### 【0129】

ここで、 $\text{In}-\text{Ga}-\text{Zn}$  系酸化物とは、 $\text{In}$  と  $\text{Ga}$  と  $\text{Zn}$  を主成分として有する酸化物という意味であり、 $\text{In}$  と  $\text{Ga}$  と  $\text{Zn}$  の比率は問わない。また、 $\text{In}$  と  $\text{Ga}$  と  $\text{Zn}$  以外の金属元素が入っていてもよい。

#### 【0130】

また、酸化物半導体として、 $\text{InMO}_3(\text{ZnO})_m$ （ $m > 0$ 、且つ、 $m$  は整数でない）で表記される材料を用いてもよい。なお、 $M$  は、 $\text{Ga}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Mn}$  及び  $\text{Co}$  から選ばれた一の金属元素または複数の金属元素、若しくは上記のスタビライザーとしての元素を示す。また、酸化物半導体として、 $\text{In}_2\text{SnO}_5(\text{ZnO})_n$ （ $n > 0$ 、且つ、 $n$  は整数）で表記される材料を用いてもよい。

#### 【0131】

例えば、 $\text{In}:\text{Ga}:\text{Zn} = 1:1:1$ 、 $\text{In}:\text{Ga}:\text{Zn} = 3:1:2$ 、あるいは  $\text{In}:\text{Ga}:\text{Zn} = 2:1:3$  の原子数比の  $\text{In}:\text{Ga}:\text{Zn}$  系酸化物やその組成の近傍の酸化物を用いるとよい。

#### 【0132】

酸化物半導体層は単結晶でも、非単結晶でもよい。後者の場合、アモルファスでも、多結晶でもよい。また、アモルファス中に結晶性を有する部分を含む構造でも、非アモルファスでもよい。

#### 【0133】

好ましくは、酸化物半導体膜は、 $\text{CAAC-OS}(\text{C Axis Aligned C$

10

20

30

40

50

crystalline Oxide Semiconductor) 膜とする。

【0134】

以下では、酸化物半導体膜の構造について説明する。

【0135】

酸化物半導体膜は、単結晶酸化物半導体膜と非単結晶酸化物半導体膜とに大別される。非単結晶酸化物半導体膜とは、非晶質酸化物半導体膜、微結晶酸化物半導体膜、多結晶酸化物半導体膜、CAAC-OS (C Axis Aligned Crystalline Oxide Semiconductor) 膜などをいう。

【0136】

非晶質酸化物半導体膜は、膜中における原子配列が不規則であり、結晶成分を有さない酸化物半導体膜である。微小領域においても結晶部を有さず、膜全体が完全な非晶質構造の酸化物半導体膜が典型である。

【0137】

微結晶酸化物半導体膜は、例えば、1 nm以上10 nm未満の大きさの微結晶（ナノ結晶ともいう。）を含む。従って、微結晶酸化物半導体膜は、非晶質酸化物半導体膜よりも原子配列の規則性が高い。そのため、微結晶酸化物半導体膜は、非晶質酸化物半導体膜よりも欠陥準位密度が低いという特徴がある。

【0138】

CAAC-OS膜は、複数の結晶部を有する酸化物半導体膜の一つであり、ほとんどの結晶部は、一辺が100 nm未満の立方体内に収まる大きさである。従って、CAAC-OS膜に含まれる結晶部は、一辺が10 nm未満、5 nm未満または3 nm未満の立方体内に収まる大きさの場合も含まれる。CAAC-OS膜は、微結晶酸化物半導体膜よりも欠陥準位密度が低いという特徴がある。以下、CAAC-OS膜について詳細な説明を行う。

【0139】

CAAC-OS膜を透過型電子顕微鏡（TEM: Transmission Electron Microscope）によって観察すると、結晶部同士の明確な境界、即ち結晶粒界（グレインバウンダリーともいう。）を確認することができない。そのため、CAAC-OS膜は、結晶粒界に起因する電子移動度の低下が起こりにくいといえる。

【0140】

CAAC-OS膜を、試料面と概略平行な方向からTEMによって観察（断面TEM観察）すると、結晶部において、金属原子が層状に配列していることを確認できる。金属原子の各層は、CAAC-OS膜の膜を形成する面（被形成面ともいう。）または上面の凹凸を反映した形状であり、CAAC-OS膜の被形成面または上面と平行に配列する。

【0141】

一方、CAAC-OS膜を、試料面と概略垂直な方向からTEMによって観察（平面TEM観察）すると、結晶部において、金属原子が三角形または六角形状に配列していることを確認できる。しかしながら、異なる結晶部間で、金属原子の配列に規則性は見られない。

【0142】

断面TEM観察および平面TEM観察より、CAAC-OS膜の結晶部は配向性を有していることがわかる。

【0143】

CAAC-OS膜に対し、X線回折（XRD: X-Ray Diffraction）装置を用いて構造解析を行うと、例えばInGaZnO<sub>4</sub>の結晶を有するCAAC-OS膜のout-of-plane法による解析では、回折角（2 $\theta$ ）が31°近傍にピークが現れる場合がある。このピークは、InGaZnO<sub>4</sub>の結晶の（009）面に帰属されることから、CAAC-OS膜の結晶がc軸配向性を有し、c軸が被形成面または上面に概略垂直な方向を向いていることが確認できる。

## 【0144】

一方、CAAC-OS膜に対し、c軸に概略垂直な方向からX線を入射させるin-plane法による解析では、2θが56°近傍にピークが現れる場合がある。このピークは、InGaZnO<sub>4</sub>の結晶の(110)面に帰属される。InGaZnO<sub>4</sub>の単結晶酸化物半導体膜であれば、2θを56°近傍に固定し、試料面の法線ベクトルを軸(c軸)として試料を回転させながら分析(スキャン)を行うと、(110)面と等価な結晶面に帰属されるピークが6本観察される。これに対し、CAAC-OS膜の場合は、2θを56°近傍に固定してスキャンした場合でも、明瞭なピークが現れない。

## 【0145】

以上のことから、CAAC-OS膜では、異なる結晶部間ではa軸およびb軸の配向は不規則であるが、c軸配向性を有し、かつc軸が被形成面または上面の法線ベクトルに平行な方向を向いていることがわかる。従って、前述の断面TEM観察で確認された層状に配列した金属原子の各層は、結晶のab面に平行な面である。

10

## 【0146】

なお、結晶部は、CAAC-OS膜を成膜した際、または加熱処理などの結晶化処理を行った際に形成される。上述したように、結晶のc軸は、CAAC-OS膜の被形成面または上面の法線ベクトルに平行な方向に配向する。従って、例えば、CAAC-OS膜の形状をエッチングなどによって変化させた場合、結晶のc軸がCAAC-OS膜の被形成面または上面の法線ベクトルと平行にならないこともある。

## 【0147】

20

また、CAAC-OS膜中の結晶化度が均一でなくてもよい。例えば、CAAC-OS膜の結晶部が、CAAC-OS膜の上面近傍からの結晶成長によって形成される場合、上面近傍の領域は、被形成面近傍の領域よりも結晶化度が高くなることがある。また、CAAC-OS膜に不純物を添加する場合、不純物が添加された領域の結晶化度が変化し、部分的に結晶化度の異なる領域が形成されることもある。

## 【0148】

なお、InGaZnO<sub>4</sub>の結晶を有するCAAC-OS膜のout-of-plane法による解析では、2θが31°近傍のピークの他に、2θが36°近傍にもピークが現れる場合がある。2θが36°近傍のピークは、CAAC-OS膜中の一部に、c軸配向性を有さない結晶が含まれることを示している。CAAC-OS膜は、2θが31°近傍にピークを示し、2θが36°近傍にピークを示さないことが好ましい。

30

## 【0149】

CAAC-OS膜を用いたトランジスタは、可視光や紫外光の照射による電気特性の変動が小さい。よって、当該トランジスタは、信頼性が高い。

## 【0150】

なお、酸化物半導体膜は、例えば、非晶質酸化物半導体膜、微結晶酸化物半導体膜、CAAC-OS膜のうち、二種以上を有する積層膜であってもよい。

## 【0151】

本明細書において、「平行」とは、二つの直線が-10°以上10°以下の角度で配置されている状態をいう。従って、-5°以上5°以下の場合も含まれる。また、「垂直」とは、二つの直線が80°以上100°以下の角度で配置されている状態をいう。従って、85°以上95°以下の場合も含まれる。

40

## 【0152】

また、本明細書において、結晶が三方晶または菱面体晶である場合、六方晶系として表す。

## 【0153】

以上がCAAC-OS膜の説明である。

## 【0154】

酸化物半導体膜の形成後において、脱水化処理(脱水素化処理)を行い酸化物半導体膜から、水素、または水分を除去して不純物が極力含まれないように高純度化し、脱水化処

50

理（脱水素化処理）によって増加した酸素欠損を補填するため酸素を酸化物半導体膜に加える処理を行うことが好ましい。また、本明細書等において、酸化物半導体膜に酸素を供給する場合を、加酸素化処理と記す場合がある、または酸化物半導体膜に含まれる酸素を化学量論的組成よりも多くする場合を過酸素化処理と記す場合がある。

#### 【0155】

このように、酸化物半導体膜は、脱水化処理（脱水素化処理）により、水素または水分が除去され、加酸素化処理により酸素欠損を補填することによって、*i*型（真性）化または*i*型に限りなく近い酸化物半導体膜とすることができる。このような酸化物半導体膜中には、ドナーに由来するキャリアが極めて少なく（ゼロに近く）、キャリア濃度は $1 \times 10^{14} / \text{cm}^3$ 未満、好ましくは $1 \times 10^{12} / \text{cm}^3$ 未満、さらに好ましくは $1 \times 10^{11} / \text{cm}^3$ 未満、より好ましくは $1.45 \times 10^{10} / \text{cm}^3$ 未満となる。

10

#### 【0156】

またこのように、水素濃度が十分に低減されて高純度化され、十分な酸素の供給により酸素欠損に起因するエネルギーギャップ中の欠陥準位が低減された酸化物半導体層を備えるトランジスタは、極めて優れたオフ電流特性を実現できる。例えば、室温（25℃）でのオフ電流（ここでは、単位チャネル幅（1 μm）あたりの値）は、100 yA（1 yA（ヨクトアンペア）は $1 \times 10^{-24}$  A）以下、望ましくは、10 yA以下となる。また、85℃では、100 zA（1 zA（zeptoアンペア）は $1 \times 10^{-21}$  A）以下、望ましくは10 zA以下となる。このように、*i*型（真性）化または実質的に*i*型化された酸化物半導体層を用いることで、極めて優れたオフ電流特性のトランジスタを得ることができる。

20

#### 【0157】

絶縁物614は、上部に形成される膜の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 μm～3 μm）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。

#### 【0158】

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、2～20 wt %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。

30

#### 【0159】

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及び実施の形態2で説明したような構成を含んでいる。また、EL層616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、 dendrimerを含む）であっても良い。

40

#### 【0160】

さらに、EL層616上に形成され、陰極として機能する第2の電極617に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料（Al、Mg、Li、Ca、またはこれらの合金や化合物、MgAg、MgIn、AlLi等）を用いることが好ましい。なお、EL層616で生じた光が第2の電極617を透過させる場合には、第2の電極617として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（ITO、2～20 wt %の酸化亜鉛を含む酸化インジ

50

ウム、ケイ素を含有したインジウム錫酸化物、酸化亜鉛（ $ZnO$ ）等）との積層を用いるのが良い。

【0161】

なお、第1の電極613、EL層616、第2の電極617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及び実施の形態2に記載の発光素子である。なお、画素部は複数の発光素子が形成されてになっているが、本実施の形態における発光装置では、実施の形態1及び実施の形態2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。

【0162】

さらにシール材605で封止基板604を素子基板610と貼り合わせることで、素子基板610、封止基板604、およびシール材605で囲まれた空間607に発光素子618が備えられた構造になっている。なお、空間607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605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625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。

【0163】

なお、シール材605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604に用いる材料としてガラス基板や石英基板のほか、FRP（Fiber glass-Reinforced Plastics）、PVF（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。

【0164】

以上のようにして、実施の形態1及び実施の形態2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。

【0165】

本実施の形態における発光装置は、実施の形態1及び実施の形態2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及び実施の形態2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。

【0166】

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7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7（A）は、発光装置を示す斜視図、図7（B）は図7（A）をX-Yで切断した断面図である。図7において、基板951上には、電極952と電極956との間にはEL層955が設けられている。電極952の端部は絶縁層953で覆われている。そして、絶縁層953上には隔壁層954が設けられている。隔壁層954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954の短辺方向の断面は、台形状であり、底辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接する辺）の方が上辺（絶縁層953の面方向と同様の方向を向き、絶縁層953と接しない辺）よりも短い。このように、隔壁層954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及び実施の形態2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及び実施の形態2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。

【0167】

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ため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8(A)及び(B)に示す。図8(A)には基板1001、下地絶縁膜1002、ゲート絶縁膜1003、ゲート電極1006、1007、1008、第1の層間絶縁膜1020、第2の層間絶縁膜1021、周辺部1042、画素部1040、駆動回路部1041、発光素子の第1の電極1024W、1024R、1024G、1024B、隔壁1025、有機化合物を含む層1028、発光素子の第2の電極1029、封止基板1031、シール材1032などが図示されている。また、着色層(赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B)は透明な基材1033に設ける。また、黒色層(ブラックマトリックス)1035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1033は、位置合わせし、基板1001に固定する。なお、着色層、及び黒色層は、オーバーコート層1036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と出る発光層と、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。

#### 【0168】

また、以上に説明した発光装置では、TFTが形成されている基板1001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1031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9に示す。この場合、基板1001は光を通さない基板を用いることができる。TFT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1037を電極1022を覆って形成する。この第3の層間絶縁膜1037は平坦化の役割を担っている。第3の層間絶縁膜1037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。

#### 【0169】

発光素子の第1の電極1024W、1024R、1024G、1024B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9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。有機化合物を含む層1028の構成は、実施の形態1及び実施の形態2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及び実施の形態2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。

#### 【0170】

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8(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1033に着色層1034R、1034G、1034Bを設けて基板1001に固定することによって設けることができる。また、図8(B)のように着色層をゲート絶縁膜1003と第1の層間絶縁膜1020との間に設ける構成としても良い。図9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1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B)を設けた封止基板1031で封止を行うこともできる。封止基板1031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)1035を設けても良い。着色層(赤色の着色層1034R、緑色の着色層1034G、青色の着色層1034B)や黒色層(ブラックマトリックス)1035はオーバーコート層1036によって覆われていても良い。なお封止基板1031は透光性を有する基板をもちいることとする。

#### 【0171】

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10

10

20

30

40

50

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 及び実施の形態 2 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 7 2 】

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 7 3 】

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 7 4 】

( 実施の形態 4 )

本実施の形態では、実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を照明装置として用いる例を図 1 0 を参照しながら説明する。図 1 0 ( B ) は照明装置の上面図、図 1 0 ( A ) は図 1 0 ( B ) における e - f 断面図である。

【 0 1 7 5 】

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 3 における第 1 の電極 1 0 1 に相当する。

【 0 1 7 6 】

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、無効電流を低減し、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 7 7 】

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 及び実施の形態 2 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 7 8 】

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 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 4 0 4 はパッド 4 1 2 と接続することによって、電圧が供給されるものとする。

【 0 1 7 9 】

以上、第 1 の電極 4 0 1、E L 層 4 0 3、及び第 2 の電極 4 0 4 ( 及び補助電極 4 0 2 ) 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。

【 0 1 8 0 】

以上の構成を有する発光素子を、シール材 4 0 5、4 0 6 を用いて封止基板 4 0 7 を固

10

20

30

40

50



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、406 はどちらか一方でもかまわない。また、内側のシール材 406 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。

#### 【0181】

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、406 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。

#### 【0182】

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 及び実施の形態 2 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。

10

#### 【0183】

##### (実施の形態 5)

本実施の形態では、実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子と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 及び実施の形態 2 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 及び実施の形態 2 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。

20

#### 【0184】

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。

#### 【0185】

図 11(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 及び実施の形態 2 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。

30

#### 【0186】

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 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。

40

#### 【0187】

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。

#### 【0188】

図 11(B)はコンピュータであり、本体 7201、筐体 7202、表示部 7203、

50

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、このコンピュータは、実施の形態 1 又は実施の形態 2 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 7203 に用いることにより作製される。図 11 (B1) のコンピュータは、図 11 (B2) のような形態であっても良い。図 11 (B2) のコンピュータは、キーボード 7204、ポインティングデバイス 7206 の代わりに第 2 の表示部 7210 が設けられている。第 2 の表示部 7210 はタッチパネル式となっており、第 2 の表示部 7210 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 7210 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 7203 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。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 7203 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。

10

#### 【0189】

図 11 (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、実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 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 11 (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、または一方に実施の形態 1 及び実施の形態 2 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けばよく、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 11 (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 11 (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 7304 を有する携帯型遊技機は、表示部 7304 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 7304 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 7304 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。

20

30

#### 【0190】

図 11 (D) は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機は、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、実施の形態 1 及び実施の形態 2 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。

40

#### 【0191】

図 11 (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

50

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 7 4 0 2 を指などで触れることにより行うことができる。

【 0 1 9 2 】

表示部 7 4 0 2 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。

【 0 1 9 3 】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部 7 4 0 2 を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。この場合、表示部 7 4 0 2 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。

10

【 0 1 9 4 】

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 7 4 0 2 の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。

【 0 1 9 5 】

また、画面モードの切り替えは、表示部 7 4 0 2 を触れること、又は筐体 7 4 0 1 の操作ボタン 7 4 0 3 の操作により行われる。また、表示部 7 4 0 2 に表示される画像の種類によって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画のデータであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。

20

【 0 1 9 6 】

また、入力モードにおいて、表示部 7 4 0 2 の光センサで検出される信号を検知し、表示部 7 4 0 2 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。

【 0 1 9 7 】

表示部 7 4 0 2 は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部 7 4 0 2 に掌や指で触れ、掌紋、指紋等を撮像することで、本人認証を行うことができる。また、表示部に近赤外光を発光するバックライト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。

【 0 1 9 8 】

30

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 4 に示した構成を適宜組み合わせ用いることができる。

【 0 1 9 9 】

以上の様に実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 及び実施の形態 2 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。

【 0 2 0 0 】

図 1 2 は、実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 1 2 に示した液晶表示装置は、筐体 9 0 1、液晶層 9 0 2、バックライトユニット 9 0 3、筐体 9 0 4 を有し、液晶層 9 0 2 は、ドライバ IC 9 0 5 と接続されている。また、バックライトユニット 9 0 3 には、実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子が用いられおり、端子 9 0 6 により、電流が供給されている。

40

【 0 2 0 1 】

実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 2 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 2 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。

50

## 【 0 2 0 2 】

図 1 3 は、実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 1 3 に示す電気スタンドは、筐体 2 0 0 1 と、光源 2 0 0 2 を有し、光源 2 0 0 2 として、実施の形態 4 に記載の照明装置が用いられている。

## 【 0 2 0 3 】

図 1 4 は、実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を、室内の照明装置 3 0 0 1 および表示装置 3 0 0 2 として用いた例である。実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子は消費電力の低減された発光素子であるため、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 及び実施の形態 2 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 及び実施の形態 2 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。

10

## 【 0 2 0 4 】

実施の形態 1 及び実施の形態 2 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 1 5 に実施の形態 2 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 5 0 0 0 乃至表示領域 5 0 0 5 は実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を用いて設けられた表示である。

## 【 0 2 0 5 】

表示領域 5 0 0 0 と表示領域 5 0 0 1 は自動車のフロントガラスに設けられた実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を搭載した発光装置である。実施の形態 1 及び実施の形態 2 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。

20

## 【 0 2 0 6 】

表示領域 5 0 0 2 はピラー部分に設けられた実施の形態 1 及び実施の形態 2 に記載の発光素子を搭載した発光装置である。表示領域 5 0 0 2 には、車体に設けられた撮像装置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 5 0 0 3 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装置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。

30

## 【 0 2 0 7 】

表示領域 5 0 0 4 や表示領域 5 0 0 5 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。

40

## 【 0 2 0 8 】

実施の形態 1 及び実施の形態 2 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素子とすることができる。このことから、当該発光素子を用いて構成される表示領域 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 及び実施の形態 2 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。

## 【 0 2 0 9 】

50

図 1 6 ( A ) 及び図 1 6 ( 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 6 ( 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 及び実施の形態 2 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。

【 0 2 1 0 】

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。

10

【 0 2 1 1 】

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、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。

20

【 0 2 1 2 】

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。

【 0 2 1 3 】

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。

30

【 0 2 1 4 】

また、図 1 6 ( 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。

【 0 2 1 5 】

図 1 6 ( 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 6 ( B ) では充放電制御回路 9 6 3 4 の一例としてバッテリー 9 6 3 5、DCDC コンバータ 9 6 3 6 を有する構成について示している。

40

【 0 2 1 6 】

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 1 7 】

また、この他にも図 1 6 ( A ) 及び図 1 6 ( 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入力機能、様々なソフトウェア（プログラム）によって処理を制御する機能、等を有する

50

ことができる。

【 0 2 1 8 】

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 の片面又は両面に設けることができ、バッテリー 9 6 3 5 の充電を効率的に行う構成とすることができる。

【 0 2 1 9 】

また、図 1 6 ( 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 6 ( C ) にブロック図を示し説明する。図 1 6 ( 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 6 ( 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。

【 0 2 2 0 】

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。

【 0 2 2 1 】

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 2 2 】

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

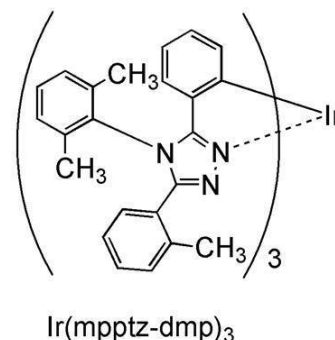
【 0 2 2 3 】

（参考例 1）

本参考例では、上記実施の形態で用いたトリス { 2 - [ 5 - ( 2 - メチルフェニル ) - 4 - ( 2 , 6 - ジメチルフェニル ) - 4 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 3 - イル - N 2 ] フェニル - C } イリジウム ( I I I ) ( 略称 : [ I r ( m p p t z - d m p ) <sub>3</sub> ] ) の合成方法について説明する。[ I r ( m p p t z - d m p ) <sub>3</sub> ] の構造を以下に示す。

【 0 2 2 4 】

【化 2】



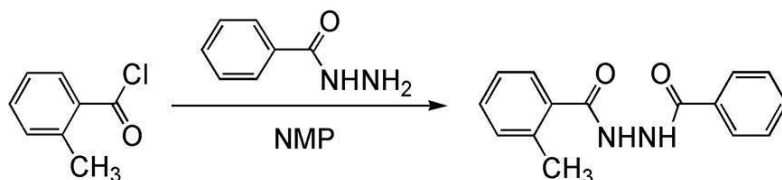
【 0 2 2 5 】

<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。

【0226】

【化3】



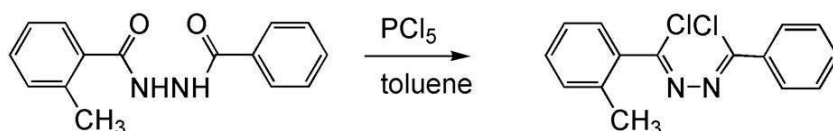
【0227】

<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。

【0228】

【化4】



【0229】

<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 - 4 H - 1, 2, 4 - トリアゾール (略称；Hm p p t z - d m p) の合成>

次に、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 12.6 g (43.3 mmol)、2, 6 - ジメチルアニリン 15.7 g (134.5 mmol)、N, N - ジメチルアニリン 100 ml を 500 ml ナスフラスコに入れ、120 °C で 20 時間加熱攪拌した。所定時間反応後、この反応溶液を 1 N 塩酸 200 ml 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

10

20

30

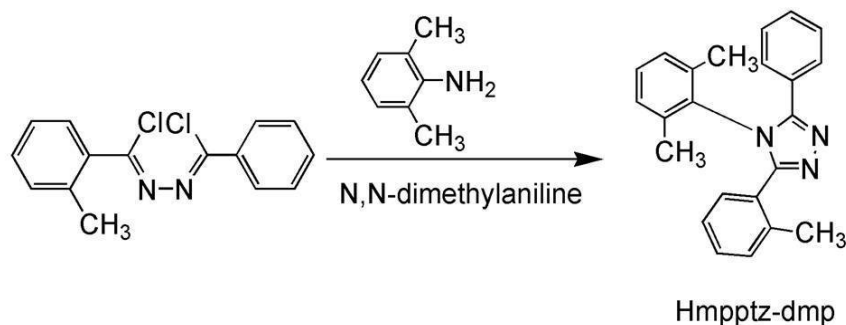
40

50

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。

【0230】

【化5】



10

【0231】

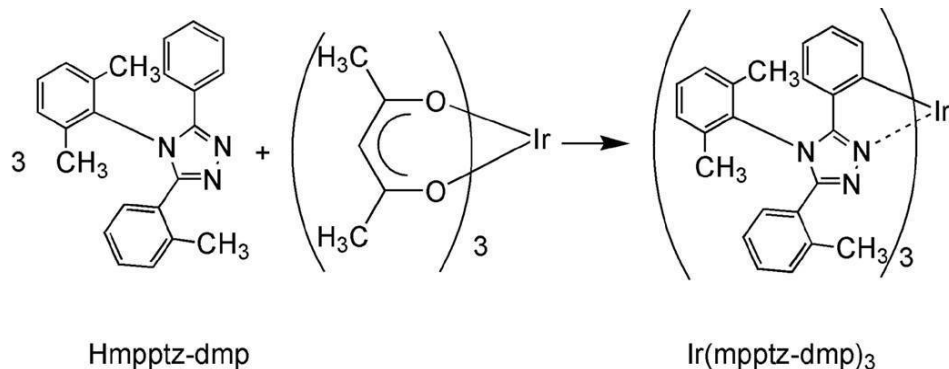
<ステップ4; [Ir(mpptz-dmp)<sub>3</sub>]の合成>

上記ステップ3で得た配位子Hmpptz-dmp 2.5g (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時間加熱攪拌した。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。

20

【0232】

【化6】



30

【0233】

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(<sup>1</sup>H-NMR)による分析結果を以下に示す。これより、本合成方法によって、[Ir(mpptz-dmp)<sub>3</sub>]が得られたことがわかった。

【0234】

<sup>1</sup>H-NMR. (toluene-d<sub>8</sub>): 1.82 (s, 3H), 1.90 (s, 3H), 2.64 (s, 3H), 6.56 - 6.62 (m, 3H), 6.67 - 6.75 (m, 3H), 6.82 - 6.88 (m, 1H), 6.91 - 6.97 (t, 1H), 7.00 - 7.12 (m, 2H), 7.63 - 7.67 (d, 1H)

【0235】

(参考例2)

上記実施の形態で用いた有機金属錯体、(アセチルアセトナト)ビス(6-tert-ブチル-4-フェニルピリミジナト)イリジウム(III)(別名:ビス[2-(6-tert-ブチル-4-ピリミジニル-N3)フェニル-C](2,4-ペンタンジオナト-<sup>2</sup>O,O'))イリジウム(III)(略称:[Ir(tBuppm)<sub>2</sub>(aca

40

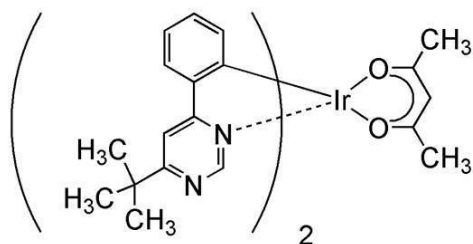
50



c) ] ) の合成例を示す。なお、 $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$  の構造を以下に示す。

【 0 2 3 6 】

【 化 7 】



$\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})$

10

【 0 2 3 7 】

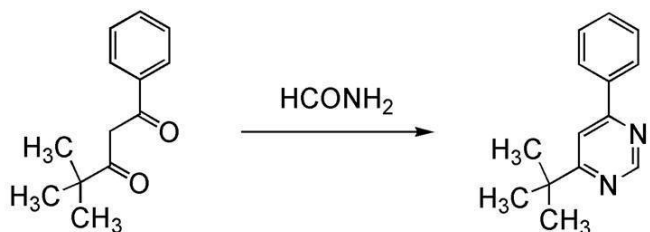
<ステップ 1 ; 4 - tert - ブチル - 6 - フェニルピリミジン ( 略称 : H t B u p p m ) の合成 >

まず、4, 4 - ジメチル - 1 - フェニルペンタン - 1, 3 - ジオン 22.5 g とホルムアミド 50 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、飽和食塩水で洗淨し、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 H t B u p p m 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。

20

【 0 2 3 8 】

【 化 8 】



HtBuppm

30

【 0 2 3 9 】

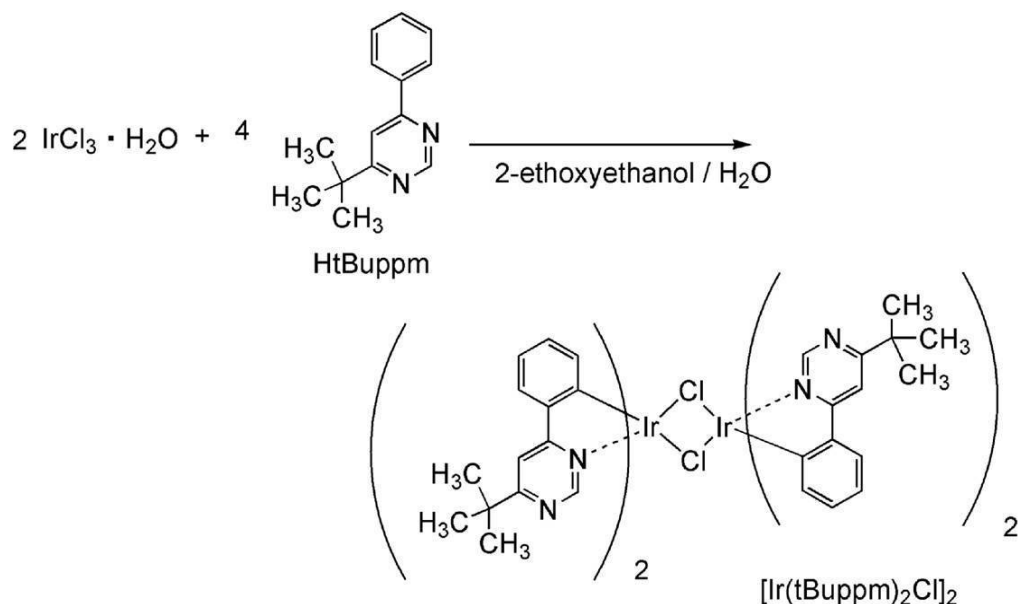
<ステップ 2 ; ジ - μ - クロロ - ビス [ ビス ( 6 - tert - ブチル - 4 - フェニルピリミジナト ) イリジウム ( III ) ] ( 略称 :  $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2\text{Cl}]_2$  ) の合成 >

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 H t B u p p m 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、洗淨し、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。

40

【 0 2 4 0 】

## 【化 9】



10

## 【 0 2 4 1】

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

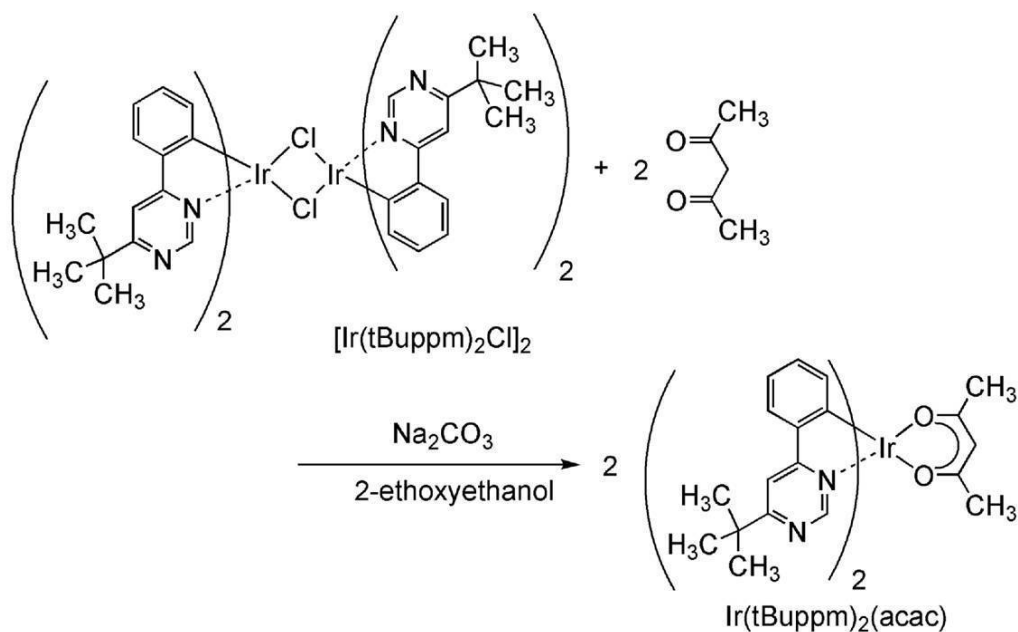
20

さらに、2-エトキシエタノール 40 mL、上記ステップ 2 で得た複核錯体 [Ir(tBuppm)<sub>2</sub>Cl]<sub>2</sub> 1.61 g、アセチルアセトン 0.36 g、炭酸ナトリウム 1.27 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 120 W) 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と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。

30

## 【 0 2 4 2】

## 【化 10】



40

## 【 0 2 4 3】

50

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

【0244】

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

【符号の説明】

【0245】

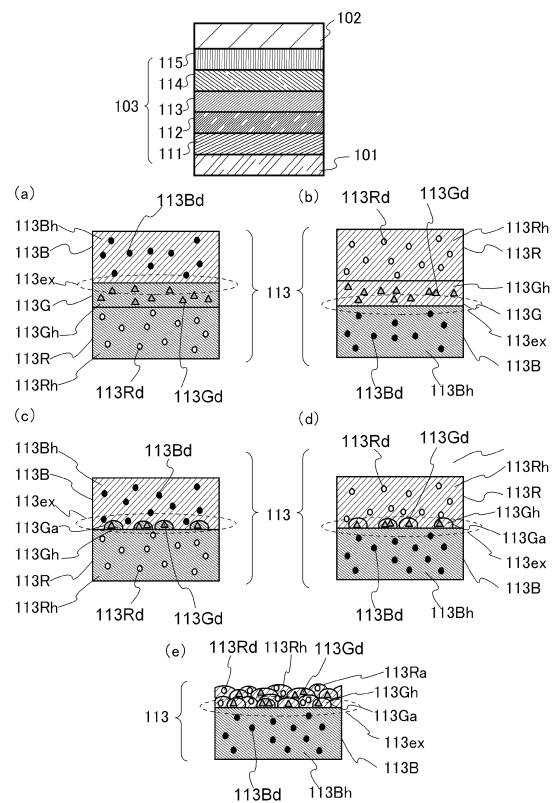
10	電極	10
11	電極	
101	第1の電極	
102	第2の電極	
103	EL層	
111	正孔注入層	
112	正孔輸送層	
113	発光層	
113B	第1の発光層	
113Bd	第1のりん光性化合物	
113Bh	第1のホスト材料	20
113G	第2の発光層	
113Ga	第2の島状発光領域	
113Gd	第2のりん光性化合物	
113Gh	第2のホスト材料	
113R	第3の発光層	
113Ra	第3の島状発光領域	
113Rd	第3のりん光性化合物	
113Rh	第3のホスト材料	
113ex	再結合領域	
114	電子輸送層	30
115	電子注入層	
400	基板	
401	第1の電極	
402	補助電極	
403	EL層	
404	第2の電極	
405	シール材	
406	シール材	
407	封止基板	
412	パッド	40
420	ICチップ	
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	
609	FPC(フレキシブルプリントサーキット)	
610	素子基板	50

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	
6 2 4	p チャネル型 T F T	
6 2 5	乾燥材	10
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	
9 5 3	絶縁層	
9 5 4	隔壁層	20
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	
1 0 2 0	第 1 の層間絶縁膜	
1 0 2 1	第 2 の層間絶縁膜	30
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	有機化合物を含む層	
1 0 2 9	発光素子の第 2 の電極	
1 0 3 1	封止基板	
1 0 3 2	シール材	40
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	
1 0 4 1	駆動回路部	
1 0 4 2	周辺部	50

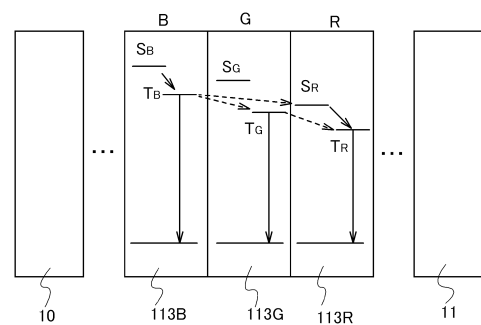
1 0 4 4 W	白色の発光領域	
1 0 4 4 R	赤色の発光領域	
1 0 4 4 B	青色の発光領域	
1 0 4 4 G	緑色の発光領域	
2 0 0 1	筐体	
2 0 0 2	光源	
3 0 0 1	照明装置	
5 0 0 0	表示領域	
5 0 0 1	表示領域	
5 0 0 2	表示領域	10
5 0 0 3	表示領域	
5 0 0 4	表示領域	
5 0 0 5	表示領域	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 3	表示部	
7 1 0 5	スタンド	
7 1 0 7	表示部	
7 1 0 9	操作キー	
7 1 1 0	リモコン操作機	
7 2 0 1	本体	20
7 2 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	
7 3 0 3	連結部	
7 3 0 4	表示部	30
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	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 4 0 1	筐体	
7 4 0 2	表示部	
7 4 0 3	操作ボタン	40
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 4 0 0	携帯電話機	
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 7	操作キー	
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 8	コンバータ
9 6 3 9	ボタン

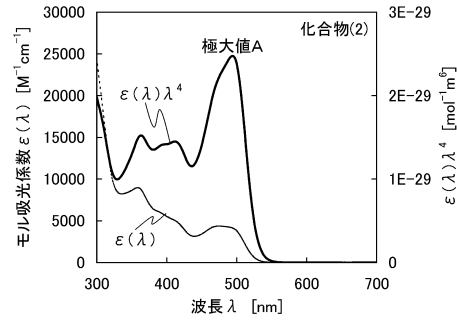
【図 1】



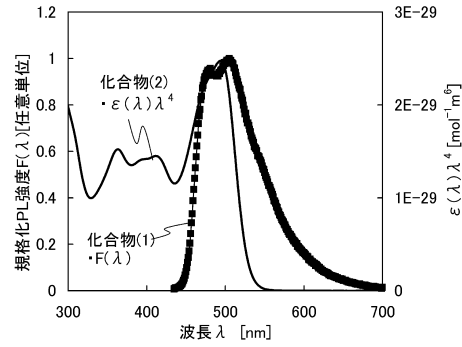
【図 2】



【図 3】

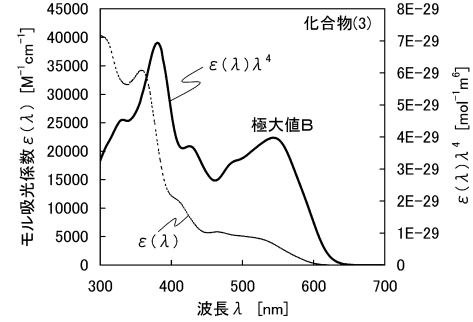


(a)

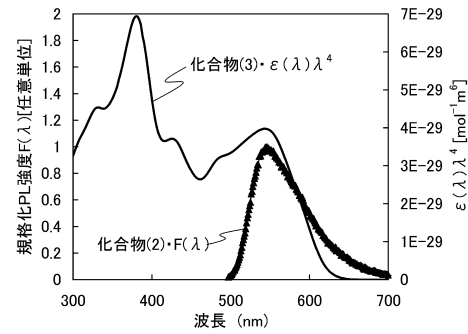


(b)

【図 4】

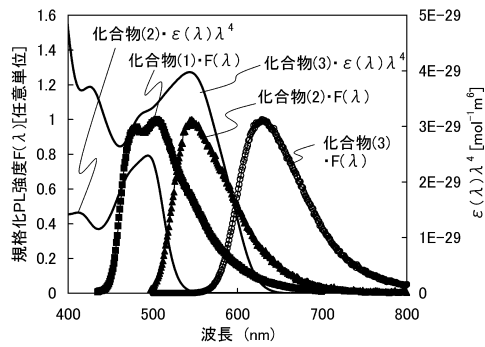


(a)

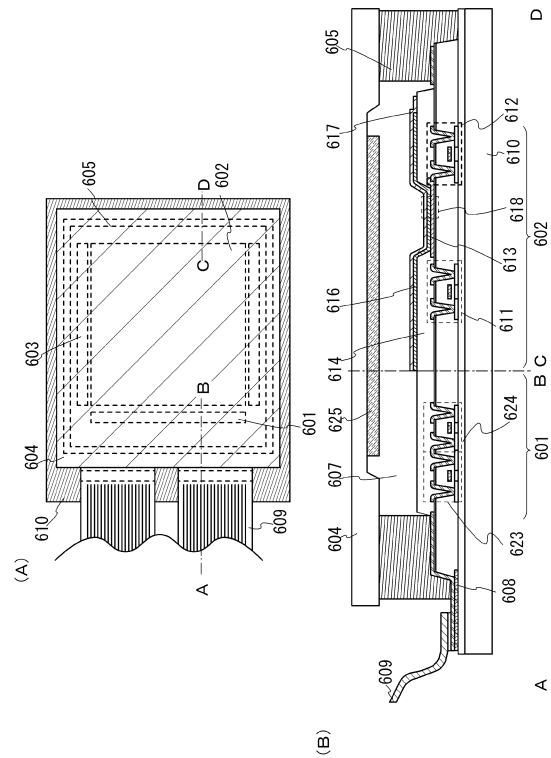


(b)

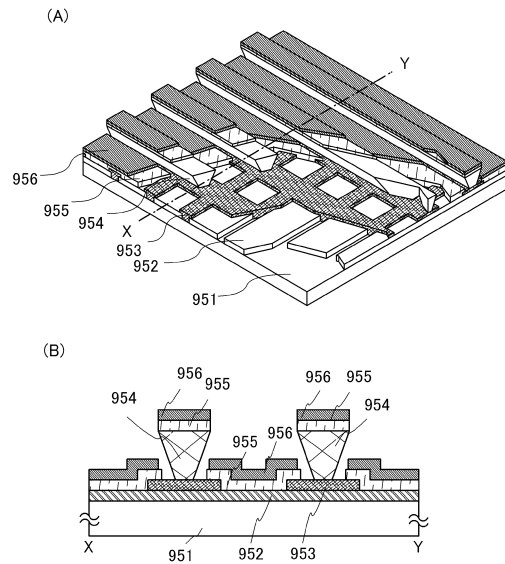
【図 5】



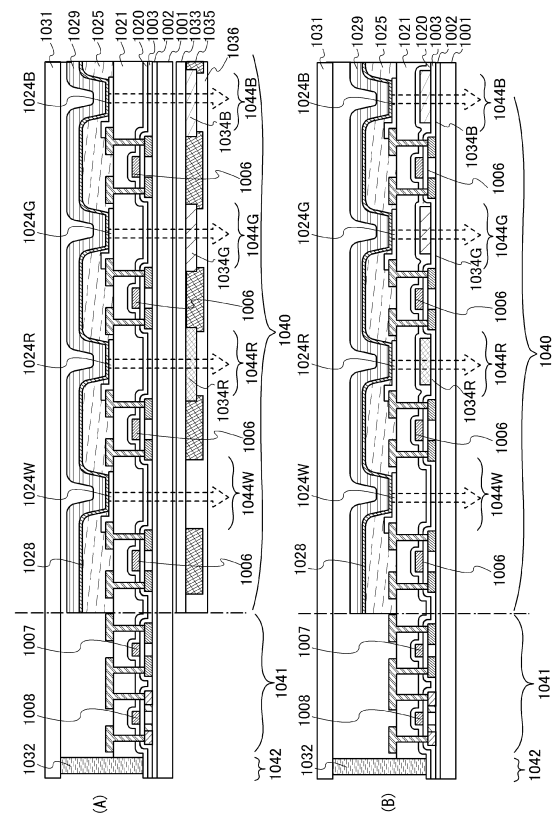
【図 6】



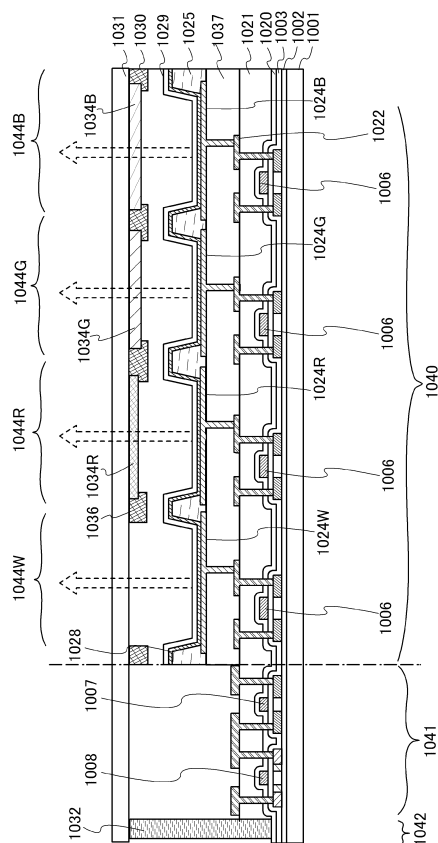
【図 7】



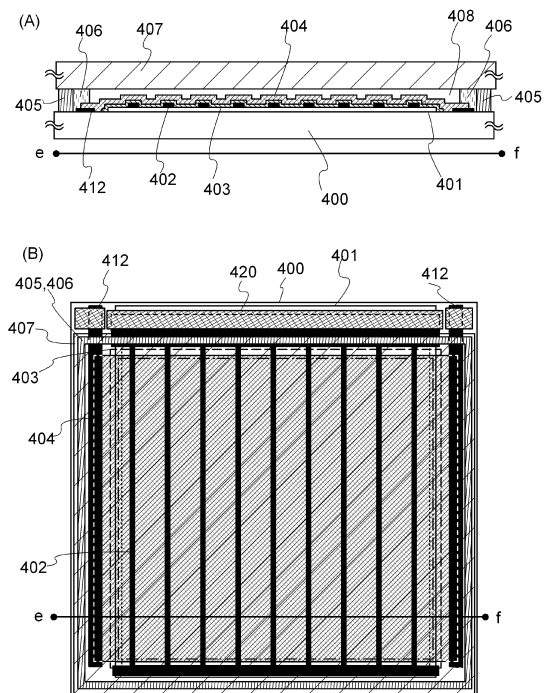
【図 8】



【図 9】

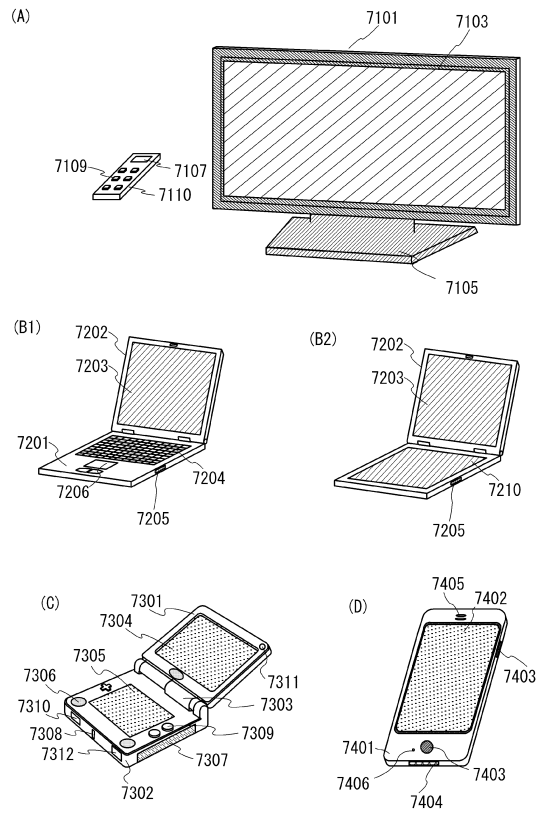


【図 10】

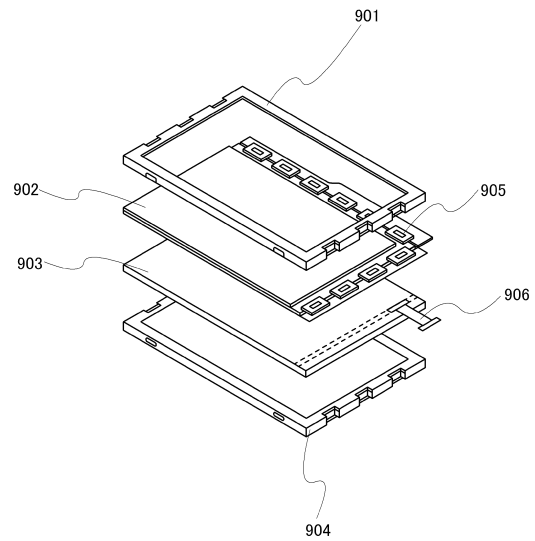




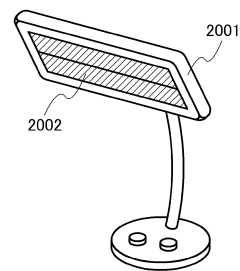
【図 1 1】



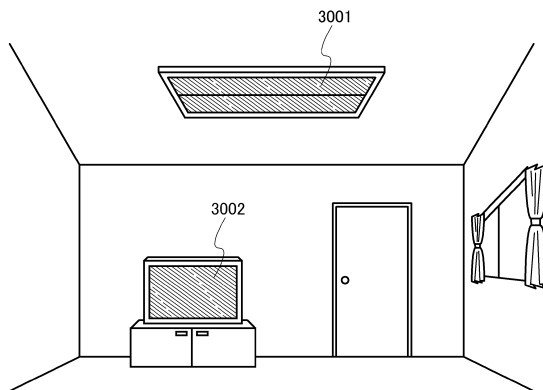
【図 1 2】



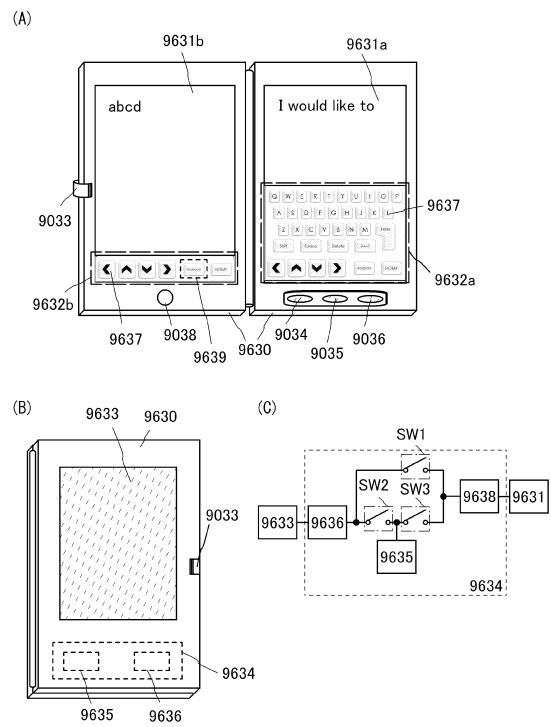
【図 1 3】



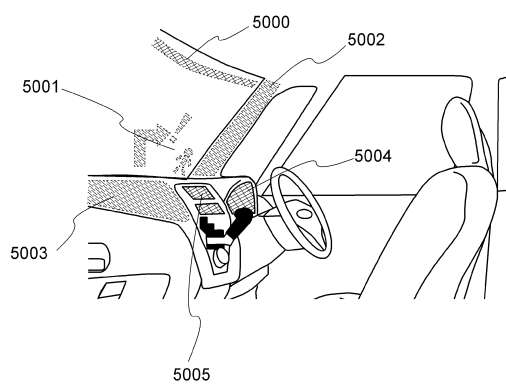
【図 1 4】



【図 1 6】



【図 1 5】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
F 2 1 Y 105/00 (2016.01) F 2 1 Y 105:00

(56)参考文献 国際公開第 2 0 0 6 / 0 0 8 9 7 7 ( W O , A 1 )

特開 2 0 0 8 - 2 7 0 1 9 0 ( J P , A )

特開 2 0 0 7 - 0 7 3 5 0 0 ( J P , A )

特開 2 0 0 6 - 2 8 7 1 5 4 ( J P , A )

特表 2 0 0 3 - 5 1 5 8 9 7 ( J P , A )

特開 2 0 0 7 - 0 1 9 0 7 0 ( J P , A )

特開 2 0 0 6 - 2 6 9 2 3 2 ( J P , A )

A.Tsuboyama et al. , Homoleptic Cyclometalated Iridium Complexes with Highly Efficient Red Phosphorescence and Application to Organic Light-Emitting Diode , J.Am.Chem.Soc. , 2 0 0 3 年 , Vol.125/No.42 , pages12971-12979

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0

G 0 9 F 9 / 3 0

H 0 1 L 2 7 / 3 2

H 0 5 B 3 3 / 1 2

F 2 1 Y 1 0 5 / 0 0

F 2 1 Y 1 1 5 / 1 5