

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4999308号
(P4999308)

(45) 発行日 平成24年8月15日(2012.8.15)

(24) 登録日 平成24年5月25日(2012.5.25)

(51) Int.Cl.
H01L 51/50 (2006.01)F 1
H05B 33/14 B
H05B 33/22 A
H05B 33/22 B
H05B 33/22 C
H05B 33/22 D

請求項の数 20 (全 24 頁)

(21) 出願番号 特願2005-286201 (P2005-286201)
 (22) 出願日 平成17年9月30日 (2005.9.30)
 (65) 公開番号 特開2006-128097 (P2006-128097A)
 (43) 公開日 平成18年5月18日 (2006.5.18)
 審査請求日 平成20年9月12日 (2008.9.12)
 (31) 優先権主張番号 特願2004-290678 (P2004-290678)
 (32) 優先日 平成16年10月1日 (2004.10.1)
 (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 池田 寿雄
 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 坂田 淳一郎
 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 熊木 大介
 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社
 半導体エネルギー研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】発光素子および発光装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一対の電極間に、有機化合物と無機化合物とを含む複合層を挟持してなる発光素子であつて、

前記複合層は、順次積層された第1の層、第2の層、第3の層、および第4の層で構成され、

前記第1の層は、第1の有機化合物と前記第1の有機化合物に対して電子受容性を示す第1の無機化合物とを含み、

前記第2の層は、発光を示す第2の有機化合物と第2の無機化合物とを含み、

前記第3の層は、第3の有機化合物と前記第3の有機化合物に対して電子供与性を示す第3の無機化合物とを含み、

前記第4の層は、第4の有機化合物と前記第4の有機化合物に対して電子受容性を示す第4の無機化合物とを含むことを特徴とする発光素子。

【請求項2】

請求項1において、

前記第4の有機化合物はホール輸送性の有機化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項3】

請求項1又は2において、

前記第4の有機化合物は芳香族アミン骨格を有する有機化合物であることを特徴とする発光素子。

10

20

【請求項 4】

請求項 1 乃至 3 のいずれか一において、

前記第 4 の無機化合物は金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 5】

請求項 4 において、

前記金属酸化物は周期表第 4 族乃至第 1 2 族のいずれかの遷移金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 6】

請求項 4 または 5 において、

前記金属酸化物は酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、および酸化レニウムからなる群より選ばれるいずれかの金属酸化物であることを特徴とする発光素子。 10

【請求項 7】

請求項 1 乃至 6 のいずれか一において、

前記第 1 の有機化合物はホール輸送性の有機化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 7 のいずれか一において、

前記第 1 の有機化合物は芳香族アミン骨格を有する有機化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 のいずれか一において、

20

前記第 3 の有機化合物は電子輸送性の有機化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 10】

請求項 1 乃至 9 のいずれか一において、

前記第 3 の有機化合物は芳香環を含むキレート配位子を有するキレート金属錯体、フェナントロリン骨格を有する有機化合物、またはオキサジアゾール骨格を有する有機化合物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 10 のいずれか一において、

前記第 1 の無機化合物は金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 12】

30

請求項 11 において、

前記金属酸化物は周期表第 4 族乃至第 1 2 族のいずれかの遷移金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 13】

請求項 11 または 12 において、

前記金属酸化物は酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、および酸化レニウムからなる群より選ばれるいずれか金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 14】

請求項 1 乃至 13 のいずれか一において、

前記第 2 の無機化合物は金属酸化物であることを特徴とする発光素子。 40

【請求項 15】

請求項 14 において、

前記金属酸化物は周期表第 1 3 族または第 1 4 族のいずれかの金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 16】

請求項 14 または 15 において、

前記金属酸化物は酸化アルミニウム、酸化ガリウム、酸化ケイ素、および酸化ゲルマニウムからなる群より選ばれるいずれかの金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項 17】

請求項 1 乃至 16 のいずれか一において、

50

前記第3の無機化合物は金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項18】

請求項17において、

前記金属酸化物はアルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、または希土類金属酸化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項19】

請求項17または18において、

前記金属酸化物は酸化リチウムまたは酸化バリウムであることを特徴とする発光素子。

【請求項20】

請求項1乃至19のいずれか一に記載の発光素子を有することを特徴とする発光装置。 10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は発光素子に関する。特に、有機化合物と無機化合物とを混合した複合層からなる発光素子に関する。また、発光素子を有する発光装置の関する。

【背景技術】

【0002】

近年、発光性の有機化合物を用いた発光素子（有機発光ダイオード[OLED]、あるいは有機EL素子と呼ばれているが、以下では有機EL素子と称する）のように、有機化合物に電流を流すことにより高輝度が得られる発光素子が注目を浴びている。 20

【0003】

有機EL素子の基本的な構成は、一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層（発光層）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、一対の電極から電子およびホールがそれぞれ発光層に輸送され、電流が流れる。そして、それらキャリア（電子およびホール）が再結合することにより、発光性の有機化合物が励起状態を形成し、その励起状態が基底状態に戻る際に発光する。

【0004】

なお、有機化合物が形成する励起状態の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であり、一重項励起状態からの発光が蛍光、三重項励起状態からの発光が燐光と呼ばれている。 30

【0005】

このような有機EL素子は通常、サブミクロン程度の薄膜で形成されるため、薄型軽量に作製できることが大きな利点である。また、キャリアが注入されてから発光に至るまでの時間はマイクロ秒程度あるいはそれ以下であるため、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。また、数ボルト～数十ボルト程度の直流電圧で十分な発光が得られるため、消費電力も比較的少ない。これらの利点から、有機EL素子は次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。

【0006】

また、有機EL素子は膜状に形成されるため、大面積の素子を形成することにより、面状の発光を容易に得ることができる。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

【0007】

しかしながら、これら有機EL素子は耐久性や耐熱性に問題があり、有機EL素子の発展の大きな妨げとなっている。有機EL素子は通常、下記非特許文献1に代表されるように、有機化合物を用いた有機薄膜を積層して形成されているため、有機化合物の低い耐久性や有機薄膜の脆弱さが上述の問題の要因であると考えられる。

【0008】

一方では、有機薄膜ではなく、有機化合物と無機化合物を混合した層を用い、発光素子を形成するという試みもなされている。例えば、下記特許文献1では、金属酸化物中に蛍

光性有機分子を分散させた発光層を用いた発光素子が開示されている。また、下記特許文献2では、シリカマトリックス中に有機化合物（ホール輸送性化合物、電子輸送性化合物、発光性化合物）を共有結合を介して分散した層を積層して形成した発光素子も開示されている。これらの文献においては、素子の耐久性や耐熱性が向上すると報告されている。

【非特許文献1】C.W.タン（C.W.Tang）、外1名、アプライド フィジクス レターズ、Vol.51, No.12, 913-915 (1987)

【特許文献1】特開平2-288092号公報

【特許文献2】特開2000-306669号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0009】

上記特許文献1や特許文献2で開示されているような発光素子は、絶縁性である金属酸化物中に有機化合物が単に分散されているだけであるため、従来の有機EL素子に比べて電流が流れにくくなってしまう（すなわち、ある電流を流すのに必要な電圧が高くなってしまう）という問題がある。

【0010】

これらの発光素子は、流す電流密度に比例して発光輝度が高くなるため、電流が流れにくいということはすなわち、ある輝度を得るための電圧（すなわち駆動電圧）も高くなってしまうという問題に繋がる。したがって、金属酸化物中に有機化合物が単に分散されているだけでは、耐久性や耐熱性が得られたとしても、駆動電圧の上昇や、それに伴う消費電力の上昇を招いてしまう。

20

【0011】

また、ゴミ等に起因する発光素子の短絡を抑制するためには、発光素子の膜厚を厚くすることが効果的であるが、特許文献1や特許文献2で示されているような構成で膜厚を厚くすると、駆動電圧の上昇はさらに顕在化してしまう。つまり、従来の構成では、膜厚を厚くすることは実用的には困難である。

【0012】

図2は上記特許文献2で開示されている従来の発光素子であり、第1の電極（陽極）201と第2の電極（陰極）202との間に、シリカマトリックスに有機化合物を分散してなる複合層203が狭持されている。すなわち、複合層203は全てシリカマトリックスで構成されているが、211はシリカマトリックスにホール輸送性化合物を分散したホール輸送層であり、213はシリカマトリックスに電子輸送性化合物を分散した電子輸送層であり、212はシリカマトリックスに発光性化合物を分散した発光層である。この素子に電圧を印加すると、第1の電極（陽極）201からホールが、第2の電極（陰極）202から電子がそれぞれ注入され、発光層212で再結合し、発光性化合物が発光に至ると考えられる。

30

【0013】

この素子におけるキャリア輸送はホール輸送層211や電子輸送層213が担っているが、絶縁性のシリカマトリックスに有機化合物が分散されているため、電流が流れにくいという問題がある。例えばホール輸送層211においては、ホールはホール輸送層211中に存在するホール輸送性化合物間をホッピングして移動するのであり、絶縁性であるシリカマトリックスはホールの輸送に関与することはない。むしろ逆に、ホールのホッピングの妨げになってしまう。電子輸送層213についても同様のことが言える。したがって当然、従来の有機EL素子と比較しても駆動電圧は上昇してしまう。

40

【0014】

また、素子の短絡を防ぐ、あるいは光学設計を行う目的で複合層203の膜厚を厚くしようとしても、上述した駆動電圧の上昇がさらに顕著になってしまうため、複合層203の厚膜化も現実的には困難である。

【0015】

そこで本発明では、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ従来とは異

50

なる新規な構成の発光素子を提供することを課題とする。また、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ駆動電圧の低い発光素子を提供することを課題とする。また、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ短絡を防止しやすい発光素子を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0016】

本発明者は、鋭意検討を重ねた結果、有機化合物と、その有機化合物に対して電子を授受できる無機化合物とを含む層を適用することにより、課題を解決できることを見出した。

【0017】

すなわち本発明の構成は、一対の電極間に、有機化合物と無機化合物とを含む複合層を狭持してなる発光素子であって、前記複合層は、順次積層された第1の層、第2の層、および第3の層で構成され、前記第1の層は、第1の有機化合物と前記第1の有機化合物に対して電子受容性を示す第1の無機化合物とを含み、前記第2の層は、発光を示す第2の有機化合物と第2の無機化合物とを含み、前記第3の層は、第3の有機化合物と前記第3の有機化合物に対して電子供与性を示す第3の無機化合物とを含む発光素子である。

【0018】

この時、前記第1の有機化合物としては、ホール輸送性の有機化合物であることが好ましく、さらに好ましくは芳香族アミン骨格を有する有機化合物である。また、前記第3の有機化合物としては、電子輸送性の有機化合物であることが好ましく、さらに好ましくは芳香環を含むキレート配位子を有するキレート金属錯体、またはフェナントロリン骨格を有する有機化合物、またはオキサジアゾール骨格を有する有機化合物である。

【0019】

前記第1の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくは周期表第4族乃至第12族のいずれかの遷移金属酸化物である。中でも、周期表第4族乃至第8族のいずれかの遷移金属酸化物は電子受容性の高いものが多く、特に酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化レニウム、酸化タンゲステンが好適である。

【0020】

前記第2の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくは周期表第13族または第14族の金属酸化物である。これらの金属酸化物は、前記第2の層中に共存する前記第2の有機化合物の発光を消光しにくいためである。中でも特に、酸化アルミニウム、酸化ガリウム、酸化ケイ素、酸化ゲルマニウムが好適である。

【0021】

前記第3の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくはアルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、希土類金属酸化物、アルカリ金属窒化物、アルカリ土類金属窒化物、希土類金属窒化物である。これらの金属酸化物、金属窒化物は電子供与性の高いものが多く、特に酸化リチウム、酸化バリウム、窒化リチウム、窒化マグネシウム、窒化カルシウムが好適である。

【0022】

また、本発明の他の構成は、一対の電極間に、有機化合物と無機化合物とを含む複合層を狭持してなる発光素子であって、前記複合層は、順次積層された第1の層、第2の層、第3の層、および第4の層で構成され、前記第1の層は、第1の有機化合物と前記第1の有機化合物に対して電子受容性を示す第1の無機化合物とを含み、前記第2の層は、発光を示す第2の有機化合物と第2の無機化合物とを含み、前記第3の層は、第3の有機化合物と前記第3の有機化合物に対して電子供与性を示す第3の無機化合物とを含み、前記第4の層は、第4の有機化合物と前記第4の有機化合物に対して電子受容性を示す第4の無機化合物とを含む発光素子である。

【0023】

この時、前記第1の有機化合物および/または前記第4の有機化合物としては、ホール輸送性の有機化合物であることが好ましく、さらに好ましくは芳香族アミン骨格を有する

10

20

30

40

50

有機化合物である。また、前記第3の有機化合物としては、電子輸送性の有機化合物であることが好ましく、さらに好ましくは芳香環を含むキレート配位子を有するキレート金属錯体、またはフェナントロリン骨格を有する有機化合物、またはオキサジアゾール骨格を有する有機化合物である。

【0024】

前記第1の無機化合物および/または前記第4の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくは周期表第4族乃至第12族のいずれかの遷移金属酸化物である。中でも、周期表第4族乃至第8族のいずれかの遷移金属酸化物は電子受容性の高いものが多く、特に酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、酸化レニウムが好適である。

10

【0025】

前記第2の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくは周期表第13族または第14族の金属酸化物である。これらの金属酸化物は、前記第2の層中に共存する前記第2の有機化合物の発光を消光しにくいためである。中でも特に、酸化アルミニウム、酸化ガリウム、酸化ケイ素、酸化ゲルマニウムが好適である。

【0026】

前記第3の無機化合物としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくはアルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、希土類金属酸化物、アルカリ金属窒化物、アルカリ土類金属窒化物、希土類金属窒化物である。これらの金属酸化物、金属窒化物は電子供与性の高いものが多く、特に酸化リチウム、酸化バリウム、窒化リチウム、窒化マグネシウム、窒化カルシウムが好適である。

20

【0027】

上述した本発明の発光素子は、単に有機化合物と無機化合物とを混合した層を有する従来の発光素子とは異なり、電流を流しやすく、駆動電圧を低減できるという特徴があるため、本発明の発光素子を有する発光装置も消費電力を低減できる。したがって、本発明の発光素子を有する発光装置も本発明に含むものとする。

【0028】

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もしくは発光体を指す。また、発光素子にコネクター、例えば異方導電性フィルム (FPC : Flexible Printed Circuit) もしくはTAB (Tape Automated Bonding) テープもしくはTCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または発光素子に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。

30

【発明の効果】

【0029】

本発明を実施することにより、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ従来とは異なる新規な構成の発光素子を提供することができる。また、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ駆動電圧の低い発光素子を提供することができる。また、有機化合物と無機化合物を混合してなる層を用い、かつ短絡を防止しやすい発光素子を提供することができる。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0030】

以下、本発明の実施の形態を図面に基づいて説明する。但し、本発明は多くの異なる様で実施することができる、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。

【0031】

[実施形態1]

図1は本発明の発光素子の素子構造であり、第1の電極101と第2の電極102との

50

間に、有機化合物と無機化合物を混合してなる複合層103が狭持されている発光素子であるが、複合層103内の構成は、従来の発光素子(図2)の複合層203とは全く異なる。複合層103は、図示した通り、第1の層111、第2の層112、第3の層113から構成されており、特に第1の層111および第3の層113に大きな特徴を有する。

【0032】

まず、第1の層111は、第2の層112にホールを輸送する機能を担う層であり、少なくとも第1の有機化合物と、第1の有機化合物に対して電子受容性を示す第1の無機化合物とを含む構成である。重要なのは、単に第1の有機化合物と第1の無機化合物が混ざり合っているのではなく、第1の無機化合物が第1の有機化合物に対して電子受容性を示す点である。このような構成とすることで、本来内在的なキャリアをほとんど有さない第1の有機化合物に多くのホールキャリアが発生し、極めて優れたホール注入性・輸送性を示す。

【0033】

したがって第1の層111は、無機化合物を混合することによって得られると考えられている効果(耐熱性の向上など)だけでなく、優れた導電性(第1の層111においては特に、ホール注入性および輸送性)をも得ることができる。このことは、互いに電子的な相互作用を及ぼさない有機化合物と無機化合物を単に混合した従来のホール輸送層211(図2)では、得られない効果である。この効果により、従来よりも駆動電圧を低くすることができる。また、駆動電圧の上昇を招くことなく第1の層111を厚くすることができるため、ゴミ等に起因する素子の短絡も抑制することができる。

【0034】

ところで、上述したように、第1の有機化合物にはホールキャリアが発生するため、第1の有機化合物としてはホール輸送性の有機化合物が好ましい。ホール輸送性の有機化合物としては、例えば、フタロシアニン(略称:H₂PC)、銅フタロシアニン(略称:CuPC)、バナジルフタロシアニン(略称:VOPC)、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)、1,3,5-トリス[N,N-ジ(m-トリル)アミノ]ベンゼン(略称:m-MTDA B)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(略称:TPD)、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)、4,4'-ビス{N-[4-ジ(m-トリル)アミノ]フェニル-N-フェニルアミノ}ビフェニル(略称:DNTPD)、4,4',4'''-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(略称:TCTA)などが挙げられるが、これらに限定されることはない。また、上述した化合物の中でも、TDATA、MTDATA、m-MTDA B、TPD、NPB、DNTPD、TCTAなどに代表される芳香族アミン化合物は、ホールキャリアを発生しやすく、第1の有機化合物として好適な化合物群である。

【0035】

一方、第1の無機化合物は、第1の有機化合物から電子を受け取りやすいものであれば何であってもよく、種々の金属酸化物または金属窒化物が可能であるが、周期表第4族乃至第12族のいずれかの遷移金属酸化物が電子受容性を示しやすく好適である。具体的には、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、酸化レニウム、酸化ルテニウム、酸化亜鉛などが挙げられる。また、上述した金属酸化物の中でも、周期表第4族乃至第8族のいずれかの遷移金属酸化物は電子受容性の高いものが多く、好ましい一群である。特に酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化タンゲステン、酸化レニウムは真空蒸着が可能で扱いやすいため、好適である。

【0036】

なお、第1の層111は、上述した有機化合物と無機化合物の組み合わせを適用した層を、複数積層して形成していくてもよい。また、他の有機化合物あるいは他の無機化合物をさらに含んでいてもよい。

10

20

30

40

50

【0037】

次に、第3の層113について説明する。第3の層113は、第2の層112に電子を輸送する機能を担う層であり、少なくとも第3の有機化合物と、第3の有機化合物に対して電子供与性を示す第3の無機化合物とを含む構成である。重要なのは、単に第3の有機化合物と第3の無機化合物が混ざり合っているのではなく、第3の無機化合物が第3の有機化合物に対して電子供与性を示す点である。このような構成とすることで、本来内在的なキャリアをほとんど有さない第3の有機化合物に多くの電子キャリアが発生し、極めて優れた電子注入性・輸送性を示す。

【0038】

したがって第3の層113は、無機化合物を混合することによって得られると考えられている効果（耐熱性の向上など）だけでなく、優れた導電性（第3の層113においては特に、電子注入性および輸送性）をも得ることができる。このことは、互いに電子的な相互作用を及ぼさない有機化合物と無機化合物を単に混合した従来の電子輸送層213（図2）では、得られない効果である。この効果により、従来よりも駆動電圧を低くすることができます。また、駆動電圧の上昇を招くことなく第3の層113を厚くするため、ゴミ等に起因する素子の短絡も抑制することができる。

【0039】

ところで、上述したように、第3の有機化合物には電子キャリアが発生するため、第3の有機化合物としては電子輸送性の有機化合物が好ましい。電子輸送性の有機化合物としては、例えば、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Alq₃)、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)、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)、バソフェナントロリン(略称: BPhen)、バソキュプロイン(略称: BCp)、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称: PBD)、1,3-ビス[5-(4-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)、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)-トリス(1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール)(略称: TPBI)、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)、3-(4-ビフェニリル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称: p-EtTAZ)などが挙げられるが、これらに限定されることはない。また、上述した化合物の中でも、Alq₃、Alm_q₃、BeBq₂、BALq、Zn(BOX)₂、Zn(BTZ)₂などに代表される芳香環を含むキレート配位子を有するキレート金属錯体や、BPhen、BCpなどに代表されるフェナントロリン骨格を有する有機化合物や、PBD、OXD-7などに代表されるオキサジアゾール骨格を有する有機化合物は、電子キャリアを発生しやすく、第3の有機化合物として好適な化合物群である。

【0040】

一方、第3の無機化合物は、第3の有機化合物に電子を与えやすいものであれば何であってもよく、種々の金属酸化物または金属窒化物が可能であるが、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、希土類金属酸化物、アルカリ金属窒化物、アルカリ土類金属窒化物、希土類金属窒化物が電子供与性を示しやすく好適である。具体的には、酸化リチウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム、酸化エルビウム、窒化リチウム、窒化マグネシウム、窒化カルシウム、窒化イットリウム、窒化ランタンなどが挙げられる。特に酸化リチウム、酸化バリウム、窒化リチウム、窒化マグネシウム、窒化カルシウムは真空蒸着が可能で扱いやすいため、好適である。

【0041】

10

20

30

40

50

なお、第3の層113は、上述した有機化合物と無機化合物の組み合わせを適用した層を、複数積層して形成してもよい。また、他の有機化合物あるいは他の無機化合物をさらに含んでいてもよい。

【0042】

次に、第2の層112について説明する。第2の層112は発光機能を担う層であり、少なくとも発光性の第2の有機化合物と、第2の無機化合物とを含む構成である。第2の層112は、図2における発光層212と同様の構成でよく、種々の発光性の有機化合物と無機化合物を混合して形成することができる。ただし、第2の層112は、第1の層111や第3の層113に比べて電流が流れにくいと考えられるため、その膜厚は10nm～100nm程度が好ましい。

10

【0043】

第2の有機化合物としては、発光性の有機化合物であれば特に限定されることはなく、例えば、9,10-ジ(2-ナフチル)アントラセン(略称:DNA)、9,10-ジ(2-ナフチル)-2-tert-ブチルアントラセン(略称:t-BuDNA)、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(略称:DPVBi)、クマリン30、クマリン6、クマリン545、クマリン545T、ペリレン、ルブレン、ペリフランテン、2,5,8,11-テトラ(tert-ブチル)ペリレン(略称:TBP)、9,10-ジフェニルアントラセン(略称:DPA)、5,12-ジフェニルテトラセン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-[p-(ジメチルアミノ)スチリル]-4H-ピラノン(略称:DCM1)、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-[2-(ジュロリジン-9-イル)エテニル]-4H-ピラン(略称:DCM2)、4-(ジシアノメチレン)-2,6-ビス[p-(ジメチルアミノ)スチリル]-4H-ピラン(略称:BioDCM)等が挙げられる。また、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(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(ピコリナート)(略称:Ir(CF₃ppy)₂(pic))、トリス(2-フェニルピリジナト-N,C^{2'})イリジウム(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(アセチルアセトナート)(略称:Ir(ppc)₂(acc))、ビス[2-(2'-チエニル)ピリジナト-N,C^{3'}]イリジウム(アセチルアセトナート)(略称:Ir(thp)₂(acc))、ビス(2-フェニルキノリナト-N,C^{2'})イリジウム(アセチルアセトナート)(略称:Ir(pq)₂(acc))、ビス[2-(2'-ベンゾチエニル)ピリジナト-N,C^{3'}]イリジウム(アセチルアセトナート)(略称:Ir(btp)₂(acc))などの熒光を放出できる化合物用いることもできる。

20

【0044】

また、第2の層112においては、上述した発光を示す第2の有機化合物だけでなく、さらに他の有機化合物が添加されていてもよい。添加できる有機化合物としては、例えば、先に述べたT DATA、MT DATA、m-MT DAB、TPD、N P B、DNTPD、T C T A、A l q₃、A l m q₃、B e B q₂、B A l q、Z n (B O X)₂、Z n (B T Z)₂、B P h e n、B C P、P B D、O X D-7、T P B I、T A Z、p-E t T A Z、D N A、t-B u D N A、D P V B iなどの他、4,4'-ビス(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)などを用いることができるが、これらに限定されることはない。なお、このように第2の有機化合物以外に添加する有機化合物は、第2の有機化合物を効率良く発光させるため、第2の有機化合物の励起エネルギーよりも大きい励起エネルギーを有し、かつ第2の有機化合物よりも多く添加されていることが好ましい(それにより、第2の有機化合物の濃度消光を防ぐことができる)。あるいはまた、他の機能として、第2の有機化合物と共に発光を示してもよい(それにより、白色発光なども可能となる)。

30

【0045】

40

50

前記第2の無機化合物としては、第2の有機化合物の発光を消光しにくい無機化合物であれば何であってもよく、種々の金属ハロゲン化物や金属酸化物や金属窒化物を用いることができる。特に、周期表第13族または第14族の金属酸化物は、第2の有機化合物の発光を消光しにくいため好ましく、具体的には酸化アルミニウム、酸化ガリウム、酸化ケイ素、酸化ゲルマニウムが好適である。ただし、これらに限定されることはなく、フッ化リチウム、フッ化カルシウム、フッ化マグネシウムを用いることもできる。

【0046】

なお、第2の層112は、上述した有機化合物と無機化合物の組み合わせを適用した層を、複数積層して形成していてもよい。また、他の有機化合物あるいは他の無機化合物をさらに含んでいてもよい。

10

【0047】

次に、第1の電極101および第2の電極102に用いることのできる材料について述べる。第1の電極101は仕事関数の大きい材料（具体的には4.5eV以上の材料）が好ましく、第2の電極102は仕事関数の小さい材料（具体的には3.5eV以下の材料）が好ましい。しかしながら、第1の層111のホール注入・輸送特性や、第3の層113の電子注入・輸送特性が優れているため、第1の電極101、第2の電極102共に、ほとんど仕事関数の制限を受けることなく、種々の材料を用いることができる。

【0048】

第1の電極101および第2の電極102は、少なくとも一方または両方が光透過性であればよい。その場合、具体的には透明導電膜を用いればよく、インジウム錫酸化物(ITO)、インジウム亜鉛酸化物(IZO)、酸化ケイ素を添加したインジウム錫酸化物(ITSO)などを用いることができる。また、第1の電極101および第2の電極102のいずれか一方は遮光性（特に反射性）であってもよく、チタン、タンゲステン、ニッケル、金、白金、銀、アルミニウム、マグネシウム、カルシウム、リチウム、およびそれらの合金からなる導電膜などを用いることができる。さらに、第1の電極101および第2の電極102は、アルミニウム、銀、金などの金属薄膜と上述した透明導電膜とを積層し、ハーフミラーとして作用する電極としてもよい。

20

【0049】

なお、第1の電極101や第2の電極102の種類を変えることで、本発明の発光素子は様々なバリエーションを有する。その模式図を図3および図4に示す。なお、図3および図4では、図1の符号を引用する。また、100は、本発明の発光素子を担持する基板である。

30

【0050】

図3は、複合層103が、基板100側から第1の層111、第2の層112、第3の層113の順で構成されているケースである。この時、第1の電極101を光透過性とし、第2の電極102を遮光性（特に反射性）とすることで、図3(a)のように基板100側から光を射出する構成となる。また、第1の電極101を遮光性（特に反射性）とし、第2の電極102を光透過性とすることで、図3(b)のように基板100の逆側から光を射出する構成となる。さらに、第1の電極101、第2の電極102の両方を光透過性とすることで、図3(c)に示すように、基板100側と基板100の逆側の両方に光を射出する構成も可能となる。

40

【0051】

図4は、複合層103が、基板100側から第3の層113、第2の層112、第1の層111の順で構成されているケースである。この時、第1の電極101を遮光性（特に反射性）とし、第2の電極102を光透過性とすることで、図4(a)のように基板100側から光を取り出す構成となる。また、第1の電極101を光透過性とし、第2の電極102を遮光性（特に反射性）とすることで、図4(b)のように基板100と逆側から光を取り出す構成となる。さらに、第1の電極101、第2の電極102の両方を光透過性とすることで、図4(c)に示すように、基板100側と基板100の逆側の両方に光を射出する構成も可能となる。

50

【0052】

以上で述べたように、本発明の発光素子は、第1の電極101と第2の電極102との間に狭持された層が、全て有機化合物と無機化合物が複合された複合層103から成っている。そして、それだけではなく、有機化合物と無機化合物を混合することにより、それぞれ単独では得られない高いキャリア注入・輸送性という機能が得られる層（すなわち、第1の層111および第3の層113）が設けられている新規な有機・無機複合型の発光素子である。このような構成は、図2で示した発光素子はもちろんのこと、従来の有機EL素子や無機EL素子とも異なる発光素子であるので、以下では本発明の発光素子のことをコンポジット・エレクトロルミネッセント素子（CEL素子）と呼ぶ。

【0053】

10

なお、複合層103は有機化合物と無機化合物が混合された層であるが、その形成方法としては公知の種々の手法を用いることができる。例えば、有機化合物と無機化合物の両方を抵抗加熱により蒸発させ、共蒸着する手法が挙げられる。その他、有機化合物を抵抗加熱により蒸発させる一方で、無機化合物をエレクトロンビーム（EB）により蒸発させ、共蒸着してもよい。また、有機化合物を抵抗加熱により蒸発させると同時に、無機化合物をスパッタリングし、両方を同時に堆積する手法も挙げられる。その他、湿式法により成膜してもよい。

【0054】

また、第1の電極101および第2の電極102に関しても同様に、抵抗加熱による蒸着法、EB蒸着法、スパッタリング、湿式法などを用いることができる。

20

【0055】

[実施形態2]

本実施形態2においては、実施形態1とは異なる本発明のCEL素子の一態様について説明する。素子構造を図5に示す。なお、図5では図1の符号を引用する。

【0056】

図5は、第1の電極101と第2の電極102との間に、有機化合物と無機化合物を混合してなる複合層103が狭持されている発光素子であり、複合層103は、図示した通り、第1の層111、第2の層112、第3の層113、第4の層114から構成されている。

【0057】

30

第1の電極101、第2の電極102、第1の層111、第2の層112、第3の層113は、実施形態1（すなわち図1）における各層と同じ構成を適用することができるため、説明を省略する。実施形態1と異なる点は、第3の層113と第2の電極102との間に、第4の層114を設けている点である。

【0058】

第4の層114は、少なくとも第4の有機化合物と、第4の有機化合物に対して電子受容性を示す第4の無機化合物とを含む構成である。したがって、第4の有機化合物としては実施形態1にて列挙した第1の有機化合物と同様のものを、第4の無機化合物としては実施形態1にて列挙した第1の無機化合物と同様のものを用いることができる。ただし、第4の有機化合物は第1の有機化合物と同じものを用いてもよいし、異なるものを用いてもよい。また、第4の無機化合物は、第1の無機化合物と同じものを用いてもよいし、異なるものを用いてもよい。

40

【0059】

このような構成とすることにより、図5に示した通り、電圧を印加することにより第3の層113および第4の層114の界面近傍にて電子の授受が行われ、電子とホールが発生し、第3の層113は電子を第2の層112に輸送すると同時に、第4の層114はホールを第2の電極102に輸送する。すなわち、第3の層113と第4の層114とを合わせて、キャリア発生層としての役割を果たしている。また、第4の層114は、ホールを第2の電極102に輸送する機能を担っていると言える。なお、第4の層114と第2の電極102との間に、さらに第2の層および第3の層を再び積層することで、マルチフ

50

オトン型の発光素子とすることも可能である。

【0060】

また、実施例1にて後述するように、有機化合物と、その有機化合物に対して電子受容性を示す無機化合物との混合層（すなわち第1の層111や第4の層114）は、極めて高いホール注入性・輸送性を示す。したがって、本実施形態2のC E L素子は、実施形態1に比べ、複合層103の両側を非常に厚くすることが可能となり、さらに素子の短絡を効果的に防止できる。また、図5を例に取ると、第2の電極102をスパッタリングにより成膜する場合などは、発光性の有機化合物が存在する第2の層112へのダメージを低減することもできる。さらに、第1の層111と第4の層114を同じ材料で構成することにより、複合層103の両側が同じ材料で構成されることになるため、応力歪みを抑制する効果も期待できる。 10

【0061】

なお、本実施形態2のC E L素子においても、実施形態1と同様、第1の電極101や第2の電極102の種類を変えることで、様々なバリエーションを有する。その模式図を図6および図7に示す。なお、図6および図7では、図5の符号を引用する。また、100は、本発明のC E L素子を担持する基板である。

【0062】

図6は、複合層103が、基板100側から第1の層111、第2の層112、第3の層113、第4の層114の順で構成されているケースである。この時、第1の電極101を光透過性とし、第2の電極102を遮光性（特に反射性）とすることで、図6（a）のように基板100側から光を射出する構成となる。また、第1の電極101を遮光性（特に反射性）とし、第2の電極102を光透過性とすることで、図6（b）のように基板100の逆側から光を射出する構成となる。さらに、第1の電極101、第2の電極102の両方を光透過性とすることで、図6（c）に示すように、基板100側と基板100の逆側の両方に光を射出する構成も可能となる。 20

【0063】

図7は、複合層103が、基板100側から第4の層114、第3の層113、第2の層112、第1の層111の順で構成されているケースである。この時、第1の電極101を遮光性（特に反射性）とし、第2の電極102を光透過性とすることで、図7（a）のように基板100側から光を取り出す構成となる。また、第1の電極101を光透過性とし、第2の電極102を遮光性（特に反射性）とすることで、図7（b）のように基板100と逆側から光を取り出す構成となる。さらに、第1の電極101、第2の電極102の両方を光透過性とすることで、図7（c）に示すように、基板100側と基板100の逆側の両方に光を射出する構成も可能となる。 30

【0064】

なお、複合層103は有機化合物と無機化合物が混合された層であるが、その形成方法としては公知の種々の手法を用いることができる。例えば、有機化合物と無機化合物の両方を抵抗加熱により蒸発させ、共蒸着する手法が挙げられる。その他、有機化合物を抵抗加熱により蒸発させる一方で、無機化合物をエレクトロンビーム（E B）により蒸発させ、共蒸着してもよい。また、有機化合物を抵抗加熱により蒸発させると同時に、無機化合物をスパッタリングし、両方を同時に堆積する手法も挙げられる。その他、湿式法により成膜してもよい。 40

【0065】

また、第1の電極101および第2の電極102に関しても同様に、抵抗加熱による蒸着法、E B蒸着法、スパッタリング、湿式法などを用いることができる。

【0066】

[実施形態3]

本実施形態では、画素部に本発明のC E L素子を有する発光装置について、図8を用いて説明する。なお、図8（A）は、発光装置を示す上面図、図8（B）は図8（A）をA-A'で切断した断面図である。点線で示された801はソース側駆動回路、802は画 50

素部、803はゲート側駆動回路である。また、804は封止基板、805はシール材であり、シール材805で囲まれた内側の領域806は、不活性ガスが充填された空間になつてもよいし、樹脂等の固体が充填されていてもよい。

【0067】

ソース側駆動回路801及びゲート側駆動回路803に入力される信号を伝送するための接続配線807は、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）808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盤（PWB）が取り付けられていてもよい。本明細書における発光装置には、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

【0068】

次に、断面構造について図8（B）を用いて説明する。基板810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側駆動回路801と、画素部802が示されている。

【0069】

なお、ソース側駆動回路801はnチャネル型TFT823とpチャネル型TFT824とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成してもよい。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一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

20

【0070】

また、画素部802はスイッチング用TFT811と、電流制御用TFT812とそのドレインに電気的に接続された第1の電極813とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極813の端部を覆って絶縁物814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。

【0071】

また、カバーレッジを良好なものとするため、絶縁物814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814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814の上端部のみに曲率半径（0.2μm～3μm）を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物814として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

30

【0072】

第1の電極813上には、複合層815、および第2の電極816がそれぞれ形成され、CEL素子817を構成している。第1の電極813、複合層815、第2の電極816の構成としては、先に述べた実施形態1や実施形態2の構成を適用すればよい。

【0073】

さらにシール材805で封止基板804を基板810と貼り合わせることにより、基板810、封止基板804、およびシール材805で囲まれた領域806にCEL素子817が備えられた構造になっている。なお、領域806には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール材805が充填される構成も含むものとする。

40

【0074】

なお、シール材805にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板804に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP（Fiberglass-Reinforced Plastics）、PVF（ポリビニルフロライド）、マイラー、ポリエチレン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。

【0075】

以上のようにして、本発明のCEL素子を有する発光装置を得ることができる。

【0076】

50

[実施形態 4]

本実施例では、本発明のC E L素子を有する発光装置を利用して完成させた様々な電気器具について説明する。

【0077】

本発明は、ビデオカメラ、デジタルカメラ、ゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）、ナビゲーションシステム、音響再生装置（カーオーディオ、オーディオコンポ等）、パソコン、携帯情報端末（モバイルコンピュータ、携帯電話機、携帯型ゲーム機または電子書籍等）、記録媒体を備えた画像再生装置（具体的にはデジタルビデオディスク（DVD）等の記録媒体を再生し、その画像を表示する表示装置を備えた装置）などが挙げられる。これらの電気器具の具体例を図9に示す。

10

【0078】

図9（A）は表示装置であり、筐体9101、支持台9102、表示部9103、スピーカー部9104、ビデオ入力端子9105等を含む。本発明のC E L素子を有する発光装置をその表示部9103に用いることにより作製される。なお、表示装置は、コンピュータ、テレビ放送受信用、広告表示用などの全ての情報表示用装置が含まれる。本発明のC E L素子は駆動電圧が低いので、低消費電力の表示装置を提供することができる。また、画素に欠陥が発生しにくく、輝度の経時変化も少ないので、長期に渡って高品位の画像を表示することができる。

【0079】

20

図9（B）はパソコンであり、本体9201、筐体9202、表示部9203、キーボード9204、外部接続ポート9205、ポインティングマウス9206等を含む。本発明のC E L素子を有する発光装置をその表示部9203に用いることにより作製される。本発明のC E L素子は駆動電圧が低いので、特にノート型のコンピュータでは、バッテリーを使った利用形態においても長時間の使用を可能としている。また、画素に欠陥が発生しにくく、輝度の経時変化も少ないので、長期に渡って高品位の画像を表示することができる。

【0080】

図9（C）はモバイルコンピュータであり、本体9301、表示部9302、スイッチ9303、操作キー9304、赤外線ポート9305等を含む。本発明のC E L素子を有する発光装置をその表示部9302に用いることにより作製される。本発明のC E L素子は駆動電圧が低いので、モバイルコンピュータの低消費電力化を図ることができる。それにより、一回の充電で、モバイルコンピュータを長時間使用することができる。また、モバイルコンピュータに内蔵するバッテリーを小型化することができるので、モバイルコンピュータの軽量化を図ることができる。

30

【0081】

図9（D）は記録媒体を備えた携帯型の画像再生装置（具体的にはDVD再生装置）であり、本体9401、筐体9402、表示部A9403、表示部B9404、記録媒体（DVD等）読み込み部9405、操作キー9406、スピーカー部9407等を含む。表示部A9403は主として画像情報を表示し、表示部B9404は主として文字情報を表示するが、本発明のC E L素子を有する発光装置をこれら表示部A9403、表示部B9404に用いることにより作製される。なお、記録媒体を備えた画像再生装置には家庭用ゲーム機器なども含まれる。本発明のC E L素子は駆動電圧が低いので、低消費電力の画像再生装置を提供することができる。また、画素に欠陥が発生しにくく、輝度の経時変化も少ないので、長期に渡って高品位の画像を表示することができる。

40

【0082】

図9（E）はゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）であり、本体9501、表示部9502、アーム部9503を含む。本発明のC E L素子を有する発光装置をその表示部9502に用いることにより作製される。本発明のC E L素子は駆動電圧が低いので、低消費電力のゴーグル型ディスプレイを提供することができる。また、画素

50

に欠陥が発生しにくく、輝度の経時変化も少ないので、長期に渡って高品位の画像を表示することができる。

【0083】

図9(F)はビデオカメラであり、本体9601、表示部9602、筐体9603、外部接続ポート9604、リモコン受信部9605、受像部9606、バッテリー9607、音声入力部9608、操作キー9609、接眼部9610等を含む。本発明のCEL素子を有する発光装置をその表示部9602に用いることにより作製される。本発明のCEL素子は駆動電圧が低いので、ビデオカメラの低消費電力化を図ることができる。それにより、一回の充電で、ビデオカメラを長時間使用することができる。また、ビデオカメラに内蔵するバッテリーを小型化することができるので、ビデオカメラの軽量化を図ることができる。

10

【0084】

ここで、図9(G)は携帯電話機であり、本体9701、筐体9702、表示部9703、音声入力部9704、音声出力部9705、操作キー9706、外部接続ポート9707、アンテナ9708等を含む。本発明のCEL素子を有する発光装置をその表示部9703に用いることにより作製される。本発明のCEL素子は駆動電圧が低いので、携帯電話機の低消費電力化を図ることができる。それにより、一回の充電で、携帯電話機を長時間使用することができる。また、携帯電話機に内蔵するバッテリーを小型化することができるので、携帯電話機の軽量化を図ることができる。

20

【0085】

以上の様に、本発明のCEL素子を有する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気器具に適用することが可能である。

【実施例1】

【0086】

本実施例1では、有機化合物と無機化合物とを混合してなる層について、有機化合物と無機化合物の組み合わせの検討例を例示する。

【0087】

【成膜例1】

まず、ガラス基板を真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、NPBと酸化モリブデン(VI)とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、真空に引いた状態で、共蒸着法によりNPBと酸化モリブデンの混合膜を成膜した。この時、NPBは0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンはNPBに対して1/4の量(重量比)を蒸発させた。したがって、モル比では、NPB:酸化モリブデン=1:1となっている。なお、膜厚は50nmとした。

30

【0088】

このようにして成膜したNPB:酸化モリブデン混合膜の透過スペクトルを測定した結果を、図10中の1-Aに示す。比較のため、NPB膜の透過スペクトル(図中1-B)および酸化モリブデン膜の透過スペクトル(図中1-C)も合わせて図示した。

【0089】

図10からわかる通り、1-Aの混合膜は、NPBあるいは酸化モリブデンそれぞれの単独の膜では見られなかった新たな吸収が見られた(図中、丸で囲った部分)。これは、NPBと酸化モリブデンが電子の授受を行っているためであり、酸化モリブデンがNPBから電子を受け取り、NPBにホールが発生しているものと考えられる。

40

【0090】

したがって、本成膜例1で成膜したNPB:酸化モリブデン混合膜は、本発明のCEL素子における第1の層および/または第4の層として用いることができる。

【0091】

【成膜例2】

成膜例1におけるNPBをm-MTDA Bに変え、成膜例1と同様にして作製したm-MTDA B:酸化モリブデン混合膜の透過スペクトルを測定した。結果を、図11中の2

50

- A に示す。比較のため、m - M T D A B 膜の透過スペクトル（図中 2 - B ）および酸化モリブデン膜の透過スペクトル（図中 2 - C ）も合わせて図示した。

【 0 0 9 2 】

図 1 1 からわかる通り、2 - A の混合膜は、m - M T D A B あるいは酸化モリブデンそれぞれの単独の膜では見られなかった新たな吸収が見られた（図中、丸で囲った部分）。これは、m - M T D A B と酸化モリブデンが電子の授受を行っているためであり、酸化モリブデンがm - M T D A B から電子を受け取り、m - M T D A B にホールが発生しているものと考えられる。

【 0 0 9 3 】

したがって、本成膜例 2 で成膜したm - M T D A B : 酸化モリブデン混合膜は、本発明の C E L 素子における第 1 の層および / または第 4 の層として用いることができる。 10

【 0 0 9 4 】

〔成膜例 3 〕

成膜例 1 における N P B を A 1 q₃ に変え、成膜例 1 と同様にして作製した A 1 q₃ : 酸化モリブデン混合膜の透過スペクトルを測定した。結果を、図 1 2 中の 3 - A に示す。比較のため、A 1 q₃ 膜の透過スペクトル（図中 3 - B ）および酸化モリブデン膜の透過スペクトル（図中 3 - C ）も合わせて図示した。

【 0 0 9 5 】

図 1 2 からわかる通り、3 - A の混合膜の透過スペクトルは、A 1 q₃ 単独の透過スペクトル（3 - B ）と酸化モリブデン単独の透過スペクトル（3 - C ）の単なる重ね合わせであり、新たな吸収は生じていなかった。これは、A 1 q₃ と酸化モリブデンが電子の授受を行っていないことを示している。つまりこの場合は、酸化モリブデンは A 1 q₃ に対して準位を形成せず、A 1 q₃ の発光を消光しにくいと言える。 20

【 0 0 9 6 】

したがって、本成膜例 3 で成膜した A 1 q₃ : 酸化モリブデン混合膜は、本発明の C E L 素子における第 2 の層として用いることができる。

【実施例 2】

【 0 0 9 7 】

本実施例 2 では、有機化合物と無機化合物とを混合してなる層について、電気特性を調べた結果を記載する。 30

【 0 0 9 8 】

まず、1 1 0 nm の膜厚で I T S O が成膜されたガラス基板を用意する。 I T S O 表面は、2 mm 角の大きさで表面が露出するよう周辺を絶縁膜で覆った。

【 0 0 9 9 】

次に、そのガラス基板を、I T S O が形成された面が下方になるように真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、N P B と酸化モリブデン（V I ）とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、真空に引いた状態で、共蒸着法により N P B と酸化モリブデンの混合膜を成膜した。この時、N P B は 0.4 nm / s の成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンは N P B に対して 1 / 2 の量（重量比）を蒸発させた。したがって、モル比では、N P B : 酸化モリブデン = 1 : 2 となっている。なお、膜厚は 50 nm とした。さらにその上に、アルミニウム（A 1 ）を 150 nm 成膜した。 40

【 0 1 0 0 】

このようにして得られた I T S O \ N P B : 酸化モリブデン混合膜 \ A 1 の積層構造に関して、電圧 - 電流特性を調べた結果を図 1 3 に示す。図 1 3 に示す通り、若干下に凸の曲線になっているものの、電圧 - 電流特性はほぼ直線であり、オーム電流が支配的であることがわかる。したがって、I T S O との間にホール注入障壁はほとんどないと考えられ、ホールを効率良く注入・輸送していることが示唆される。なお、0.5 V の電圧を印加した時に流れた電流は 12.9 mA であり、電極（I T S O ）面積が 4 mm²、膜厚が 50 nm であるから、この時の抵抗率 ρ は、 $\rho = (0.5 / 0.0129) \times (4 \times 10^{-6}) / (50 \times 10^{-9}) = 3.1 \times 10^3$ [m] であった。したがって、半導体の領域で 50

あると言える。

【0101】

以上の結果から、N P B：酸化モリブデン混合膜は、優れたホール注入・輸送特性を有し、本発明のC E L素子における第1の層および/または第4の層として用いることができる。

【実施例3】

【0102】

本実施例3では、実施形態1で開示した本発明のC E L素子の具体的な構成を例示する。なお、本実施例3では、図1の符号を引用する。

【0103】

まず、110nmの膜厚でITOが成膜されたガラス基板を用意する。成膜されたITOは、本実施例において第1の電極101として作用する。

【0104】

次に、第1の電極101が形成されたガラス基板を、第1の電極101が形成された面が下方になるように真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、N P Bと酸化モリブデン(VI)とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、真空に引いた状態で、共蒸着法によりN P Bと酸化モリブデンを混合した第1の層111を形成する。この時、N P Bは0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンはN P Bに対して1/4の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は120nmとする。

【0105】

次いで、第1の層111上に、第2の層112を形成する。本実施例においては、Al₂O₃と酸化モリブデン(VI)との共蒸着法により、Al₂O₃と酸化モリブデンが混合された第2の層112を形成する。この時、Al₂O₃は0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンはAl₂O₃に対して1/4の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は30nmとする。

【0106】

さらに第2の層112の上に、第3の層113を形成する。本実施例においては、Al₂O₃と酸化リチウムとの共蒸着法により、Al₂O₃と酸化リチウムが混合された第3の層113を形成する。この時、Al₂O₃は0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化リチウムはAl₂O₃に対して7/100の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は10nmとする。

【0107】

最後に、第2の電極102としてAlを150nm蒸着し、本発明のC E L素子を得る。

【実施例4】

【0108】

本実施例4では、実施形態2で開示した本発明のC E L素子の具体的な構成を例示する。なお、本実施例4では、図5の符号を引用する。

【0109】

まず、110nmの膜厚でITOが成膜されたガラス基板を用意する。成膜されたITOは、本実施例において第1の電極101として作用する。

【0110】

次に、第1の電極101が形成されたガラス基板を、第1の電極101が形成された面が下方になるように真空蒸着装置内の基板ホルダーに固定する。そして、N P Bと酸化モリブデン(VI)とをそれぞれ別の抵抗加熱式の蒸発源に入れ、真空に引いた状態で、共蒸着法によりN P Bと酸化モリブデンを混合した第1の層111を形成する。この時、N P Bは0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンはN P Bに対して1/4の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は120nmとする。

【0111】

次いで、第1の層111上に、第2の層112を形成する。本実施例においては、Al

10

20

30

40

50

q_3 とフッ化マグネシウムとの共蒸着法により、Al q_3 とフッ化マグネシウムが混合された第2の層112を形成する。この時、Al q_3 は0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、フッ化マグネシウムはAl q_3 に対して9/100の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は30nmとする。

【0112】

さらに第2の層112の上に、第3の層113を形成する。本実施例においては、Al q_3 と酸化リチウムとの共蒸着法により、Al q_3 と酸化リチウムが混合された第3の層113を形成する。この時、Al q_3 は0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化リチウムはAl q_3 に対して7/100の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は10nmとする。

10

【0113】

さらに第3の層113の上に、第4の層114を形成する。本実施例においては、第1の層111と同様に、NPBと酸化モリブデンとの共蒸着法により、NPBと酸化モリブデンが混合された第4の層114を形成する。この時、NPBは0.4nm/sの成膜レートで蒸発させ、酸化モリブデンはNPBに対して1/4の量(重量比)を蒸発させる。膜厚は120nmとする。

【0114】

最後に、第2の電極102としてAlを150nm蒸着し、本発明のCEL素子を得る。

【図面の簡単な説明】

20

【0115】

【図1】本発明の発光素子の素子構造を示す図。

【図2】従来の発光素子の素子構造を示す図。

【図3】本発明の発光素子の発光方向を示す図。

【図4】本発明の発光素子の発光方向を示す図。

【図5】本発明の発光素子の素子構造を示す図。

【図6】本発明の発光素子の発光方向を示す図。

【図7】本発明の発光素子の発光方向を示す図。

【図8】本発明の発光素子を有する発光装置を示す図。

【図9】本発明の発光装置を用いた電気器具を示す図。

30

【図10】有機化合物と無機化合物を混合した膜の透過スペクトルを示す図。

【図11】有機化合物と無機化合物を混合した膜の透過スペクトルを示す図。

【図12】有機化合物と無機化合物を混合した膜の透過スペクトルを示す図。

【図13】有機化合物と無機化合物を混合した膜の電圧-電流特性を示す図。

【符号の説明】

【0116】

100 基板

101 第1の電極

102 第2の電極

103 複合層

40

111 第1の層

112 第2の層

113 第3の層

114 第4の層

201 第1の電極(陽極)

202 第2の電極(陰極)

203 複合層

211 ホール輸送層

212 発光層

213 電子輸送層

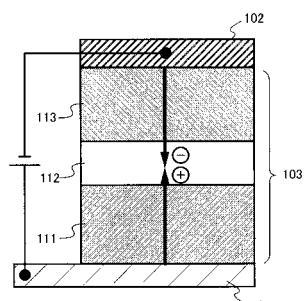
50

8 0 1	ソース側駆動回路	
8 0 2	画素部	
8 0 3	ゲート側駆動回路	
8 0 4	封止基板	
8 0 5	シール材	
8 0 6	領域	
8 0 7	接続配線	
8 0 8	F P C (フレキシブルプリントサーキット)	
8 1 0	基板	10
8 1 1	スイッチング用T F T	
8 1 2	電流制御用T F T	
8 1 3	第1の電極	
8 1 4	絶縁物	
8 1 5	複合層	
8 1 6	第2の電極	
8 1 7	C E L素子	
8 2 3	nチャネル型T F T	
8 2 4	pチャネル型T F T	
9 1 0 1	筐体	
9 1 0 2	支持台	20
9 1 0 3	表示部	
9 1 0 4	スピーカー部	
9 1 0 5	ビデオ入力端子	
9 2 0 1	本体	
9 2 0 2	筐体	
9 2 0 3	表示部	
9 2 0 4	キー ボード	
9 2 0 5	外部接続ポート	
9 2 0 6	ポインティングマウス	
9 3 0 1	本体	30
9 3 0 2	表示部	
9 3 0 3	スイッチ	
9 3 0 4	操作キー	
9 3 0 5	赤外線ポート	
9 4 0 1	本体	
9 4 0 2	筐体	
9 4 0 3	表示部A	
9 4 0 4	表示部B	
9 4 0 5	記録媒体読み込み部	
9 4 0 6	操作キー	40
9 4 0 7	スピーカー部	
9 5 0 1	本体	
9 5 0 2	表示部	
9 5 0 3	アーム部	
9 6 0 1	本体	
9 6 0 2	表示部	
9 6 0 3	筐体	
9 6 0 4	外部接続ポート	
9 6 0 5	リモコン受信部	
9 6 0 6	受像部	50

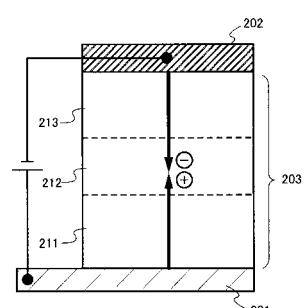
9 6 0 7	バッテリー
9 6 0 8	音声入力部
9 6 0 9	操作キー
9 6 1 0	接眼部
9 7 0 1	本体
9 7 0 2	筐体
9 7 0 3	表示部
9 7 0 4	音声入力部
9 7 0 5	音声出力部
9 7 0 6	操作キー
9 7 0 7	外部接続ポート
9 7 0 8	アンテナ

10

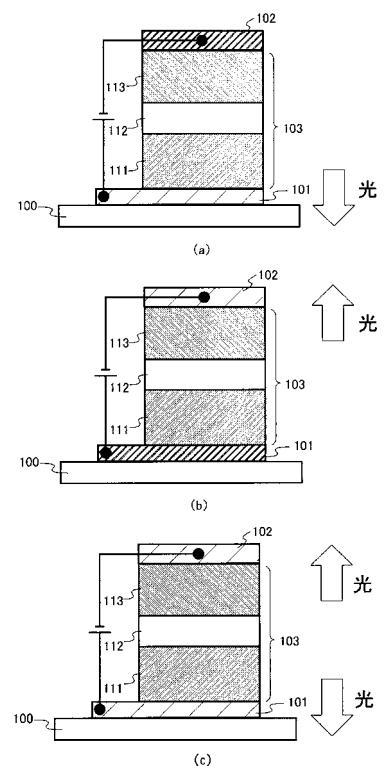
【図 1】



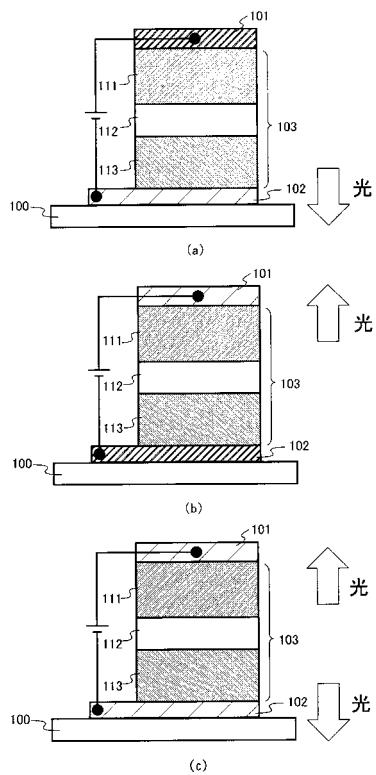
【図 2】



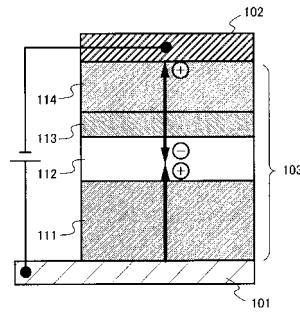
【図 3】



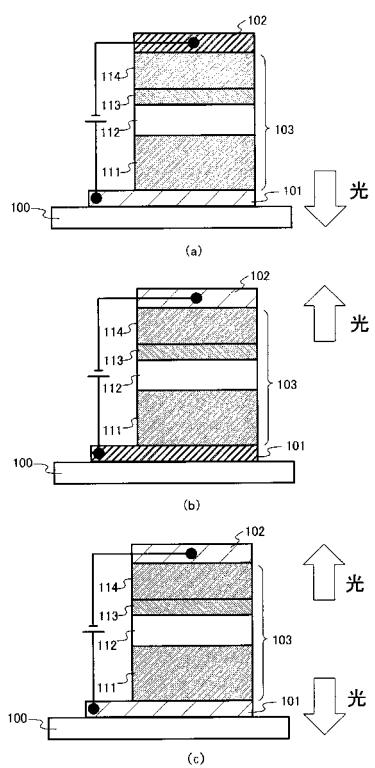
【図4】



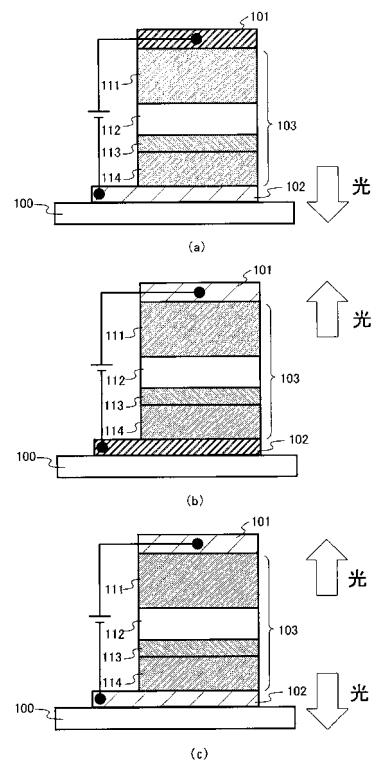
【図5】



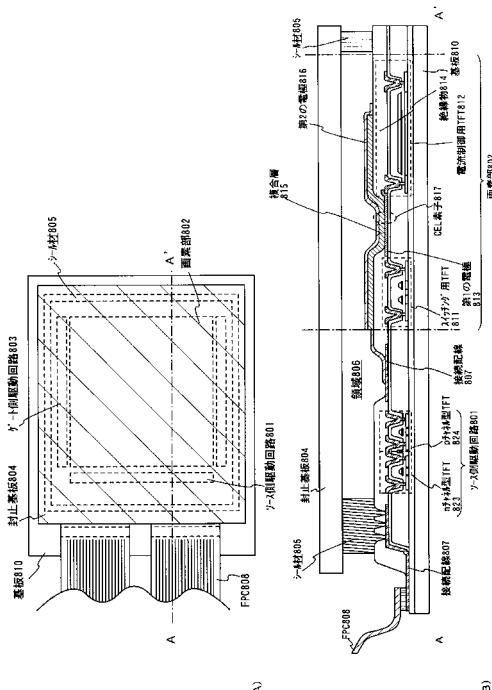
【図6】



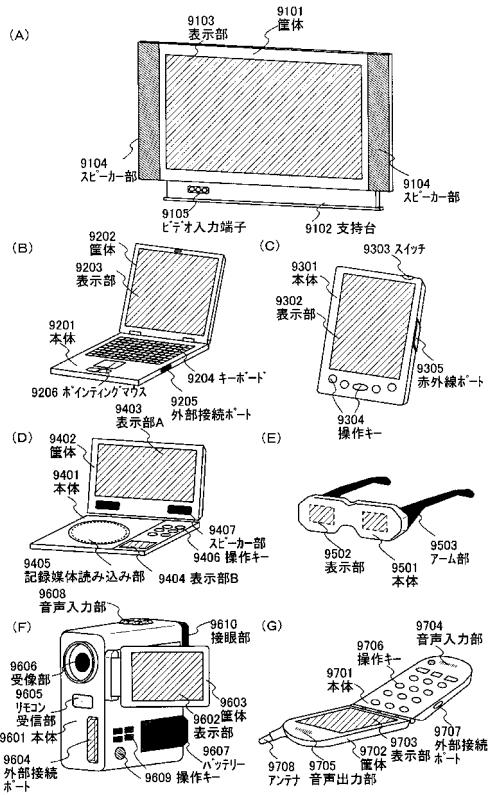
【図7】



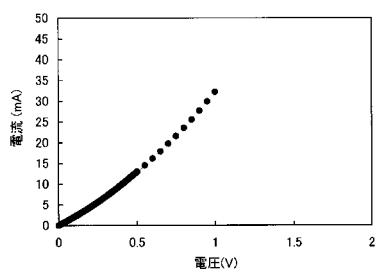
【 図 8 】



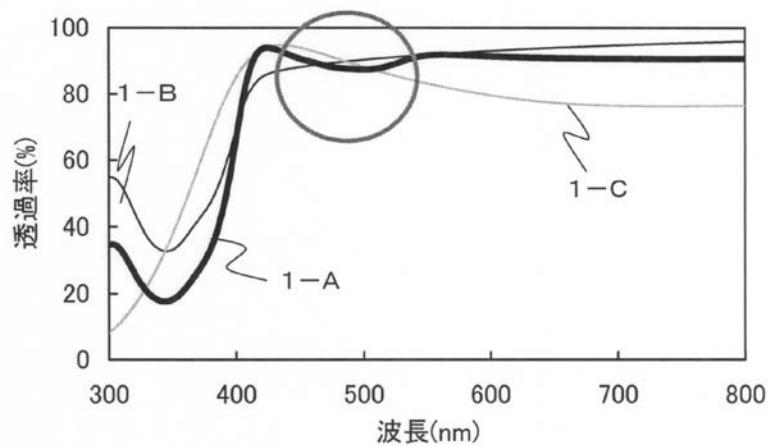
【図9】



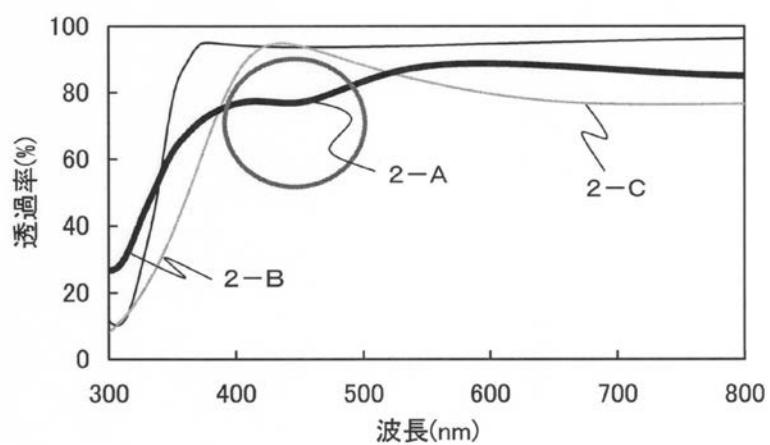
【図13】



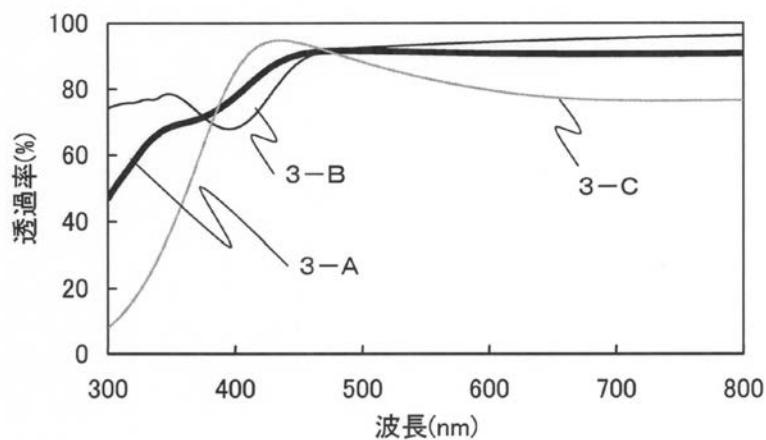
【図10】



【図11】



【図12】



フロントページの続き

(72)発明者 濑尾 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 野田 洋平

(56)参考文献 特開平08-102360 (JP, A)

特開昭61-202420 (JP, A)

特開2000-315581 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 51/50