

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5930005号  
(P5930005)

(45) 発行日 平成28年6月8日(2016.6.8)

(24) 登録日 平成28年5月13日(2016.5.13)

(51) Int.Cl.	F I		
<b>HO 1 L 51/50</b> (2006.01)	HO 5 B	33/14	B
<b>CO 9 K 11/06</b> (2006.01)	HO 5 B	33/22	B
<b>HO 5 B 33/10</b> (2006.01)	HO 5 B	33/22	D
<b>GO 9 F 9/30</b> (2006.01)	CO 9 K	11/06	6 9 0
<b>HO 1 L 27/32</b> (2006.01)	HO 5 B	33/10	

請求項の数 7 (全 37 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2014-232604 (P2014-232604)	(73) 特許権者	000001270
(22) 出願日	平成26年11月17日(2014.11.17)		コニカミノルタ株式会社
(62) 分割の表示	特願2013-228954 (P2013-228954) の分割		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
原出願日	平成20年8月18日(2008.8.18)	(74) 代理人	110001254
(65) 公開番号	特開2015-92574 (P2015-92574A)		特許業務法人光陽国際特許事務所
(43) 公開日	平成27年5月14日(2015.5.14)	(72) 発明者	田中 達夫
審査請求日	平成26年11月17日(2014.11.17)		東京都日野市さくら町1番地 コニカミノ ルタテクノロジーセンター株式会社内
		(72) 発明者	北 弘志
			東京都日野市さくら町1番地 コニカミノ ルタテクノロジーセンター株式会社内
		審査官	濱野 隆

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法、表示装置並びに照明装置

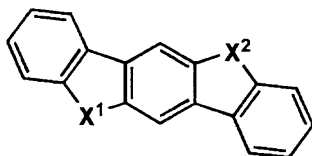
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物であって、置換基を有してもよい下記一般式(2)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化1】

一般式(2)



(式中、X<sup>1</sup>はN-R(Rはアルキル基またはアリール基を表す)、X<sup>2</sup>はカルコゲン原子を表し、Rは置換基としてジアリールアミノ基を有する。)

【請求項2】

前記一般式(2)のX<sup>2</sup>が酸素原子または硫黄原子であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項3】

前記一般式(2)のジアリールアミノ基における二つのアリール基が互いに結合して環

を形成しないことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含む有機層をウェットプロセスによって形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 6】

請求項 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

【請求項 7】

請求項 4 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子材料、有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法、表示装置並びに照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（以下、ELDと言う）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子とも言う）が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。有機EL素子は発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、更に自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

【0003】

しかしながら、今後の実用化に向けた有機EL素子においては、更に低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。

【0004】

特許第3093796号公報では、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体またはトリスチリルアリーレン誘導体に微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成している。また、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体を宿主化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子（例えば、特開昭63-264692号公報）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体を宿主化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する素子（例えば、特開平3-255190号公報）等が知られている。

【0005】

以上のように、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であり、光の取り出し効率が約20%であるため外部取り出し量子効率（ ）の限界は5%とされている。

【0006】

ところが、プリンストン大より励起三重項からのリン光発光を用いる有機EL素子の報告（M. A. Baldo et al., Nature, 395巻、151～154頁（

10

20

30

40

50

1998年) ) がされて以来、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってきている。

【0007】

例えば、M. A. Baldo et al., Nature、403巻、17号、750～753頁(2000年)、また米国特許第6,097,147号明細書等にも開示されている。

【0008】

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られる可能性があることから照明用途としても注目されている。

【0009】

一方、有機EL材料の寿命を改善する手段の一つとして、含有される化合物の構造に着目した開発が進められてきた結果、実用に耐えうる可能性のある材料が幾つか見出されている。しかしながら、置換基の導入などの構造の小さな変更が、寿命、発光特性などの様々な特性に与える影響が大きく、しかも予測が難しいため、解決すべき課題として残されていた。これまで、カルバゾール環誘導体を含む縮合環を有機EL材料として用いることが、開示されている(例えば、特許文献1、2参照)が、寿命はもとよりも発光効率も十分とは言えないものであった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0010】

【特許文献1】特開2006-083386号公報

【特許文献2】特開平11-176578号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明の目的は、発光効率が高く、且つ長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子材料、これを含有する有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法、並びにこれを用いた表示装置、照明装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0012】

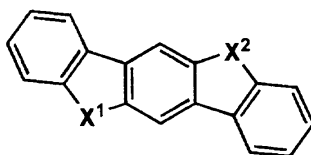
本発明の上記目的は、下記の構成1～13により達成されるが、具体的に本発明によれば、

カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物であって、置換基を有してもよい下記一般式(2)で表されることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料を提供することができる。

【0013】

【化1】

一般式(2)



【0014】

(式中、X<sup>1</sup>はN-R(Rはアルキル基またはアリール基を表す)、X<sup>2</sup>はカルコゲン原子を表し、Rは置換基としてジアリールアミノ基を有する。)

【0015】

1.カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合

10

20

30

40

50

した縮合環を部分構造として持つ化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

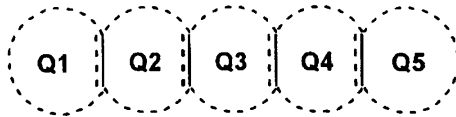
【0016】

2. 前記カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物が下記一般式(1)で表されることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0017】

【化2】

一般式(1)



10

【0018】

(式中、Q1～Q5は5員環または6員環の芳香族環を表し、Q1～Q5の少なくとも2個は芳香族複素環を表し、該芳香族複素環の少なくとも1個はカルコゲン原子を含む芳香族複素環を表す。)

【0019】

3. 前記一般式(1)において、Q1、Q3、Q5がそれぞれ6員環、Q2、Q4がそれぞれ5員環であることを特徴とする前記2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

20

【0020】

4. 前記一般式(1)のQ2、Q4の少なくとも一方がカルコゲン原子を含む芳香族複素環であることを特徴とする前記2または3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

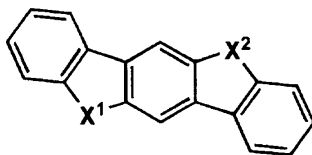
【0021】

5. 前記一般式(1)が置換基を有してもよい下記一般式(2)で表されることを特徴とする前記2～4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0022】

【化3】

一般式(2)



【0023】

(式中、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>はN-R(Rはアルキル基またはアリール基を表す)またはカルコゲン原子を表し、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>の少なくとも一方はカルコゲン原子を表す。)

40

【0024】

6. 前記一般式(2)のX<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>の少なくとも一方が酸素原子または硫黄原子であることを特徴とする前記5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0025】

7. 前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0026】

8. 前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を発光層に含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

## 【0027】

9. 前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を電子輸送層に含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0028】

10. 前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を正孔輸送層に含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0029】

11. 前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含む有機層がウェットプロセスによって形成されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

## 【0030】

12. 前記7～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

## 【0031】

13. 前記7～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

## 【発明の効果】

## 【0032】

本発明により、発光効率が高く、且つ長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子材料、これを含有する有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法、並びにこれを用いた表示装置、照明装置を提供することができた。

20

## 【図面の簡単な説明】

## 【0033】

【図1】有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図2】表示部の模式図である。

【図3】照明装置の概略図である。

【図4】照明装置の断面図である。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0034】

本発明者らは、上記課題に鑑み鋭意検討を行った結果、カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子材料により、発光効率が高く、且つ長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子が得られることを見出し、本発明に至った次第である。

30

## 【0035】

カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物としては、具体的には上記一般式(1)で示される。

## 【0036】

本発明の有機EL素子材料を構成する有機化合物は、カルコゲン原子を含む少なくとも5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物であることが特徴であり、この大きな縮合環の存在によって分子の共役系の広がりが大きくなる傾向にある。共役系が拡大することで、該有機化合物を含有する層のキャリア移動度が大きくなることが予想され、その結果として素子寿命についても改善されることが期待された。更にカルコゲン原子の存在により、寿命の改善効果が大きくなることも期待できる。

40

## 【0037】

また、この有機エレクトロルミネッセンス素子材料を用いることにより、十分な特性を示す有機EL素子、及びこれを用いた表示装置、照明装置が得られる。

## 【0038】

本発明において、芳香族環とは芳香族炭化水素環、芳香族複素環を言い、芳香族炭化水素環、芳香族複素環それぞれは縮環していない単環のものを表す。カルコゲン原子は、所

50

謂酸素族元素であり、酸素、硫黄、セレン、テルルが挙げられる。

【 0 0 3 9 】

芳香族炭化水素環としては、例えば、ベンゼン環が挙げられ、芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリミジン環、フラン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、チオフェン環、チアゾール環、イソオキサゾール環、イソチアゾール環が挙げられる。

【 0 0 4 0 】

これら芳香族炭化水素環、芳香族複素環は置換基を有してもよく、置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルキニル基、芳香族炭化水素環基（芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p - クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等）、芳香族複素環基（例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（例えば、1, 2, 4 - トリアゾール - 1 - イル基、1, 2, 3 - トリアゾール - 1 - イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルリル基、オキサゾリジル基等）、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、ウレイド基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基またはヘテロアリールスルホニル基、アミノ基、ハロゲン原子、フッ化炭化水素基、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基等が挙げられる。

【 0 0 4 1 】

本発明において、前記カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物としては、前記一般式(1)で表される。一般式(1)において、Q1 ~ Q5は5員環または6員環の芳香族環を表すが、Q1、Q3、Q5がそれぞれ6員環、Q2、Q4がそれぞれ5員環であることが好ましい。また、Q1 ~ Q5の少なくとも2個が芳香族複素環を表し、該芳香族複素環の少なくとも1個はカルコゲン原子を含む芳香族複素環を表すが、好ましくはQ2、Q4が芳香族複素環を表し、Q2、Q4の少なくともどちらかがカルコゲン原子を含む芳香族複素環を表すことである。

【 0 0 4 2 】

また、前記一般式(1)が、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>はN - R（Rはアルキル基またはアリール基を表す）またはカルコゲン原子を表し、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>の少なくとも一方はカルコゲン原子を表すところの、置換基を有してもよい下記一般式(2)で表されることが好ましく、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>の少なくとも一方が酸素原子または硫黄原子であることが更に好ましい。置換基としては上記のものが挙げられる。

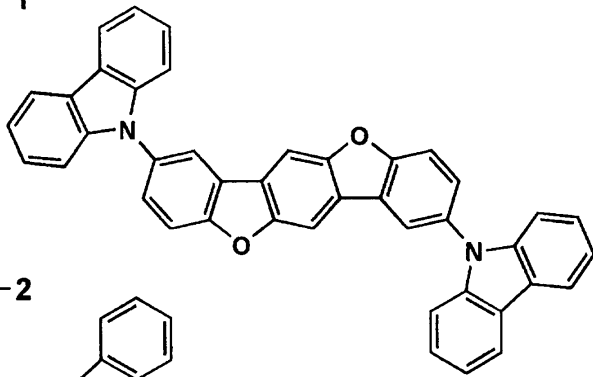
【 0 0 4 3 】

以下、本発明のカルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物の例示化合物を挙げるが、これらに限定されるものではない。

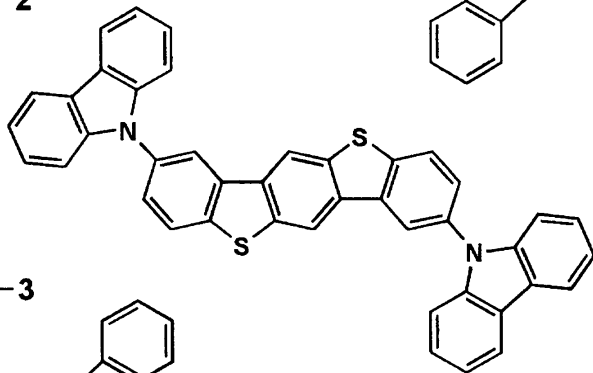
【 0 0 4 4 】

【化4】

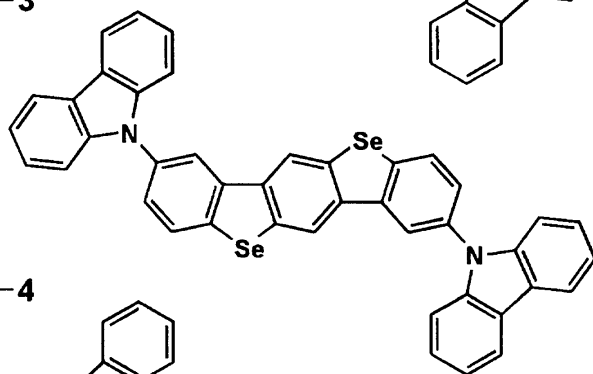
1-1



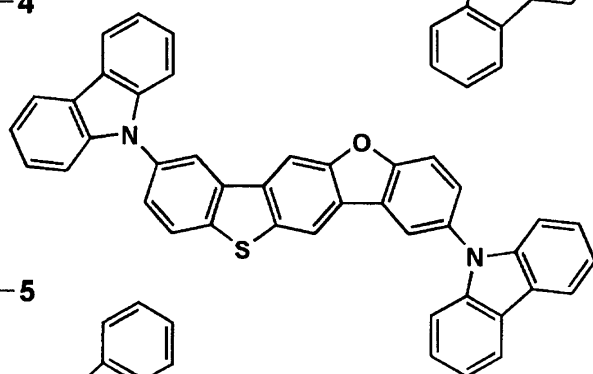
1-2



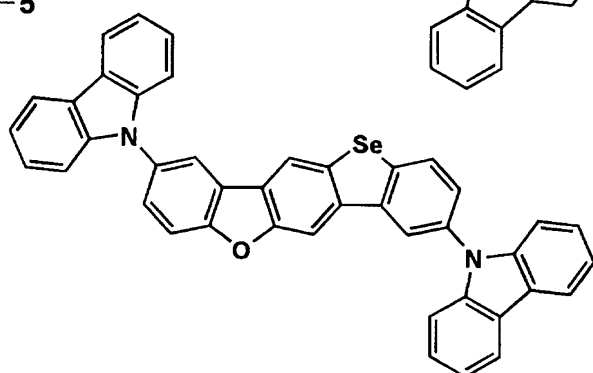
1-3



1-4



1-5



10

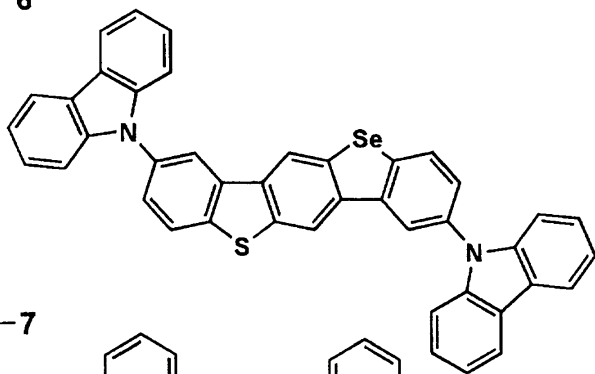
20

30

40

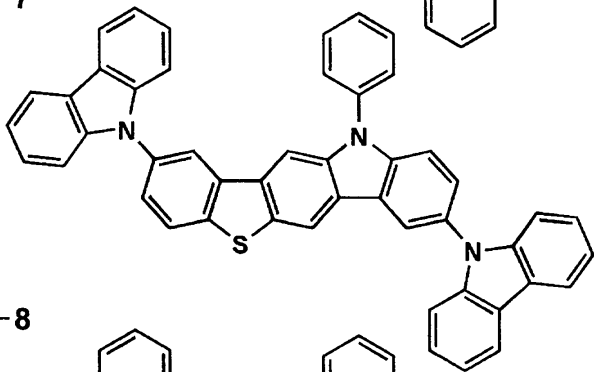
【化5】

1-6

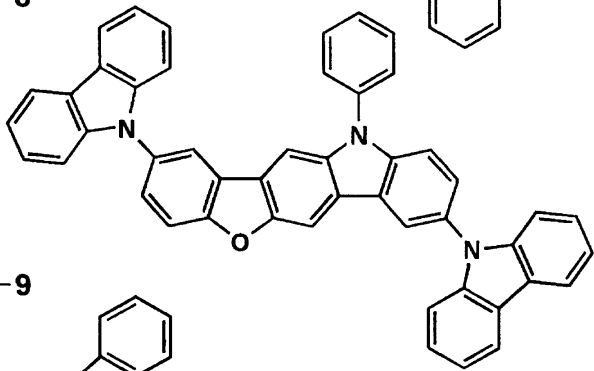


10

1-7

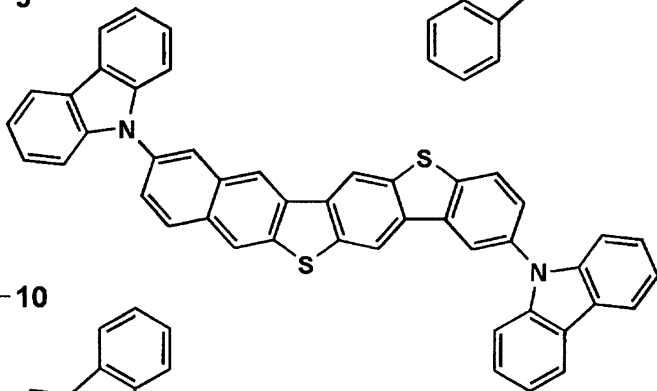


1-8



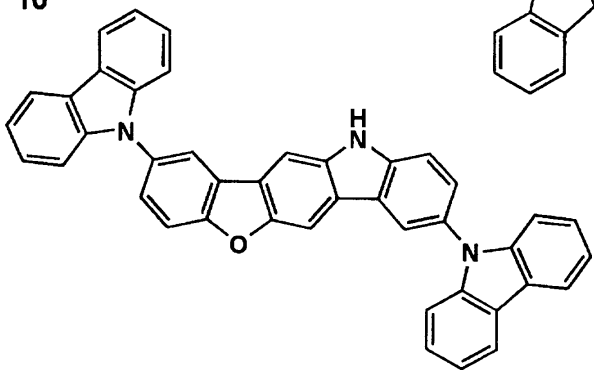
20

1-9



30

1-10

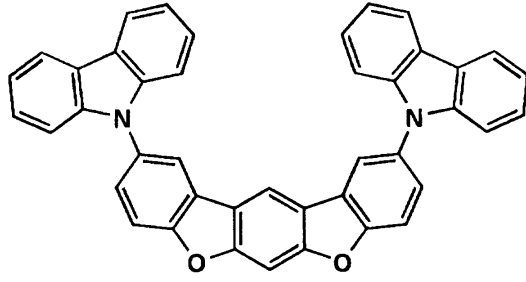


40

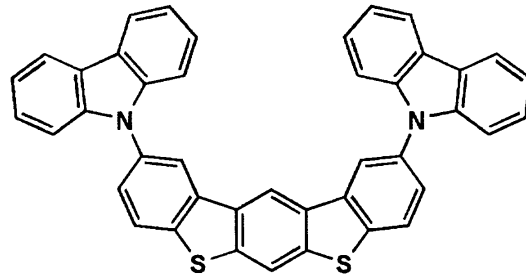


【化6】

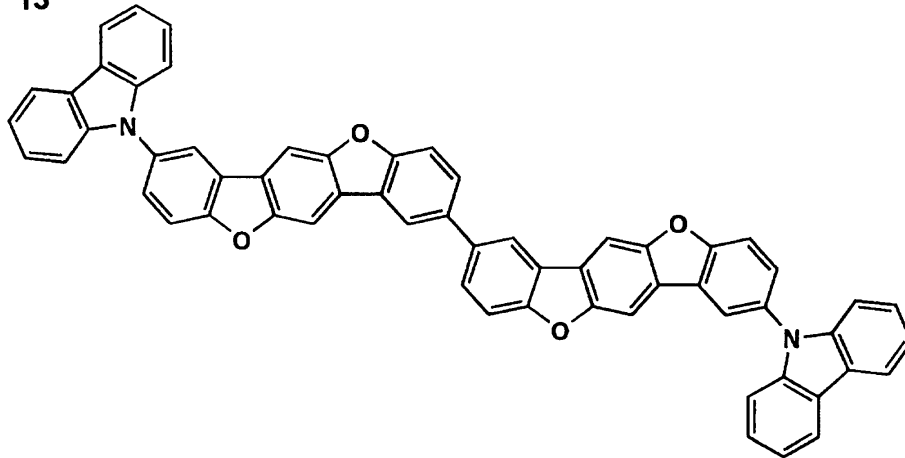
1-11



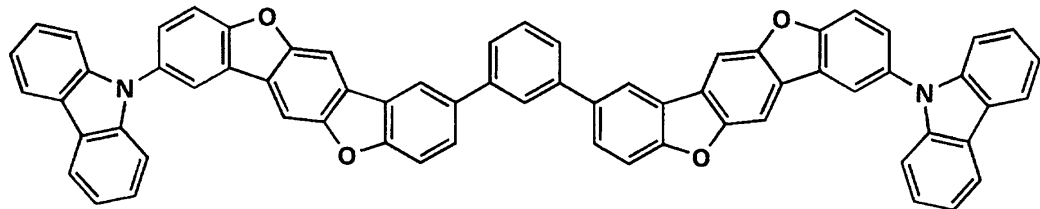
1-12



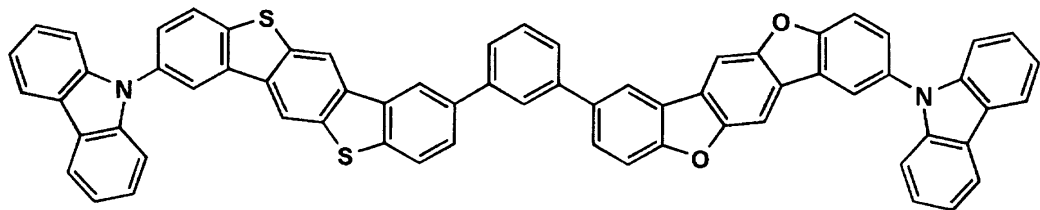
1-13



1-14



1-15



【0047】

10

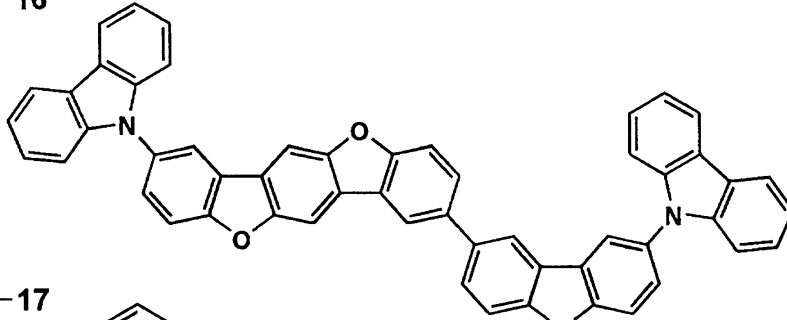
20

30

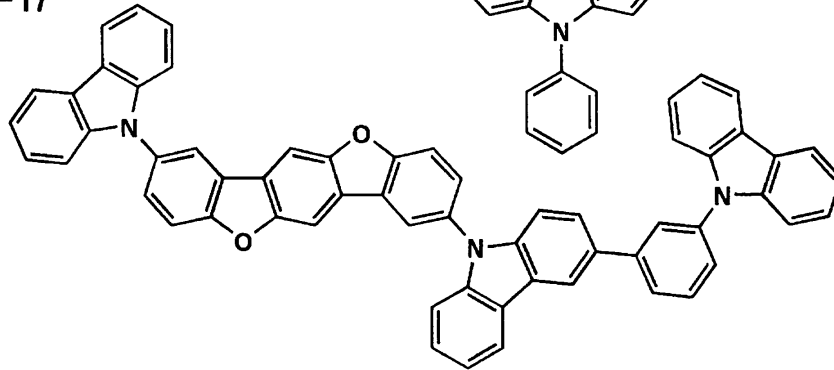
40

【化7】

1-16

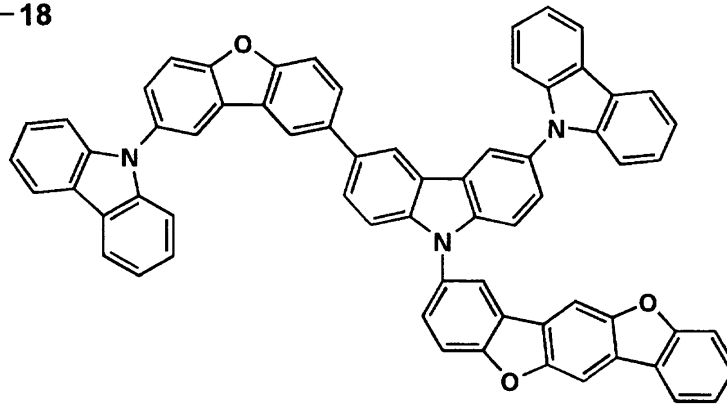


1-17



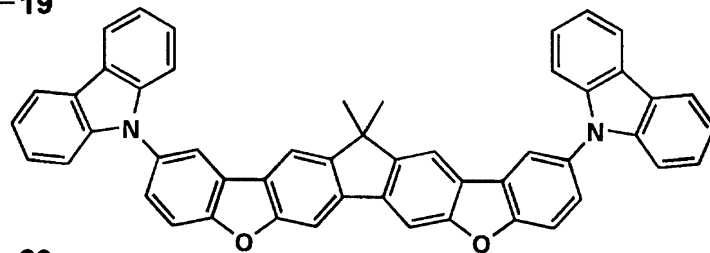
10

1-18



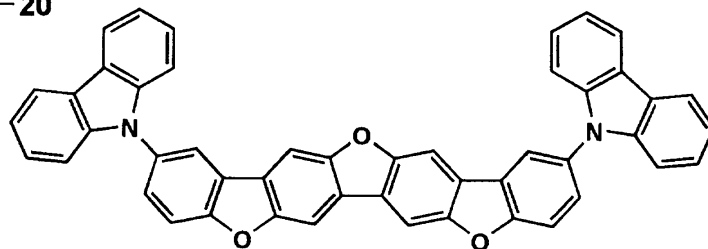
20

1-19



30

1-20

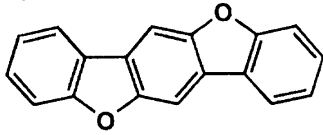


40

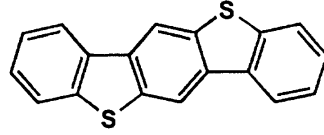
【0048】

【化 8】

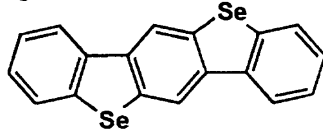
2-1



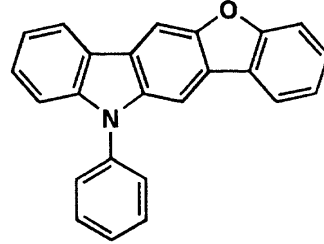
2-2



2-3

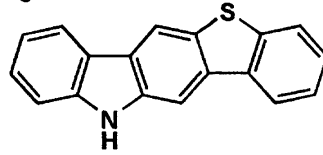


2-4

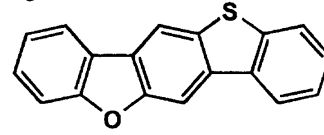


10

2-5

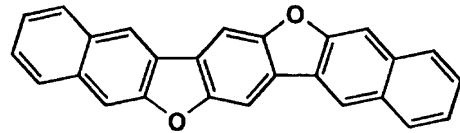


2-6

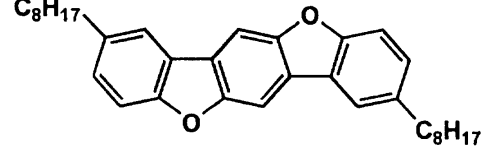


20

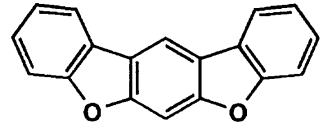
2-7



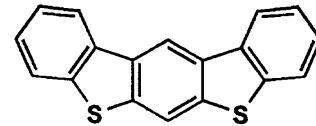
2-8



2-9

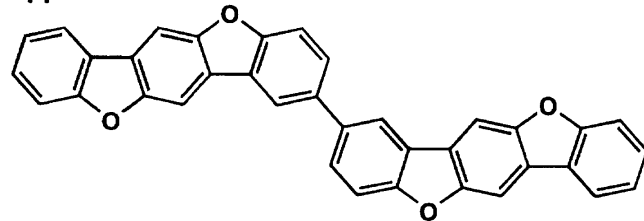


2-10



30

2-11

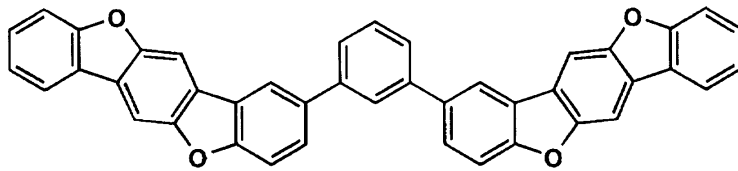


【 0 0 4 9 】

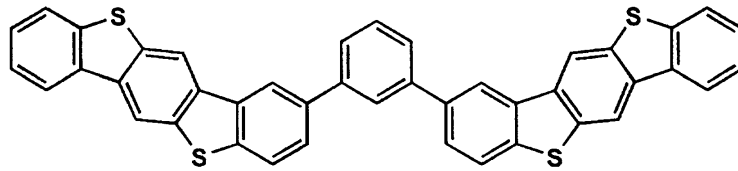
40

【化9】

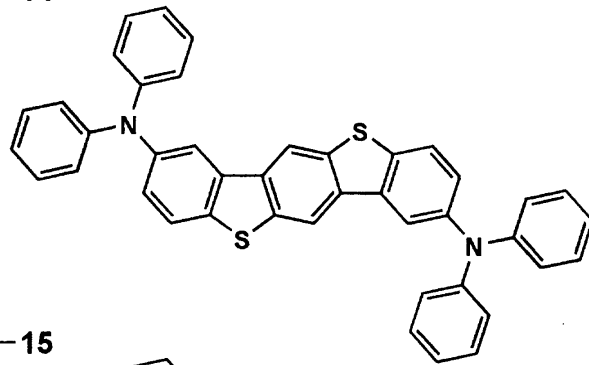
2-12



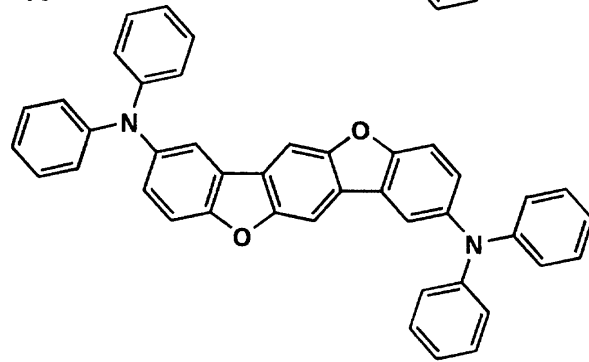
2-13



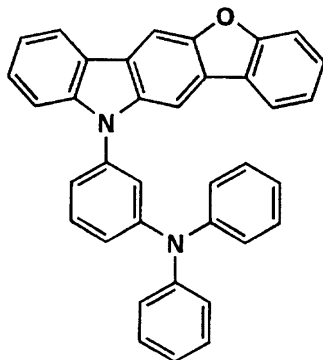
2-14



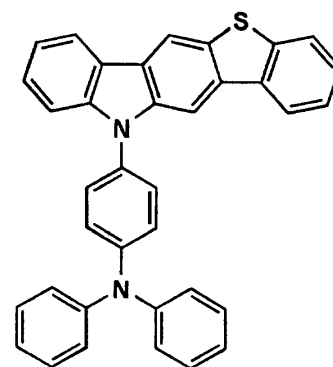
2-15



2-16



2-17



10

20

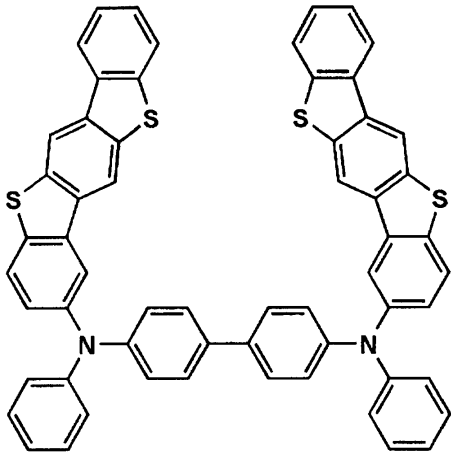
30

40

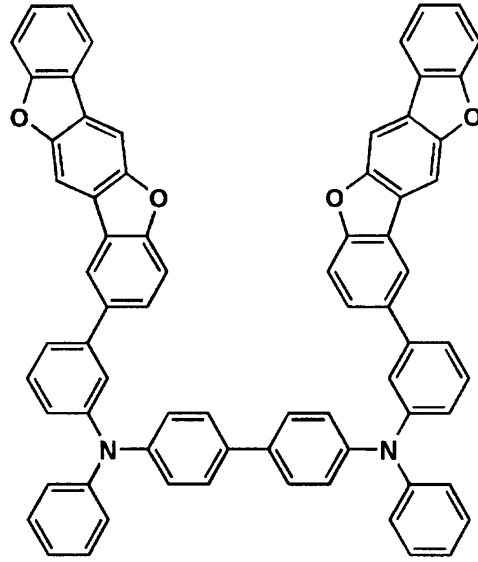
【0050】

【化 1 0】

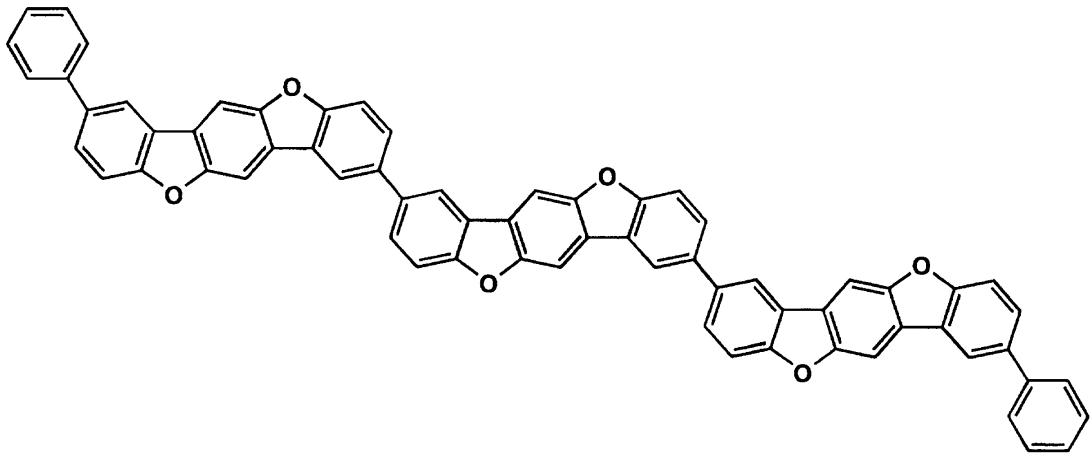
2-18



2-19



2-20



10

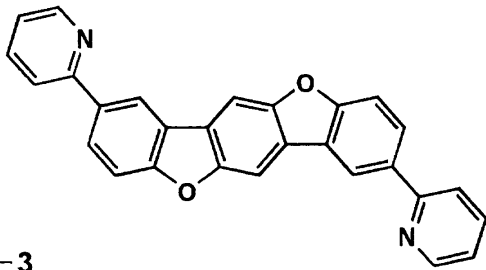
20

30

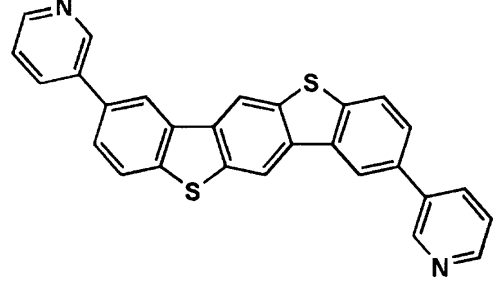
【 0 0 5 1】

【化 1 1】

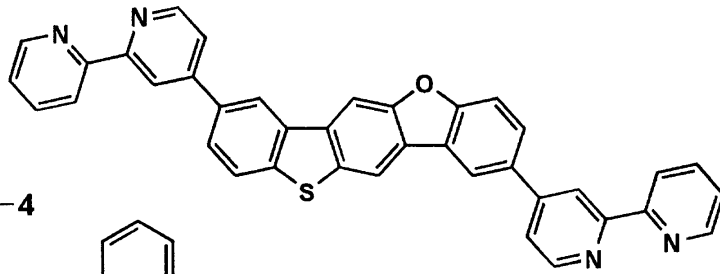
3-1



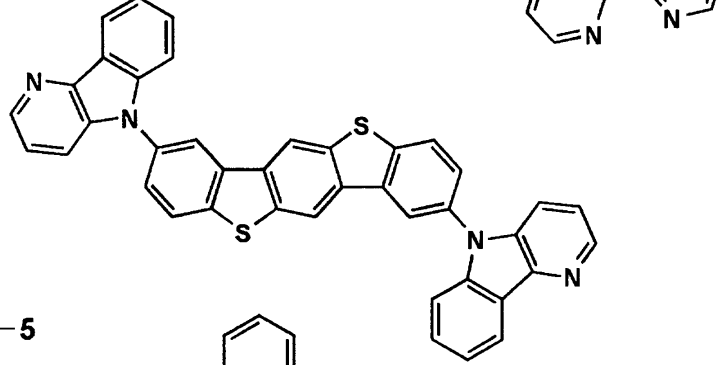
3-2



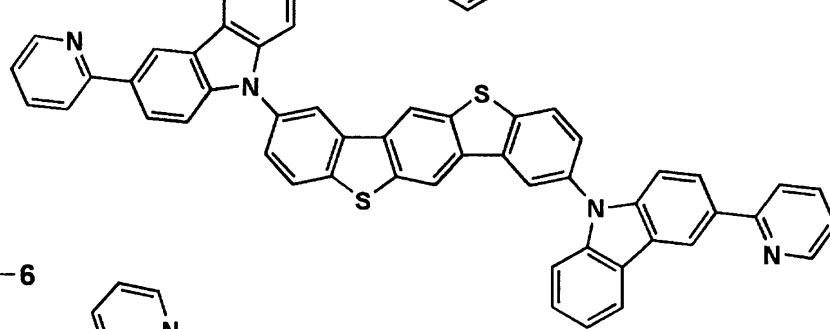
3-3



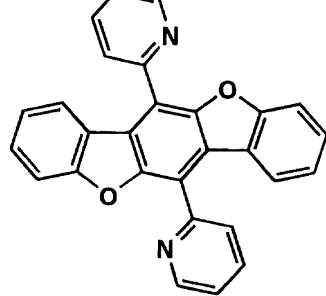
3-4



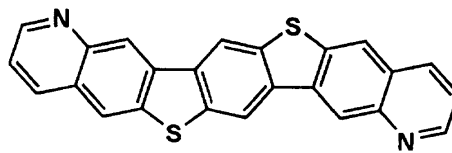
3-5



3-6



3-7



10

20

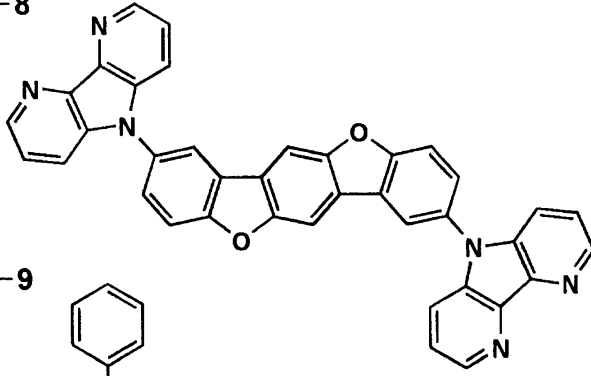
30

40

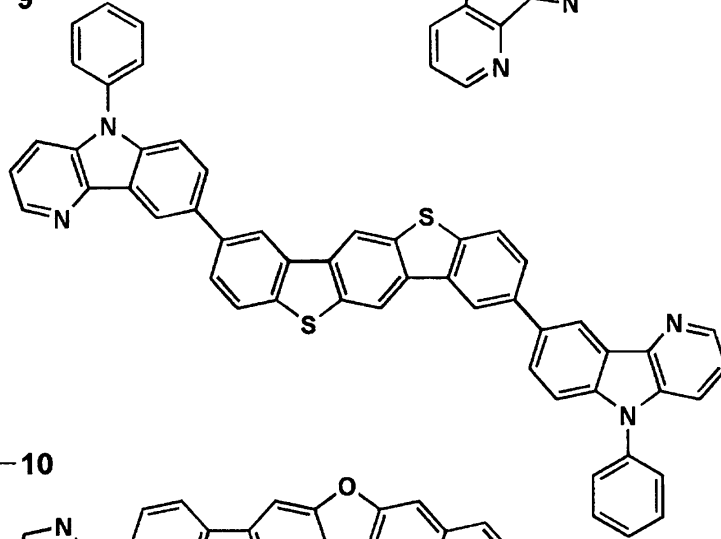
【 0 0 5 2 】

【化 1 2】

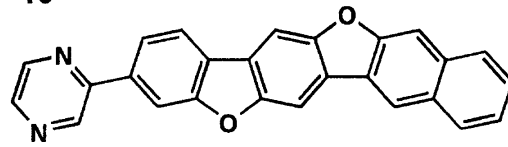
3-8



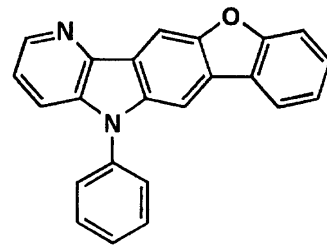
3-9



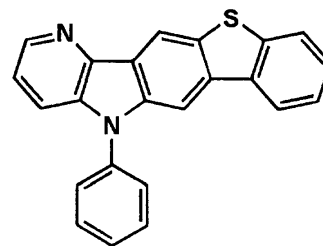
3-10



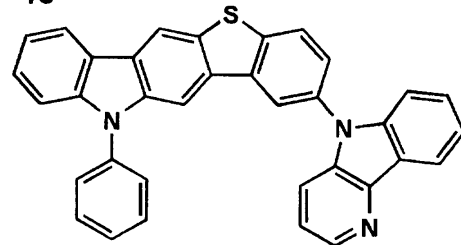
3-11



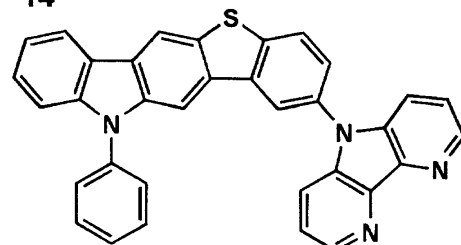
3-12



3-13



3-14



【 0 0 5 3 】

10

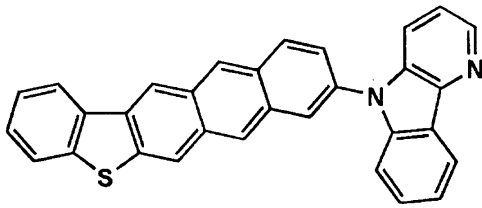
20

30

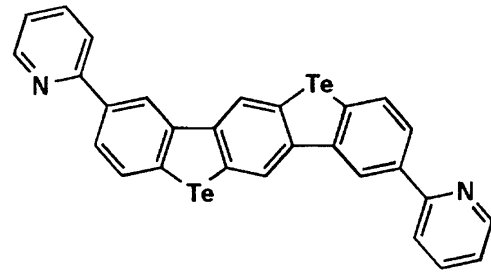
40

【化 1 3】

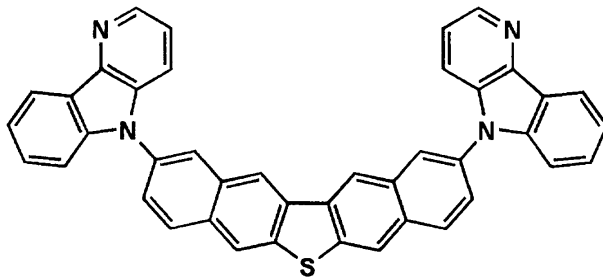
3-15



3-16

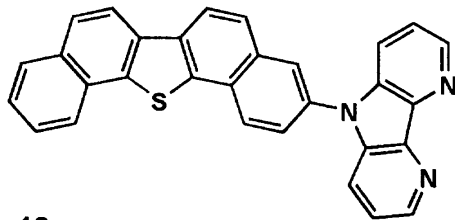


3-17



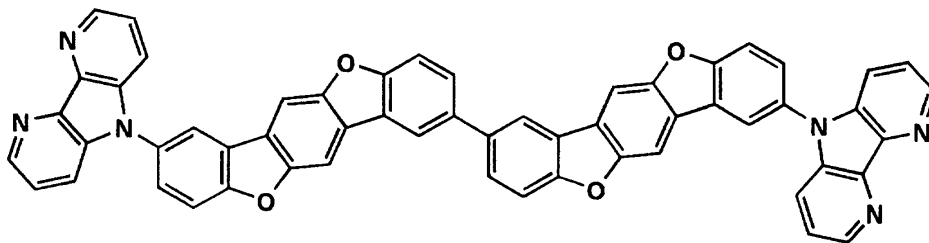
10

3-18



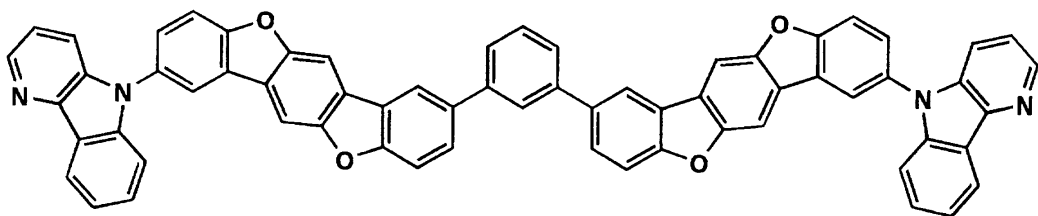
20

3-19



30

3-20



【0054】

本発明のカルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物は、具体的にはホスト化合物、正孔輸送材料、電子輸送材料として用いられる。

40

【0055】

《有機EL素子の構成層》

本発明の有機EL素子の構成層について説明する。本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

【0056】

- (i) 陽極 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (ii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極
- (iii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極

50



(iv) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 / 陰極  
 (v) 陽極 / 陽極バッファ層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極  
 バッファ層 / 陰極

## 【0057】

本発明の有機EL素子においては、青色発光層の発光極大波長は430～480nmにあるものが好ましく、緑色発光層は発光極大波長が510～550nm、赤色発光層は発光極大波長が600～640nmの範囲にある単色発光層であることが好ましく、これらを用いた表示装置であることが好ましい。また、これらの少なくとも3層の発光層を積層して白色発光層としたものであってもよい。更に発光層間には非発光性中間層を有していてもよい。本発明の有機EL素子としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

10

## 【0058】

本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

## 【0059】

## 《発光層》

本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

## 【0060】

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、且つ駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2nm～5μmの範囲に調整することが好ましく、更に好ましくは2～200nmの範囲に調整され、特に好ましくは10～20nmの範囲である。

20

## 【0061】

本発明の有機EL素子の発光層には、発光ドーパント(リン光ドーパント(リン光発光性ドーパント基とも言う)や蛍光ドーパント等)化合物と、発光ホスト化合物を含有する。

## 【0062】

(発光性ドーパント化合物)

発光性ドーパント化合物について説明する。

30

## 【0063】

発光性ドーパント化合物としては、蛍光ドーパント化合物(蛍光性化合物とも言う)、リン光ドーパント化合物(リン光発光体、リン光性化合物、リン光発光性化合物等とも言う)を用いることができる。

## 【0064】

(リン光ドーパント化合物)

本発明に係るリン光ドーパント化合物について説明する。

## 【0065】

本発明に係るリン光ドーパント化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、具体的には室温(25℃)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物であると定義されるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

40

## 【0066】

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に係るリン光ドーパント化合物は、任意の溶媒のいずれかにおいて上記リン光量子収率(0.01以上)が達成されればよい。

## 【0067】

リン光ドーパント化合物の発光は原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こって発光性ホスト化合物の励起状態が生成

50

し、このエネルギーをリン光ドープメントに移動させることでリン光ドープメントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光ドープメント化合物がキャリアトラップとなり、リン光ドープメント上でキャリアの再結合が起こりリン光ドープメント化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光ドープメント化合物の励起状態のエネルギーは、ホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

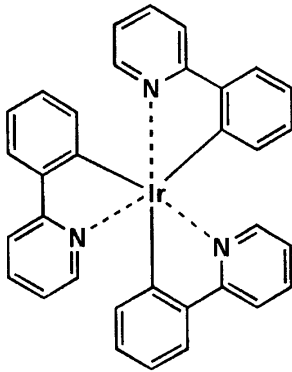
【0068】

以下に、リン光ドープメントとして用いられる公知の化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。これらの化合物は、例えば、*Inorg. Chem.* 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。

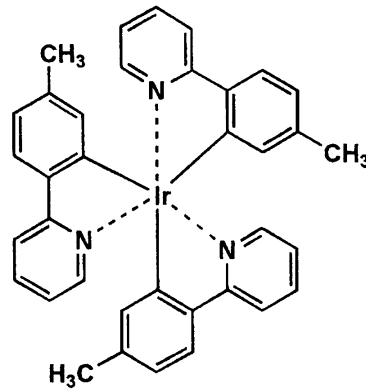
【0069】

【化14】

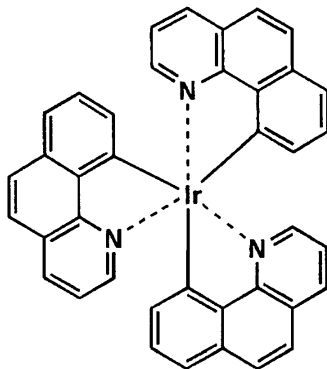
Ir-1



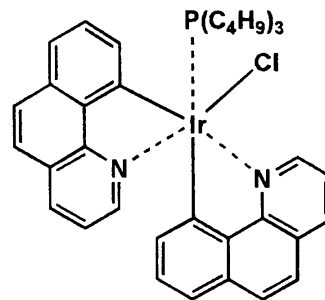
Ir-2



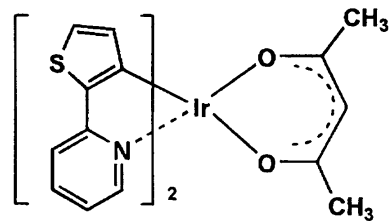
Ir-3



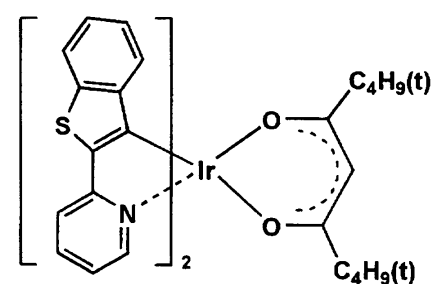
Ir-4



Ir-5



Ir-6



【0070】

10

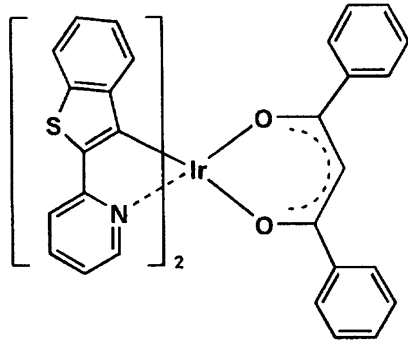
20

30

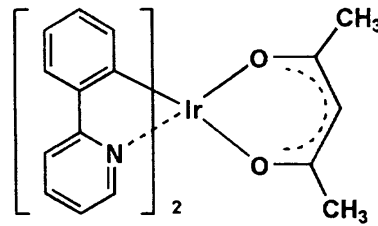
40

【化 1 5】

Ir-7

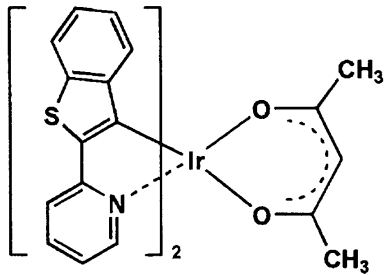


Ir-8

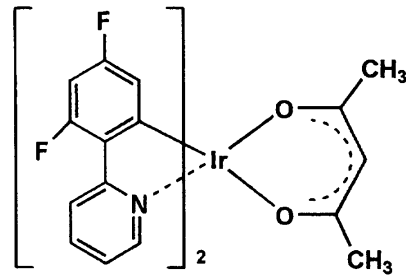


10

Ir-9

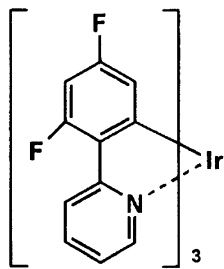


Ir-10

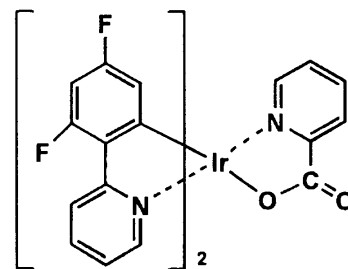


20

Ir-11

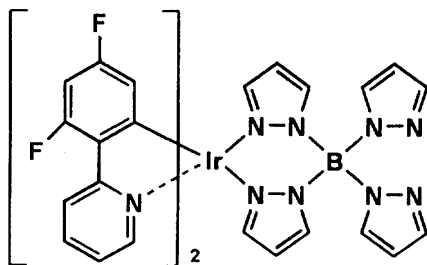


Ir-12

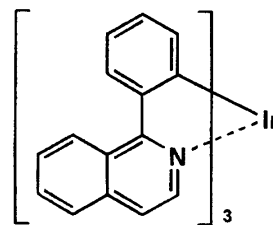


30

Ir-13



Ir-14

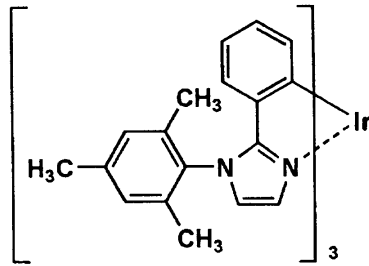


40

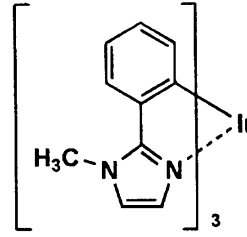
【 0 0 7 1 】

## 【化 16】

Ir-15



Ir-16



10

## 【0072】

(蛍光ドーパント(蛍光性化合物とも言う))

蛍光ドーパント化合物(蛍光性化合物)としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

## 【0073】

(発光ホスト化合物(発光ホスト等とも言う))

本発明の有機EL素子の発光層や発光ユニットに使用される発光ホスト化合物としては、本発明のカルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物を発光ホスト化合物として含有する。

20

## 【0074】

本発明においてホスト化合物は、発光層に含有される化合物の中でその層中での質量比が20%以上であり、且つ室温(25 )においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物と定義される。好ましくはリン光量子収率が0.01未満である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。

## 【0075】

ホスト化合物としては、上記のホスト化合物を単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、前記リン光ドーパントとして用いられる公知の化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

30

## 【0076】

また、本発明においては、カルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物から選ばれるもの以外にも、有機EL素子の発光層に使用される公知の発光ホスト化合物を併用することができる。

## 【0077】

公知の発光ホスト化合物としては、代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、または、カルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体(ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも1つの炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。)等が挙げられる。

40

## 【0078】

併用してもよい公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ発光の長波長化を防ぎ、なお且つ高Tg(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

## 【0079】

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙げられ

50

る。

【0080】

特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-338579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-302516号公報、同2002-305083号公報、同2002-305084号公報、同2002-308837号公報等。

10

【0081】

次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、電子輸送層等について説明する。

【0082】

《注入層：電子注入層、正孔注入層》

20

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記の如く陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

【0083】

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

【0084】

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

30

【0085】

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1nm～5μmの範囲が好ましい。

40

【0086】

《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

阻止層は、上記の如く有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

【0087】

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止

50

することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する電子輸送層の構成を必要に応じて、本発明に係わる正孔阻止層として用いることができる。

【0088】

本発明の有機EL素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられていることが好ましい。

【0089】

正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げたカルバゾール誘導体、またカルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体を含むことが好ましい。

【0090】

また、本発明においては、複数の発光色の異なる複数の発光層を有する場合、その発光極大波長が最も短波にある発光層が、全発光層中、最も陽極に近いことが好ましいが、このような場合、該最短波層と該層の次に陽極に近い発光層との間に正孔阻止層を追加して設けることが好ましい。更には、該位置に設けられる正孔阻止層に含まれる化合物の50質量%以上が、前記最短波発光層のホスト化合物に対しそのイオン化ポテンシャルが0.3 eV以上大きいことが好ましい。

10

【0091】

イオン化ポテンシャルは化合物のHOMO（最高被占分子軌道）レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、例えば、下記に示すような方法により求めることができる。

【0092】

(1) 米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian 98 (Gaussian 98, Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.) を用い、キーワードとしてB3LYP/6-31G\*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値(eV単位換算値)の小数点第2位を四捨五入した値としてイオン化ポテンシャルを求めることができる。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

20

【0093】

(2) イオン化ポテンシャルは光電子分光法で直接測定する方法により求めることもできる。例えば、理研計器製の低エネルギー電子分光装置「Model AC-1」を用いて、あるいは紫外光電子分光として知られている方法を好適に用いることができる。

30

【0094】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては、好ましくは3~100nmであり、更に好ましくは5~30nmである。

【0095】

《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

40

【0096】

正孔輸送材料としては、本発明のカルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物を用いることが好ましい。

【0097】

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサ

50

ジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

【0098】

正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第3級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0099】

芳香族第3級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N, N - テトラフェニル - 4, 4 - ジアミノフェニル; 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(TPD); 2, 2 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N, N - テトラ - p - トリル - 4, 4 - ジアミノビフェニル; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン; ビス(4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N - ジフェニル - N, N - ジ(4 - メトキシフェニル) - 4, 4 - ジアミノビフェニル; N, N, N, N - テトラフェニル - 4, 4 - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4 - ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N - トリ(p - トリル)アミン; 4 - (ジ - p - トリルアミノ) - 4 - [4 - (ジ - p - トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル)ベンゼン; 3 - メトキシ - 4 - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン; N - フェニルカルバゾール、更には米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、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(NPD)、特開平4 - 308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された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(MTDATA)等が挙げられる。

【0100】

更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型 - Si、p型 - SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

【0101】

また、特開平11 - 251067号公報、J. Huang et al. 著文献(Applied Physics Letters 80(2002), p. 139)に記載されているような、所謂p型正孔輸送材料を用いることもできる。本発明においては、より高効率の発光素子が得られることからこれらの材料を用いることが好ましい。

【0102】

正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm ~ 5µm程度、好ましくは5 ~ 200nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0103】

また、不純物をドーブしたp性の高い正孔輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4 - 297076号公報、特開2000 - 196140号公報、同2001 - 102175号公報の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

10

20

30

40

50

## 【0104】

本発明においては、このようなp性の高い正孔輸送層を用いることが、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

## 【0105】

## 《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

## 【0106】

電子輸送材料としては、本発明のカルコゲン原子を含む芳香族複素環を構成要素の一つとする5個の芳香族環が縮合した縮合環を部分構造として持つ化合物を用いることが好ましい。

10

## 【0107】

従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。更に上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

20

## 【0108】

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

30

## 【0109】

電子輸送層は上記電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。電子輸送層は上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

40

## 【0110】

また、不純物をドーブしたn性の高い電子輸送層を用いることもできる。その例としては、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

## 【0111】

本発明においては、このようなn性の高い電子輸送層を用いることが、より低消費電力の素子を作製することができるため好ましい。

## 【0112】

50



## 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキsid (ITO)、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 $\text{In}_2\text{O}_3$ - $\text{ZnO}$  (IDIXO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。

## 【0113】

陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100  $\mu\text{m}$ 以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常は、10 ~ 1000 nmの範囲であり、好ましくは10 ~ 200 nmの範囲で選ばれる。

## 【0114】

## 《陰極》

一方、陰極としては仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

## 【0115】

陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm ~ 5  $\mu\text{m}$ 、好ましくは50 ~ 200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

## 【0116】

また、陰極に上記金属を1 ~ 20 nmの膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

## 【0117】

## 《支持基板》

本発明の有機EL素子に用いることのできる支持基板(以下、基体、基板、基材、支持体等とも言う)としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また透明であっても不透明であってもよい。支持基板側から光を取り出す場合には、支持基板は透明であることが好ましい。好ましく用いられる透明な支持基板としては、ガラス、石英、透明樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい支持基板は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

## 【0118】

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファ

10

20

30

40

50

ン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニルスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アトロン（JSR製）あるいはアベル（三井化学製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

10

## 【0119】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ $2.5 \pm 0.5$ 、相対湿度（ $90 \pm 2$ ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が $10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましく、前記の水蒸気透過度が $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下であることが更に好ましい。

## 【0120】

バリア膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることがより好ましい。無機層と有機層の積層順については特に制限はないが、両者を交互に複数回積層させることが好ましい。

20

## 【0121】

バリア膜の形成方法については特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができるが、特開2004-68143号公報に記載されているような大気圧プラズマ重合法によるものが特に好ましい。

30

## 【0122】

不透明な支持基板としては、例えば、アルミ、ステンレス等の金属板、フィルムや不透明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

## 【0123】

本発明の有機EL素子の発光の室温における外部取り出し量子効率、1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率（%）=有機EL素子外部に発光した光子数/有機EL素子に流した電子数 $\times 100$ である。

## 【0124】

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光のmaxは480nm以下が好ましい。

40

## 【0125】

## 《封止》

本発明に用いられる封止手段としては、例えば、封止部材と電極、支持基板とを接着剤で接着する方法を挙げることができる。

## 【0126】

封止部材としては、有機EL素子の表示領域を覆うように配置されておればよく、凹板

50

状でも平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性は特に問わない。

【0127】

具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリアーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブテン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

10

【0128】

本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。更には、ポリマーフィルムは、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された水蒸気透過度 $(2.5 \pm 0.5)$ 、相対湿度 $(90 \pm 2) \% \text{ RH}$ が $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

【0129】

封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。

20

【0130】

接着剤として具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化及び熱硬化型接着剤、2 - シアノアクリル酸エステル等の湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系等の熱及び化学硬化型(二液混合)を挙げることができる。また、ホットメルト型のポリアミド、ポリエステル、ポリオレフィンを挙げることができる。また、カチオン硬化タイプの紫外線硬化型エポキシ樹脂接着剤を挙げることができる。

【0131】

なお、有機EL素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から80℃までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

30

【0132】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスター・イオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

40

【0133】

封止部材と有機EL素子の表示領域との間隙には、気相及び液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体やフッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また真空とすることも可能である。また、内部に吸湿性化合物を封入することもできる。

【0134】

吸湿性化合物としては、例えば、金属酸化物(例えば、酸化ナトリウム、酸化カリウム

50

、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム等）、硫酸塩（例えば、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸コバルト等）、金属ハロゲン化物（例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、フッ化セシウム、フッ化タンタル、臭化セリウム、臭化マグネシウム、沃化バリウム、沃化マグネシウム等）、過塩素酸類（例えば、過塩素酸バリウム、過塩素酸マグネシウム等）等が挙げられ、硫酸塩、金属ハロゲン化物、及び過塩素酸類においては、無水塩が好適に用いられる。

【0135】

《保護膜、保護板》

有機層を挟み支持基板と対向する側の前記封止膜、あるいは前記封止用フィルムの外側に、素子の機械的強度を高めるために保護膜、あるいは保護板を設けてもよい。特に封止が前記封止膜により行われている場合には、その機械的強度は必ずしも高くないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、前記封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量、且つ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

10

【0136】

《光取り出し》

有機EL素子は空気よりも屈折率の高い（屈折率が1.7～2.1程度）層の内部で発光し、発光層で発生した光のうち15%から20%程度の光しか取り出せないことが一般的に言われている。これは、臨界角以上の角度で界面（透明基板と空気との界面）に入射する光は、全反射を起こし素子外部に取り出すことができないうことや、透明電極ないし発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極ないし発光層を導波し、結果として光が素子側面方向に逃げるためである。

20

【0137】

この光の取り出しの効率を向上させる手法としては、例えば、透明基板表面に凹凸を形成し、透明基板と空気界面での全反射を防ぐ方法（米国特許第4,774,435号明細書）、基板に集光性を持たせることにより効率を向上させる方法（特開昭63-314795号公報）、素子の側面等に反射面を形成する方法（特開平1-220394号公報）、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法（特開昭62-172691号公報）、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法（特開2001-202827号公報）、基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法（特開平11-283751号公報）等がある。

30

【0138】

本発明においては、これらの方法を本発明の有機EL素子と組み合わせて用いることができるが、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法、あるいは基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法を好適に用いることができる。本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、更に高輝度あるいは耐久性に優れた素子を得ることができる。

【0139】

透明電極と透明基板の間に低屈折率の媒質を光の波長よりも長い厚みで形成すると、透明電極から出てきた光は、媒質の屈折率が低いほど外部への取り出し効率が高くなる。

40

【0140】

低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5～1.7程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。また、更に1.35以下であることが好ましい。

【0141】

また、低屈折率媒質の厚みは媒質中の波長の2倍以上となるのが望ましい。これは低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に

50

入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

【0142】

全反射を起こす界面もしくはいずれかの媒質中に回折格子を導入する方法は、光取り出し効率の向上効果が高いという特徴がある。この方法は回折格子が1次の回折や2次の回折といった、所謂ブラッグ回折により、光の向きを屈折とは異なる特定の向きに変えることができる性質を利用して、発光層から発生した光のうち層間での全反射等により外に出ることができない光を、いずれかの層間もしくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回折格子を導入することで光を回折させ、光を外に取り出そうとするものである。

【0143】

導入する回折格子は、二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な1次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

【0144】

回折格子を導入する位置としては前述の通り、いずれかの層間もしくは媒質中（透明基板内や透明電極内）でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。

【0145】

このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度が好ましい。

【0146】

回折格子の配列は正方形のラチス状、三角形のラチス状、八ニカムラチス状等、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

【0147】

《集光シート》

本発明の有機EL素子は基板の光取り出し側に、例えば、マイクロレンズアレイ状の構造を設けるように加工したり、あるいは所謂集光シートと組み合わせることにより、特定方向、例えば、素子発光面に対し正面方向に集光することにより、特定方向上の輝度を高めることができる。

【0148】

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が $30 \mu\text{m}$ でその頂角が $90$ 度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は $10 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚みが厚くなり好ましくない。

【0149】

集光シートとしては、例えば、液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角 $90$ 度、ピッチ $50 \mu\text{m}$ の状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

【0150】

また、発光素子からの光放射角を制御するために、光拡散板・フィルムを集光シートと併用してもよい。例えば、（株）きもと製拡散フィルム（ライトアップ）等を用いることができる。

【0151】

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなる有機EL素子の作製法を説明する。

【0152】

まず適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を $1 \mu\text{m}$ 以下、

10

20

30

40

50

好ましくは10～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ陽極を作製する。

【0153】

次に、この上に有機EL素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層の有機化合物薄膜を形成させる。

【0154】

これら各層の形成方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス（スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法）等があるが、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、本発明においてはウェットプロセスが好ましく、中でもスピンコート法、インクジェット法、印刷法等の塗布法による成膜が好ましい。

10

【0155】

本発明の有機EL素子材料を溶解または分散する液媒体としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができる。また、分散方法としては、超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

【0156】

これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1μm以下、好ましくは50～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより所望の有機EL素子が得られる。

20

【0157】

また、作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には陽極を+、陰極を-の極性として電圧2～40V程度を印加すると発光が観測できる。また、交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0158】

《用途》

本発明の有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、照明装置（家庭用照明、車内照明）、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではないが、特に液晶表示装置のバックライト、照明用光源としての用途に有効に用いることができる。

30

【0159】

本発明の有機EL素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターンニングを施してもよい。パターンニングする場合は、電極のみをパターンニングしてもよいし、電極と発光層をパターンニングしてもよいし、素子全層をパターンニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

【0160】

本発明の有機EL素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

40

【0161】

また、本発明の有機EL素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、1000cd/m<sup>2</sup>でのCIE1931表色系における色度がX=0.33±0.07、Y=0.33±0.1の領域内にあることを言う。

【実施例】

【0162】

50

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらに限定されない。なお、実施例において「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「質量%」を表す。

【0163】

実施例 1

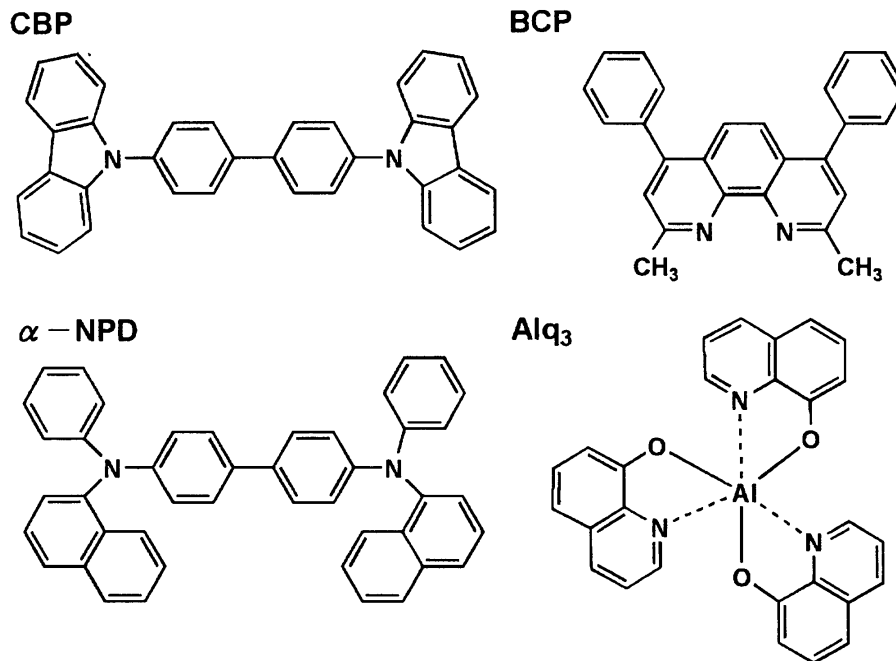
《有機EL素子1-1の作製》

陽極としてガラス上にITOを150nm成膜した基板(NHテクノグラス製:NA-45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をisoproピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方5つのタンタル製抵抗加熱ポートにα-NPD、CBP、Ir-12、BCP、Alq<sub>3</sub>をそれぞれ入れ、真空蒸着装置(第1真空槽)に取り付けた。

10

【0164】

【化17】



20

30

【0165】

更に、タンタル製抵抗加熱ポートにフッ化リチウムを、タングステン製抵抗加熱ポートにアルミニウムをそれぞれ入れ、真空蒸着装置の第2真空槽に取り付けた。

【0166】

まず、第1の真空槽を $4 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、α-NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.2nm/秒で透明支持基板に膜厚20nmの厚さになるように蒸着し、正孔注入/輸送層を設けた。

【0167】

更に、CBPの入った前記加熱ポートとIr-12の入ったポートをそれぞれ独立に通電して、発光ホストであるCBPと発光ドーパントであるIr-12の蒸着速度が100:6になるように調節し、膜厚30nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。

40

【0168】

次いで、BCPの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.2nm/秒で厚さ10nmの第1の電子輸送層を設けた。更にAlq<sub>3</sub>の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1~0.2nm/秒で膜厚20nmの第2の電子輸送層を設けた。

【0169】

次に、第2の電子輸送層まで成膜した素子を真空のまま第2真空槽に移した後、電子輸送層の上にステンレス鋼製の長方形穴あきマスクが配置されるように装置外部からリモー

50

トコントロールして設置した。

【0170】

第2真空槽を $2 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した後、フッ化リチウム入りのポートに通電して蒸着速度 $0.01 \sim 0.02$  nm/秒で膜厚 $0.5$  nmの陰極パフアー層を設け、次いでアルミニウムの入ったポートに通電して、蒸着速度 $1 \sim 2$  nm/秒で膜厚 $150$  nmの陰極をつけ、有機EL素子1-1を作製した。

【0171】

《有機EL素子1-2～1-6の作製》

有機EL素子1-1の作製において、表1に記載のように発光ホストを変更した以外は同様にして、有機EL素子1-2～1-6を作製した。

10

【0172】

《有機EL素子の評価》

得られた有機EL素子1-2～1-6を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み $300$   $\mu$ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止して、図3、図4に示すような照明装置を形成して評価した。

【0173】

図3は照明装置の概略図を示し、有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度 $99.999\%$ 以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った）。図4は照明装置の断面図を示し、図4において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

20

【0174】

（外部取り出し量子効率）

有機EL素子を室温（約 $23 \sim 25$  ）、 $2.5$  mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度（L）[cd/m<sup>2</sup>]を測定することにより、外部取り出し量子効率（ ）を算出した。ここで、発光輝度の測定はCS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。外部取り出し量子効率は有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

30

【0175】

（発光寿命）

有機EL素子を室温下、 $2.5$  mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による連続点灯を行い、初期輝度の半分の輝度になるのに要する時間（ $t_{1/2}$ ）を測定した。発光寿命は有機EL素子1-1を100と設定する相対値で表した。

【0176】

（発光色）

有機EL素子を室温下、 $2.5$  mA/cm<sup>2</sup>の定電流条件下による連続点灯を行った際の発光色を目視で評価した。

40

【0177】

得られた結果を表1に示す。

【0178】



【表 1】

有機EL素子No.	発光ホスト	外部取り出し量子効率	発光寿命	備考
1-1	CBP	100	100	比較例
1-2	1-1	123	332	参考例
1-3	1-2	132	232	参考例
1-4	1-7	103	302	参考例
1-5	1-13	111	222	参考例
1-6	1-16	105	206	参考例

10

【0179】

表1から、参考例の有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光寿命の長寿命化が達成できることが明らかである。

【0180】

実施例2

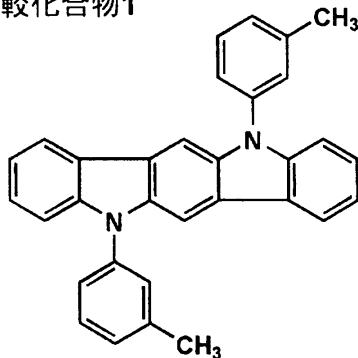
実施例1の有機EL素子1-1の作製において、表2に記載のように $\alpha$ -NPDを変更した以外は同様にして、有機EL素子2-1~2-6を作製した。実施例1と同様の評価を行って得られた結果を表2に示す。

【0181】

20

【化18】

比較化合物1



30

(特開平11-176578号記載の化合物)

【0182】

【表 2】

有機EL素子No.	正孔輸送材料	発光寿命	備考
1-1	$\alpha$ -NPD	100	比較例
2-1	2-1	180	参考例
2-2	2-14	260	参考例
2-3	2-15	252	参考例
2-4	2-17	196	本発明
2-5	2-18	302	参考例
2-6	比較化合物1	108	比較例

40

【0183】

表2から、本発明の有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光寿命の長寿命化が達成できることが明らかである。

【0184】

50

## 実施例 3

実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 1 の作製において、表 3 に記載のように B C P を変更した以外は同様にして、有機 EL 素子 3 - 1 ~ 3 - 5 を作製した。実施例 1 と同様の評価を行って得られた結果を表 3 に示す。

【 0 1 8 5 】

【表 3】

有機EL素子No.	電子輸送材料	発光寿命	備 考
1 - 1	B C P	100	比較例
3 - 1	3 - 1	230	参考例
3 - 2	3 - 4	269	参考例
3 - 3	3 - 8	350	参考例
3 - 4	3 - 9	322	参考例
3 - 5	3 - 17	182	参考例

10

【 0 1 8 6 】

表 3 から、参考例の有機 EL 素子は、比較例の有機 EL 素子に比べ、発光寿命の長寿命化が達成できることが明らかである。

【 0 1 8 7 】

20

## 実施例 4

《フルカラー表示装置の作製》

(青色発光素子の作製)

実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 2 を青色発光素子として用いた。

【 0 1 8 8 】

(緑色発光素子の作製)

実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 1 において、I r - 1 2 のみを I r - 1 に変更して緑色発光素子を作製し、これを緑色発光素子として用いた。

【 0 1 8 9 】

(赤色発光素子の作製)

実施例 1 の有機 EL 素子 1 - 1 において、I r - 1 2 のみを I r - 9 に変更して赤色発光素子を作製し、これを赤色発光素子として用いた。

30

【 0 1 9 0 】

上記で作製した赤色、緑色、青色発光有機 EL 素子を同一基板上に並置し、図 1 に記載のような形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製した。図 2 には、作製した前記表示装置の表示部 A の模式図のみを示した。即ち、同一基板上に複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と並置した複数の画素 3 (発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等)とを有し、配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 はそれぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している(詳細は図示せず)。前記複数画素 3 は、それぞれの発光色に対応した有機 EL 素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線 5 から走査信号が印加されるとデータ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このように赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置を作製した。

40

【 0 1 9 1 】

このフルカラー表示装置は駆動することにより、輝度が高く、高耐久性を有し、且つ鮮明なフルカラー動画表示が得られることが分かった。

【 0 1 9 2 】

## 実施例 5

50

## 《白色発光素子及び白色照明装置の作製 - 1》

実施例1の透明電極基板の電極を20mm×20mmにパターンニングし、その上に実施例1と同様に正孔注入/輸送層として-NPDを25nmの厚さで成膜し、更にCBPの入った前記加熱ポートとIr-12の入ったポート及びIr-9の入ったポートをそれぞれ独立に通電して、発光ホストであるCBPと発光ドーパントであるIr-12及びIr-9の蒸着速度が100:5:0.6になるように調節し、膜厚30nmの厚さになるように蒸着し、発光層を設けた。

## 【0193】

次いで、BCPを10nm成膜して第1電子輸送層を設けた。更に、Alq<sub>3</sub>を40nmで成膜し第2電子輸送層を設けた。

## 【0194】

次に、実施例1と同様に電子注入層の上にステンレス鋼製の透明電極とほぼ同じ形状の正方形穴あきマスクを設置し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nm及び陰極としてアルミニウム150nmを蒸着成膜した。

## 【0195】

この素子を実施例1と同様な方法及び同様な構造の封止缶を具備させ、図3、図4に示すような平面ランプを作製した。この平面ランプに通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが分かった。例示の他の化合物に置き換えても、同様に白色の発光が得られることが分かった。

## 【0196】

## 実施例6

## 《白色発光素子及び白色照明装置の作製 - 2》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキsid)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス製NA-45)にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

## 【0197】

この透明支持基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフエン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により製膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。

## 【0198】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、例示化合物1-13(60mg)、Ir-9(3.0mg)、Ir-12(3.0mg)をトルエン6mlに溶解した溶液を用い、1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。真空中150℃で1時間加熱を行い発光層とした。

## 【0199】

更に、例示化合物3-1(20mg)をブタノール6mlに溶解した溶液を用い、1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。真空中80℃で1時間加熱を行い第1電子輸送層とした。

## 【0200】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、モリブデン製抵抗加熱ポートにAlq<sub>3</sub>を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。真空槽を4×10<sup>-4</sup>Paまで減圧した後、Alq<sub>3</sub>の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で前記第1電子輸送層の上に蒸着して、更に膜厚40nmの第2電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

## 【0201】

引き続き、フッ化リチウム0.5nm及びアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、白色発光有機EL素子を作製した。

## 【0202】

10

20

30

40

50

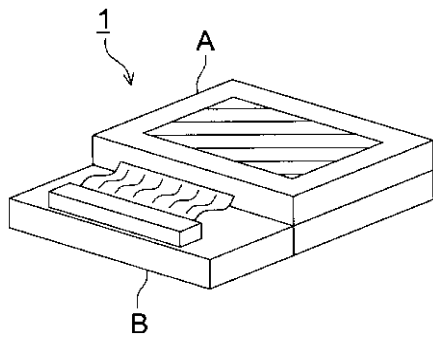
この素子に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることが分かった。

【符号の説明】

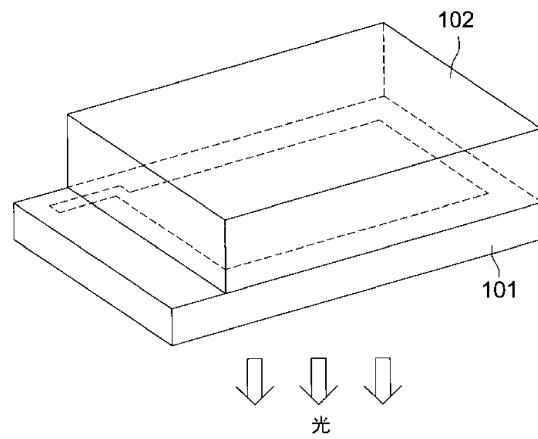
【0203】

- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- A 表示部
- B 制御部
- 107 透明電極付きガラス基板
- 106 有機EL層
- 105 陰極
- 102 ガラスカバー
- 108 窒素ガス
- 109 捕水剤

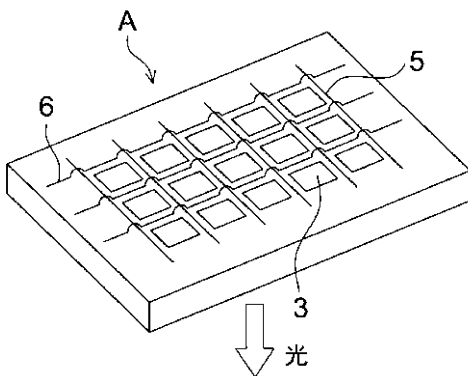
【図1】



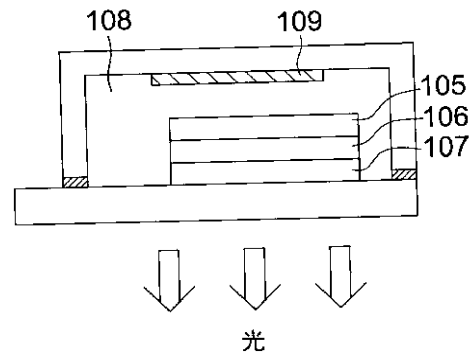
【図3】



【図2】



【図4】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
G 0 9 F 9/30 3 6 5

(56)参考文献 国際公開第2006/122630(WO,A1)  
国際公開第2009/148016(WO,A1)  
特表2008-545630(JP,A)  
特開平11-162650(JP,A)  
国際公開第2007/063754(WO,A1)  
特開2006-013469(JP,A)  
特開2006-013482(JP,A)  
特開2007-182401(JP,A)  
特開2010-045281(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0  
C 0 9 K 1 1 / 0 6  
G 0 9 F 9 / 3 0  
H 0 1 L 2 7 / 3 2  
H 0 5 B 3 3 / 1 0  
CAplus/REGISTRY(STN)