

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5492872号  
(P5492872)

(45) 発行日 平成26年5月14日(2014.5.14)

(24) 登録日 平成26年3月7日(2014.3.7)

(51) Int.Cl.	F I
<b>H01L 51/50</b> (2006.01)	H05B 33/22 D
<b>C07C 211/54</b> (2006.01)	H05B 33/14 B
<b>C07C 211/58</b> (2006.01)	C07C 211/54
	C07C 211/58
	H05B 33/22 B

請求項の数 36 (全 87 頁)

(21) 出願番号	特願2011-507256 (P2011-507256)	(73) 特許権者	000183646
(86) (22) 出願日	平成22年3月31日(2010.3.31)		出光興産株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2010/055844		東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(87) 国際公開番号	W02010/114017	(74) 代理人	100078732
(87) 国際公開日	平成22年10月7日(2010.10.7)		弁理士 大谷 保
審査請求日	平成25年1月29日(2013.1.29)	(74) 代理人	100081765
(31) 優先権主張番号	特願2009-89468 (P2009-89468)		弁理士 東平 正道
(32) 優先日	平成21年4月1日(2009.4.1)	(72) 発明者	藪ノ内 伸浩
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	荒金 崇士
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	西村 和樹
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者	細川 地潮
			千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

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

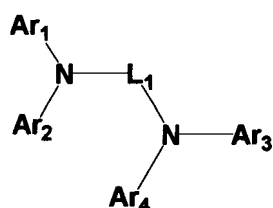
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機薄膜層は、ホスト材料と発光材料とを含有する発光層と、前記発光層よりも前記陽極側に設けられた正孔輸送層と、を有し、前記正孔輸送層は、前記陽極から順に、第1正孔輸送層および第2正孔輸送層を有し、前記第1正孔輸送層は下記一般式(1)で表される化合物を含有し、前記第2正孔輸送層は下記一般式(2)で表される化合物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。

【化1】

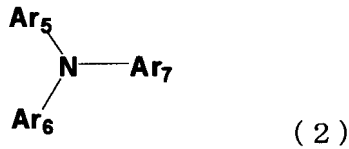


(1)

(式中、 $L_1$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10~40のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は環形成原子数6~60のヘテロアリール基を表す。

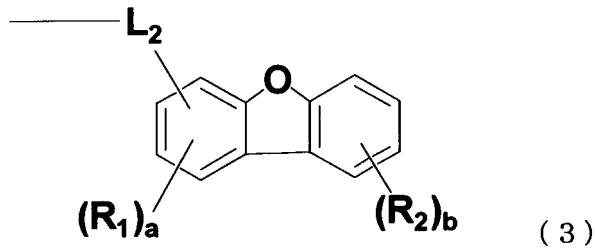
一般式(1)で表される化合物はL<sub>1</sub>に対して非対称である。

【化2】



(式中、Ar<sub>5</sub>~Ar<sub>7</sub>中、少なくとも1つは下記一般式(3)で表される基であり、Ar<sub>5</sub>~Ar<sub>7</sub>中、一般式(3)でない基は下記一般式(4)又は(5)で表される基、あるいは置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である。)

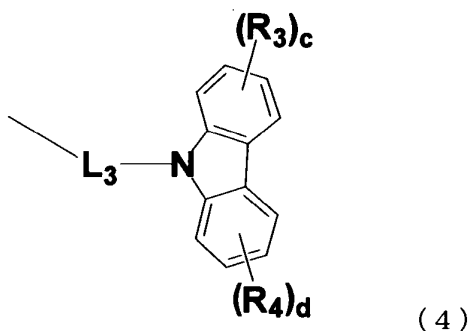
【化3】



(式中、L<sub>2</sub>は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーレン基を表し、L<sub>2</sub>が有してもよい置換基は、炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、炭素数3~10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、環形成炭素数6~14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~16のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数のR<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。a及びbは、それぞれ独立に、0~4の整数を表す。)

【化4】



(式中、L<sub>3</sub>は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーレン基を表し、L<sub>3</sub>が有してもよい置換基は、炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、炭素数3~10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、炭素数8~15のアルキルアリ

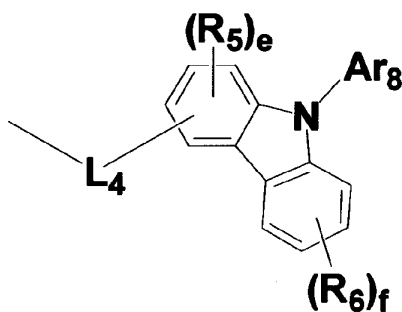
ールシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～14のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

cおよびdは、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。

$R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリアルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は6～14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の $R_3$ 及び $R_4$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。）

10

【化5】



(5)

20

（式中、 $L_4$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $L_4$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリアルシリル基、炭素数8～15のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～14のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$Ar_8$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリアル基を表し、 $Ar_8$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリアルシリル基、炭素数8～15のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～14のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

30

eは、0～3の整数を表し、fは、0～4の整数を表す。

$R_5$ 及び $R_6$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリアルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は6～14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の $R_5$ 及び $R_6$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。）

40

【請求項2】

前記一般式(1)において、 $L_1$ がピフェニルジイル基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

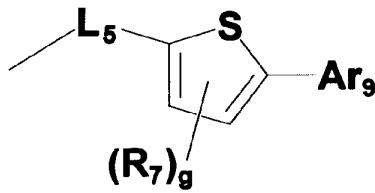
【請求項3】

前記一般式(1)の $Ar_1$ ～ $Ar_4$ が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のピフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、又は下記一般式(6)で表される請求項1又は2

50

に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 6】



(6)

(式中、 $L_5$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $L_5$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

10

$Ar_9$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基を表し、 $Ar_9$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

20

$g$ は、1又は2を表す。

$R_7$ は、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。複数の $R_7$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。

30

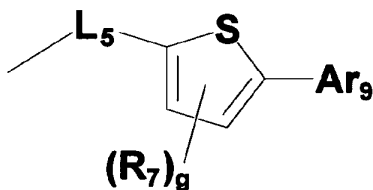
【請求項4】

前記一般式(1)の $Ar_1 \sim Ar_4$ が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のビフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、又は置換もしくは無置換のフェナントリル基である請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】

前記一般式(1)の $Ar_1 \sim Ar_4$ のうち少なくとも1つが下記一般式(6)で表される請求項1～4のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 7】



(6)

40

(式中、 $L_5$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $L_5$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲ

50

ン原子又はシアノ基である。

$Ar_g$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基を表し、 $Ar_g$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は6～14）、環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$g$ は、1又は2を表す。

$R_7$ は、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は6～14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。複数の $R_7$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。）

10

【請求項6】

前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(4)又は(5)で表される基である請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】

前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(4)で表される基である請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

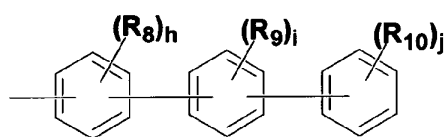
【請求項8】

前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(5)で表される基である請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】

前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが下記一般式(7)で表される請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化8】



(7)

30

(式中、 $R_8 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は6～14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～16のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R_8 \sim R_{10}$ は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。 $h$ 、 $i$ 及び $j$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。)

40

【請求項10】

前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも2つが前記一般式(3)で表され、 $Ar_5 \sim Ar_7$ のうち2つが一般式(3)で表される場合、2つの一般式(3)で表される基が同一ではなく、また、 $Ar_5 \sim Ar_7$ の3つが一般式(3)で表される基である場合、3つの一般式(3)で表される基が同一ではない請求項1～9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】

前記一般式(2)において、 $Ar_5$ が前記一般式(3)で表される請求項1～10のい

50

ずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 2】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ 及び $Ar_7$ が置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 3】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$ が置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 4】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ 及び $Ar_7$ が前記一般式(4)で表される請求項11 10  
に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 5】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$ が前記一般式(4)で表される請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 6】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ 及び $Ar_7$ が前記一般式(5)で表される請求項11  
に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 7】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$ が前記一般式(5) 20  
で表される請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 8】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ 及び $Ar_7$ が前記一般式(7)で表される請求項11  
に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 9】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$ が前記一般式(7) 30  
で表される請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 0】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$ が前記一般式(5) 30  
で表される請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 1】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$ が前記一般式(7) 30  
で表される請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 2】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$ が置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 3】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(5)で表され、 $Ar_7$ が置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。 40

【請求項 2 4】

前記一般式(2)において、 $Ar_6$ が前記一般式(7)で表され、 $Ar_7$ が置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である請求項11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

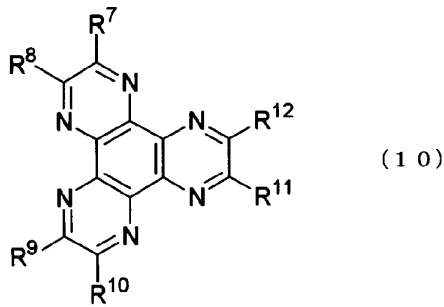
【請求項 2 5】

前記正孔輸送層が、第1正孔輸送層のさらに陽極側に、電子受容性化合物を含有する層を有する請求項1~24のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2 6】

前記電子受容性化合物が、下記一般式(10)で表される請求項25に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。 50

## 【化 9】



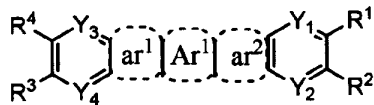
10

[上記一般式(10)中、 $R^7 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシル基、もしくは $-\text{COOR}^{13}$ ( $R^{13}$ は、炭素数1~20のアルキル基である。)を表すか、又は、 $R^7$ 及び $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ 、もしくは $R^{11}$ 及び $R^{12}$ が、互いに結合して $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を表す。]

## 【請求項 27】

前記電子受容性化合物が、下記一般式(11)で表される請求項25に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

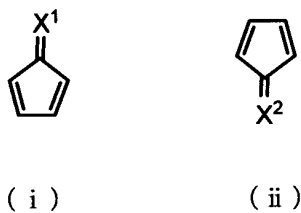
## 【化 10】



20

[上記一般式(11)中、 $\text{Ar}^1$ は、環形成炭素数6~24の縮合環、又は環形成原子数6~24の複素環である。 $\text{ar}^1$ 及び $\text{ar}^2$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、下記式(i)もしくは(ii)である。

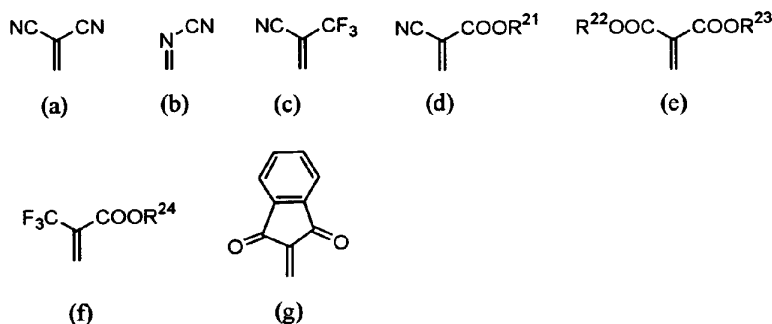
## 【化 11】



30

{式中、 $X^1$ 及び $X^2$ は互いに同一でも異なっていてもよく、下記式(a)~(g)で表わされる二価の基のいずれかである。

## 【化 12】



40

(式中、 $R^{21} \sim R^{24}$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1~20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~

50

20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基であり、 $R^{22}$ と $R^{23}$ は互いに結合して環を形成してもよい。) }

一般式(11)中の $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ互いに同一でも異なってもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。 $R^1 \sim R^4$ のうち互いに隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。 $Y^1 \sim Y^4$ は互いに同一でも異なってもよく、 $-N=$ 、 $-CH=$ 、又は $C(R^5)=$ であり、 $R^5$ は、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。]

10

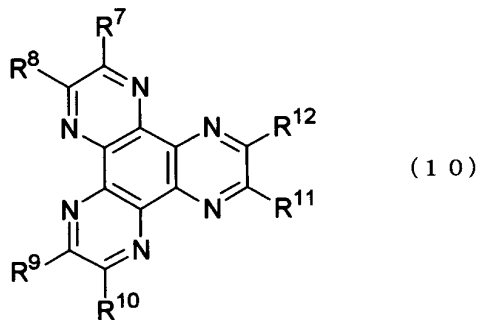
【請求項28】

陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

20

前記有機薄膜層は、ホスト材料と発光材料とを含有する発光層と、前記発光層よりも前記陽極側に設けられた正孔輸送層と、を有し、前記正孔輸送層は、前記陽極から順に、電子受容性化合物を含有する層及び第1正孔輸送層を有し、前記電子受容性化合物が下記一般式(10)で表され、前記第1正孔輸送層は下記一般式(2)で表される化合物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。

【化13】

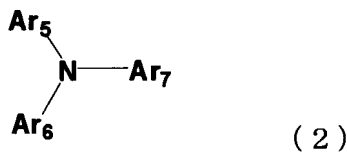


30

[上記一般式(10)中、 $R^7 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立にシアノ基、 $-CONH_2$ 、カルボキシル基、もしくは $-COOR^{13}$ ( $R^{13}$ は、炭素数1～20のアルキル基である。)を表すか、又は、 $R^7$ 及び $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ 、もしくは $R^{11}$ 及び $R^{12}$ が、互いに結合して $-CO-O-CO-$ で示される基を表す。]

40

【化14】



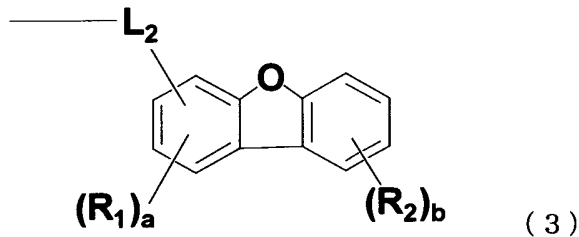
(式中、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つは下記一般式(3)で表される基であり、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、一般式(3)でない基は下記一般式(4)又は(5)で表される基、あるいは置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基であり、該アリール基が有してもよ

50



い置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基又はハロゲン原子である。）

【化 15】



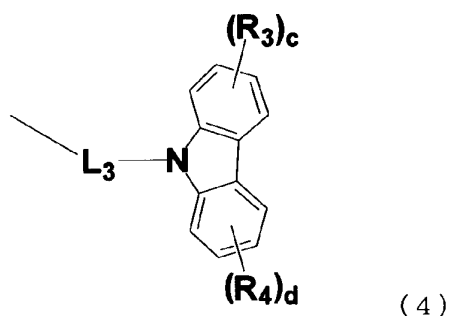
10

（式中、 $L_2$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_2$ が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

20

$R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 16 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R_1$ 及び $R_2$ は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。 $a$ 及び $b$ は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数を表す。）

【化 16】



30

（式中、 $L_3$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_3$ が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

40

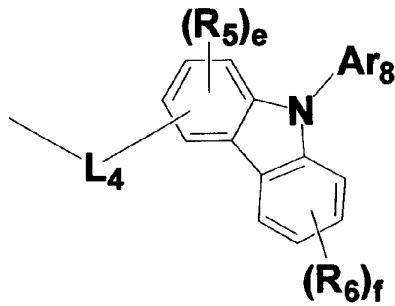
$c$ および $d$ は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数を表す。

$R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、置換もしくは

50

無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の  $R_3$  及び  $R_4$  は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。)

【化 17】



(5)

(式中、 $L_4$  は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_4$  が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$Ar_8$  は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基を表し、 $Ar_8$  が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$e$  は、0 ~ 3 の整数を表し、 $f$  は、0 ~ 4 の整数を表す。

$R_5$  及び  $R_6$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の  $R_5$  及び  $R_6$  は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。)

【請求項 29】

前記一般式 (2) において、 $Ar_5 \sim Ar_7$  中、少なくとも 1 つは前記一般式 (3) で表される基であり、 $Ar_5 \sim Ar_7$  中、一般式 (3) でない基は前記一般式 (4) 又は (5) で表される基、あるいは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリーール基である請求項 28 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 30】

前記一般式 (2) において、 $Ar_5 \sim Ar_7$  中、少なくとも 1 つが前記一般式 (4) 又は (5) で表される基である請求項 28 又は 29 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 31】

前記正孔輸送層が、前記発光層に接合している請求項 1 ~ 30 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 32】

前記発光材料が、 $Ir$ 、 $Pt$ 、 $Os$ 、 $Cu$ 、 $Ru$ 、 $Re$ 、 $Au$  から選択される金属を含む金属錯体化合物である請求項 1 ~ 31 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセ

10

20

30

40

50

センス素子。

【請求項 3 3】

前記発光材料において、中心金属原子と配位子に含まれる炭素原子とが、オルトメタル結合している請求項 1 ~ 3 2 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3 4】

前記宿主材料の励起 3 重項エネルギーギャップが、2 . 0 e V 以上 3 . 2 e V 以下である請求項 1 ~ 3 3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3 5】

前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されている請求項 1 ~ 3 4 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項 3 6】

前記発光層と前記陰極との間に電子注入層を有し、前記電子注入層が、含窒素環誘導体を主成分として含有する請求項 1 ~ 3 5 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、正孔輸送層に、特定の化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機 E L 素子」ということがある）に関する。

【背景技術】

20

【0 0 0 2】

有機物質を使用した有機 E L 素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に有機 E L 素子は、発光層及び該層をはさんだ一対の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入される。さらに、この電子が発光層において正孔と再結合し、励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0 0 0 3】

種々の形態の有機 E L 素子が知られている中、例えば、チオフェン構造を有する特定の置換基を有する芳香族アミン誘導体やジアリールアミノ基が結合したカルバゾール骨格を有する芳香族アミン誘導体を正孔注入材料や正孔輸送材料として用いた有機 E L 素子が提案されている（例えば、特許文献 1 , 2 参照）。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0 0 0 4】

【特許文献 1】W O 2 0 0 8 - 0 2 3 7 5 9

【特許文献 2】W O 2 0 0 8 - 0 6 2 6 3 6

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 5】

40

しかし、上記のような有機 E L 素子では、上記材料において分子構造の異なる分子間の電荷移動がスムーズに進行しない場合があり、駆動電圧の上昇を招くことがあった。

以上から、本発明は、駆動電圧を低下させるとともに、寿命が長く、実用的に優れた有機 E L 素子を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 6】

本発明者等は、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定のジアミン構造を有する化合物を第 1 正孔輸送層材料として用い、ジベンゾフラン構造及びカルバゾール構造を有する芳香族アミン誘導体を第 2 正孔輸送層材料として用いる、あるいは、特定の電子受容性化合物を用い、かつ、ジベンゾフラン構造及びカルバゾール構造を有する芳香

50

族アミン誘導体を第1正孔輸送材料として用いることで、駆動電圧が低く、寿命の長い有機EL素子を製造できることを見出し、本発明を完成したものである。

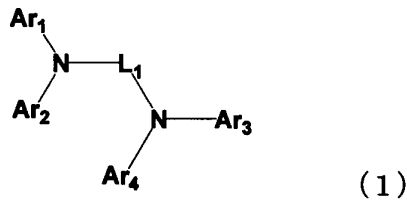
【0007】

すなわち、本願第一の発明は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機薄膜層は、ホスト材料と発光材料とを含有する発光層と、前記発光層よりも前記陽極側に設けられた正孔輸送層と、を有し、前記正孔輸送層は、前記陽極から順に、第1正孔輸送層および第2正孔輸送層を有し、前記第1正孔輸送層は下記一般式(1)で表される化合物を含有し、前記第2正孔輸送層は下記一般式(2)で表される化合物を含有する。

【0008】

【化1】

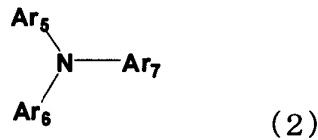


【0009】

(式中、 $L_1$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10~40のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~60のアリール基又は環形成原子数6~60のヘテロアリール基を表す。)

【0010】

【化2】

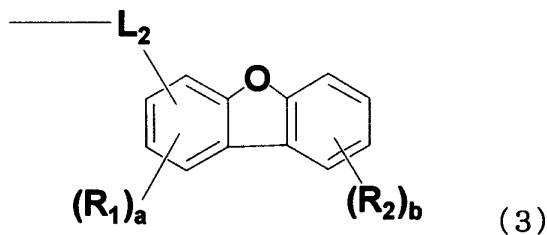


【0011】

(式中、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つは下記一般式(3)で表される基であり、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、一般式(3)でない基は下記一般式(4)又は(5)で表される基、あるいは置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基である。)

【0012】

【化3】



【0013】

(式中、 $L_2$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーレン基を表し、 $L_2$ が有してもよい置換基は、炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、炭素数3~10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、環形成炭素数6~14のアリ

10

20

30

40

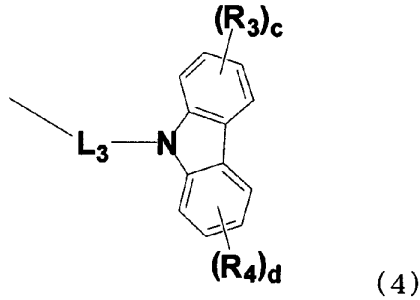
50

ール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～16のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R_1$ 及び $R_2$ は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。 $a$ 及び $b$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。)

【0014】

【化4】



【0015】

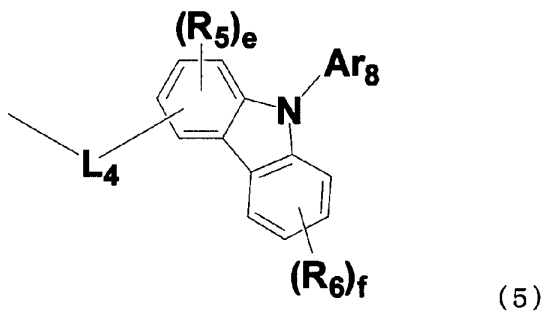
(式中、 $L_3$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $L_3$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、炭素数3～10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$c$ および $d$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を表す。

$R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3～10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3～10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18～30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8～15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6～14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の $R_3$ 及び $R_4$ は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。)

【0016】

【化5】



【0017】

(式中、 $L_4$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数6～50のアリーレン基を表し、 $L_4$ が有してもよい置換基は、炭素数1～10の直鎖状もしくは分岐状のアル

10

20

30

40

50

キル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$Ar_8$  は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリアル基を表し、 $Ar_8$  が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

10

$e$  は、0 ~ 3 の整数を表し、 $f$  は、0 ~ 4 の整数を表す。

$R_5$  及び  $R_6$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリアルシリル基（アリアル部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリアル基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の  $R_5$  及び  $R_6$  は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。）

【0018】

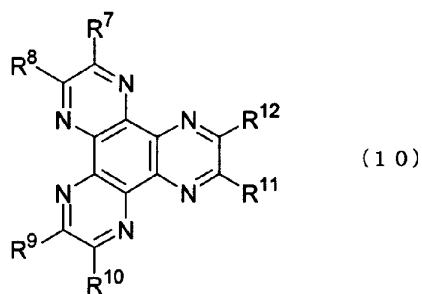
20

また、本願第二の発明は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機薄膜層は、ホスト材料と発光材料とを含有する発光層と、前記発光層よりも前記陽極側に設けられた正孔輸送層と、を有し、前記正孔輸送層は、前記陽極から順に、電子受容性化合物を含有する層及び第 1 正孔輸送層を有し、前記電子受容性化合物が下記一般式 (10) で表され、前記第 1 正孔輸送層は上記一般式 (2) で表される化合物を含有する。

【0019】

【化 6】



30

[上記一般式 (10) 中、 $R^7 \sim R^{12}$  は、それぞれ独立にシアノ基、 $-CONH_2$ 、カルボキシル基、もしくは  $-COOR^{13}$  ( $R^{13}$  は、炭素数 1 ~ 20 のアルキル基である。) を表すか、又は、 $R^7$  及び  $R^8$ 、 $R^9$  及び  $R^{10}$ 、もしくは  $R^{11}$  及び  $R^{12}$  が、互いに結合して  $-CO-O-CO-$  で示される基を表す。]

40

【0020】

本発明の有機 EL 素子は好適に電荷を輸送できることから、フルカラーディスプレイに必要な赤、緑、青のいずれの画素を構成する有機 EL 素子にも適用可能であり、発光層に含有されるホスト材料と発光材料以外の材料を共通化させることが期待できる。これにより、素子の製造コストを低減させることが期待される。

【発明の効果】

【0021】

本発明によれば、駆動電圧を低下させるとともに、寿命が長く、実用的に優れた有機 E

50

L素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0022】

【図1】本発明の有機EL素子の一実施態様の概略構成を示す図である。

【符号の説明】

【0023】

1：有機EL素子

2：基板

3：陽極

4：陰極

5：発光層

6：正孔輸送層

61：第1正孔輸送層

62：第2正孔輸送層

7：電子注入・輸送層

10：有機薄膜層

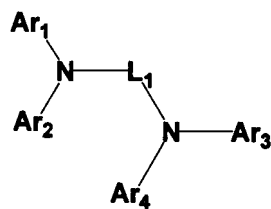
【発明を実施するための形態】

【0024】

本願第一の発明の有機EL素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層とを備えてなる。有機薄膜層はホスト材料と発光材料とを含有する発光層を有し、かつ、前記発光層より陽極側に設けられた正孔輸送層を有する。そして、正孔輸送層は、前記陽極から順に、第1正孔輸送層および第2正孔輸送層を有し、前記第1正孔輸送層は下記一般式(1)で表される化合物を含有し、前記第2正孔輸送層は下記一般式(2)で表される化合物を含有する。

【0025】

【化7】



(1)

【0026】

(式中、 $L_1$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数10～40のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6～60のアリール基又は環形成原子数6～60のヘテロアリール基を表す。

一般式(1)で表される化合物は $L_1$ に対して非対称である。)

【0027】

【化8】



(2)

【0028】

(式中、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つは下記一般式(3)で表される基であり、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、一般式(3)でない基は下記一般式(4)又は(5)で表される基、あるい

10

20

30

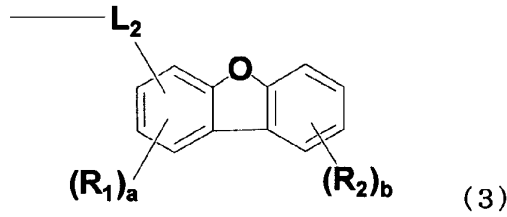
40

50

は置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。)

【0029】

【化9】



10

【0030】

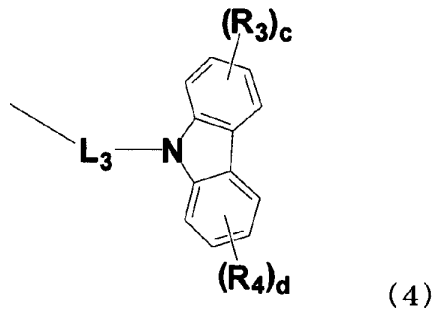
(式中、 $L_2$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_2$ が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 16 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R_1$ 及び $R_2$ は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。 $a$ 及び $b$ は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数を表す。)

20

【0031】

【化10】



30

【0032】

(式中、 $L_3$ は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_3$ が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$c$ および $d$ は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数を表す。

$R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接し

40

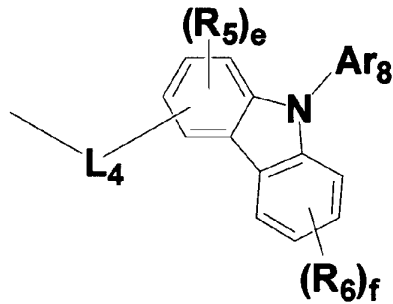
50



た複数の  $R_3$  及び  $R_4$  は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。) )

【 0 0 3 3 】

【 化 1 1 】



(5)

10

【 0 0 3 4 】

(式中、 $L_4$  は、単結合または置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 50 のアリーレン基を表し、 $L_4$  が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

20

$Ar_8$  は、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基を表し、 $Ar_8$  が有してもよい置換基は、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$e$  は、0 ~ 3 の整数を表し、 $f$  は、0 ~ 4 の整数を表す。

$R_5$  及び  $R_6$  は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリーールシリル基 (アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリーール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。隣接した複数の  $R_5$  及び  $R_6$  は、互いに結合して、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。) )

30

【 0 0 3 5 】

前記一般式 (3) における  $L_2$ 、前記一般式 (5) における  $L_4$  がアリーレン基である場合、前記一般式 (2) で表される化合物の電子密度の上昇を抑制し、IP が大きくなるため、素子の電圧が低くなりやすいため好ましい。さらに、ジベンゾフラン構造やカルバゾール構造がアリーレン基を介して窒素原子と結合すると、アミンが酸化されにくくなり、化合物が安定となる場合が多く、素子の寿命が長くなりやすい。また、前記一般式 (5) における  $L_4$  がアリーレン基である場合、化合物が安定となるため合成が容易である。

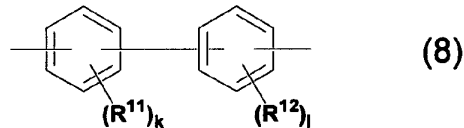
40

また、前記一般式 (5) においては、 $L_4$  のアリーレン基が下記一般式 (8) で表される場合、アミン化合物の電子密度の向上を抑制し、その結果、IP が大きくなり、発光層への正孔注入性が向上し、素子の電圧低下が期待できる。特に、前記一般式 (2) で表される化合物が、前記一般式 (3) で表されるジベンゾフラン構造含有基と、前記一般式 (4) 及び / 又は (5) で表されるカルバゾール構造含有基とを有するものである場合、一般式 (4)、(5) における  $L_3$  及び  $L_4$  が、それぞれ独立に、下記一般式 (8) で表されることが好ましい。

【 0 0 3 6 】

50

## 【化 1 2】



## 【 0 0 3 7 】

[ $R^{11}$ 及び $R^{12}$ は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリー

10

ルシリル基（アリーール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 16 のアリー

## 【 0 0 3 8 】

ル基、ハロゲン原子又はシアノ基である。隣接した複数の $R^{11}$ 及び $R^{12}$ は結合し、飽和もしくは不飽和の環を形成してもよい。

$k$ および $l$ は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数である。]

前記式(1)及び(2)で表される化合物は、いずれも、アフィニティ準位  $A_f$  が小さい。よって、これらを用いて、発光層に接合する正孔輸送層を形成すれば、優れた電子ブロック性を発揮する。

20

しかも、前記式(1)及び(2)で表される化合物は、いずれも、高い電子耐性を備えているため、電子ブロック時の電子の集中によっても有機 EL 素子の寿命が低下しにくい。

## 【 0 0 3 9 】

本願第一の発明の有機 EL 素子は、このような前記式(1)及び(2)で表される化合物を用いて、正孔輸送層を形成したので、電子を発光層に閉じ込めつつ、発光層に正孔を注入することができ、電荷の再結合確率を高めて高効率の発光を得ることができる。高性能化は蛍光、燐光を問わず効果があるが、燐光には特に効果がある。

また、電子ブロックに際して、発光層と正孔輸送層との界面に電子が集中するが、前記式(1)及び(2)で表される化合物は電子耐性が高いので発光寿命が低下しにくい。

30

また、前記式(1)及び(2)で表される化合物は、 $A_f$  が小さく電子が入りにくく、陽極側への移動をトラップする傾向がある。

さらに、前記式(1)で表される化合物に対して、大きい電子耐性を有する前記式(2)で表される化合物に電子をトラップすることにより、素子全体を長寿命化することができる。

前記式(2)で表される化合物はモノアミン系であって、ジベンゾフラン基を有しており、前記式(1)で表される化合物に比べ  $E_g$  が大きくなる。よって一般的に  $A_f$  が前記式(1)で表される化合物に比べ小さく、電子を発光層から陽極側へ移動させにくい。燐光発光層においては、発光層  $E_g$  が大きいので  $A_f$  が一般に小さく、電子をより陽極側へ移動させにくく、上記効果は顕著である。

40

また、ジベンゾフランの立体的かさだかさにより隣接する第 1 正孔輸送層の分子との距離を長くする立体的効果がある。これにより、第 2 正孔輸送層と第 1 正孔輸送層の界面にキャリアのトラップができる。これにより、前記式(1)で表される化合物に対して大きい電子耐性を有する前記式(2)で表される化合物に陰極側から移動してくる電子をトラップすることにより、素子全体を長寿命化することができる。

## 【 0 0 4 0 】

なお、アフィニティ準位  $A_f$  (電子親和力)とは、材料の分子に電子を一つ与えた時に放出または吸収されるエネルギーをいい、放出の場合は正、吸収の場合は負と定義する。

$A_f$  は、イオン化ポテンシャル  $I_p$  と光学エネルギーギャップ  $E_g$  (S) とにより次のように規定する。

50

$$A f = I p - E g ( S )$$

ここで、イオン化ポテンシャル  $I p$  は、各材料の化合物から電子を取り去ってイオン化するために要するエネルギーを意味し、例えば、紫外線光電子分光分析装置 ( A C - 3、理研 ( 株 ) 計器 ) で測定した値である。

光学エネルギーギャップ  $E g ( S )$  は、伝導レベルと価電子レベルとの差をいい、例えば、各材料のトルエン希薄溶液の吸収スペクトルの長波長側接線とベースライン ( 吸収ゼロ ) との交点の波長値をエネルギーに換算して求める。

#### 【 0 0 4 1 】

さらに、前記式 ( 1 )、( 2 ) で表される化合物は、ガラス転移温度 (  $T g$  ) が高く、耐熱性に優れる。特に、分子量の大きい置換基を導入すれば、正孔輸送層の耐熱性を高めることができる。

10

ここで、従来、正孔輸送層を形成する材料として用いられてきた N P D ( 例えば、米国特許 2 0 0 6 - 0 0 8 8 7 2 8 号公報参照 ) は、 $T g$  が 1 0 0 以下であるため、耐熱性が不足していた。

これに対し、本発明では、 $T g$  の高い前記式 ( 1 )、( 2 ) で表される化合物を採用することで、有機 E L 素子の耐熱性を向上することができる。

#### 【 0 0 4 2 】

また、米国特許 2 0 0 6 - 0 0 8 8 7 2 8 号公報の発明では、銅フタロシアニン化合物を用いて正孔注入層を形成している。

しかしながら、銅錯体化合物は可視領域に吸収をもつので、厚膜化すると青みを帯びて好ましくない。また、銅錯体化合物は、アモルファス性が低く、結晶性が高いため、厚膜化しにくく、素子構成を構築する上で制限が多い。

20

これに対し、前記式 ( 1 )、( 2 ) で表される化合物は、可視領域に大きな吸収がなく、アモルファス性が高く、結晶性が低いので、膜厚化に適する。

よって、前記式 ( 1 )、( 2 ) で表される化合物を採用した本発明の有機 E L 素子では、様々な素子構成を構築することができる。

#### 【 0 0 4 3 】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子における正孔輸送層とは、発光層よりも陽極側に設けられ、陽極から発光層へ正孔を注入させる役割を担う。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子における第 1 正孔輸送層及び第 2 正孔輸送層は、各々、発光層に正孔を注入する正孔輸送層として機能する層であり、陽極側に設けられたものを第 1 正孔輸送層、発光層側に設けられたものを第 2 正孔輸送層という。

30

一般的に、陽極から発光層の H O M O ( H i g h e s t O c c u p i e d M o l e c u l a r O r b i t a l ) に正孔を低い電圧で注入するために、複数の正孔輸送層を設け、陽極側に位置する正孔輸送層から、発光層側に位置する正孔輸送層にかけて、その H O M O 準位を次第に発光層の H O M O 準位に近づけるように材料を選定する。

また、発光層における電子と正孔の再結合確率を増大させるために、発光層に接する正孔輸送層のアフィニティレベルを小さい材料を選択することにより、陰極側からくる電子を発光層に閉じ込めることができ、発光効率を高め及び寿命を長くすることが可能になることが知られている。

40

このために、第 1 正孔輸送層のイオン化ポテンシャルは第 2 正孔輸送層のイオン化ポテンシャルより小さいことが好ましい。さらにその差が 1 . 0 e V 以下であることが好ましく、さらに 0 . 4 e V 以下であることが好ましい。

また、第 1 正孔輸送層のアフィニティレベルはそれに接する発光層のアフィニティレベルより小さいことが好ましい。さらにその差が 1 . 0 e V 以下であることが好ましく、さらに 0 . 4 e V 以下であることが好ましい。

上記第 1 正孔輸送層は 1 0 ~ 2 0 0 n m の膜厚となる場合が好ましく、1 5 ~ 1 5 0 n m の膜厚となる場合がさらに好ましく、2 0 ~ 1 0 0 n m の膜厚となる場合が特に好ましい。また、上記第 2 正孔輸送層は 1 0 ~ 2 0 0 n m の膜厚となる場合が好ましく、1 5 ~ 1 5 0 n m の膜厚となる場合がさらに好ましく、2 0 ~ 1 0 0 n m の膜厚となる場合が特

50

に好ましい。

【0044】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子としては、前記一般式(4)および一般式(5)において、 $L_3$ 及び $L_4$ が、それぞれ独立に、フェニレン基、ピフェニルジイル基、ターフェニルジイル基、ナフチレン基又はフェナントレンジイル基であるものが好ましい。

【0045】

本発明の有機EL素子は、第1正孔輸送層に上記一般式(1)で表される化合物を有するが、当該化合物はイオン化ポテンシャルが大きいため、第2正孔輸送層への正孔の移動が容易となり、得られる有機EL素子が低電圧化される。

前記一般式(1)で表される化合物は、さらに下記(2)~(6)を満たすことが好ましい。

(2) 前記一般式(1)で表される化合物が $L_1$ に対して非対称である。

$L_1$ に対して対称の化合物に比べて、分子間の相互作用が小さいことから、結晶化が抑制され、有機EL素子を製造する歩留を向上させる。また、アモルファス性が優れることから、隣接するITOもしくは有機層との界面の接着性が向上し、素子を安定化させる。

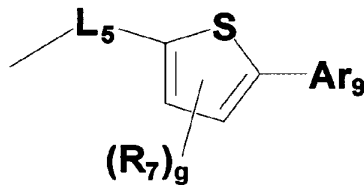
(3) 前記一般式(1)において、 $L_1$ がピフェニルジイル基である。

正孔が注入したカチオン状態において、電氣的に安定なキノイド構造を有し、酸化に対して優れた安定性を有する。

(4) 前記一般式(1)の $Ar_1 \sim Ar_4$ が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のピフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、置換もしくは無置換のフェナントリル基、又は下記一般式(6)で表される。

【0046】

【化13】



(6)

(式中、 $L_5$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~50のアリーレン基を表し、 $L_5$ が有してもよい置換基は、炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、炭素数3~10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、環形成炭素数6~14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$Ar_9$ は、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~14のアリール基を表し、 $Ar_9$ が有してもよい置換基は、炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、炭素数3~10のトリアルキルシリル基、環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、環形成炭素数6~14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

$g$ は、1又は2を表す。

$R_7$ は、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~14のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基を表す。複数の $R_7$ は、互いに結合して

、環を形成する飽和もしくは不飽和の2価の基を形成してもよい。)

上記一般式(6)で表される構造は、ローンペアとITOとの相互作用により、ITOとの接着性に優れることから、正孔の注入性が良好であるとともに、ITOの性状による影響を受けにくく、安定した素子性能を有することができる。

【0047】

(5)前記一般式(1)の $Ar_1 \sim Ar_4$ が、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のフェニル基、置換もしくは無置換のピフェニル基、置換もしくは無置換のターフェニル基、又は置換もしくは無置換のフェナントリル基である。

フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、フェナントリル基は、酸化および還元に対しても優れた安定性を有する置換基群であり、アミンに結合する置換基として好適である。

(6)前記一般式(1)の $Ar_1 \sim Ar_4$ のうち少なくとも1つが前記一般式(6)で表される。

このアミンユニットは立体障害性があるため分子間の相互作用が小さいことから、結晶化が抑制され、有機EL素子を製造する歩留を向上させることができる。また、ジベンゾフラン構造を有するアリール基及びカルバゾール構造を有するアリール基を有するアミン化合物は $E_g$ が大きく、発光層からの電子を効果的にブロックすることが可能なため、効率を向上するとともに、正孔輸送層への電子の注入を抑制するため寿命を長くする効果があり、特に青色発光素子と組み合わせることにより、顕著な長寿命効果が得られる。

【0048】

前記一般式(2)で表される化合物は、さらに下記(7)~(25)を満たすことが好ましい。

(7)前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(4)又は(5)で表される基である。

(8)前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(4)で表される基である。

カルバゾールのN原子とアミンのN原子の相互作用により、カルバゾールの還元に対する不安定性が改善されると考えられる。その結果、寿命が長くなるため、好ましい。

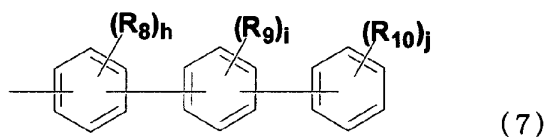
(9)前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが前記一般式(5)で表される基である。

(10)前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$ 中、少なくとも1つが下記一般式(7)で表される。

このアミンユニットは立体障害性があるため分子間の相互作用が小さいことから、結晶化が抑制され、有機EL素子を製造する歩留を向上させ、また、還元安定性に優れるテルフェニル基を有することで分子の還元安定性が向上し、得られる有機EL素子の寿命を長くする効果があり、特に青色発光素子と組み合わせることにより、顕著な長寿命効果が得られる。

【0049】

【化14】



(式中、 $R_8 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数1~10の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数3~10のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数3~10のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数18~30のトリアリールシリル基、置換もしくは無置換の炭素数8~15のアルキルアリールシリル基(アリール部分の環形成炭素数は6~14)、置換もしくは無置換の環形成炭素数6~16のアリール基、ハロゲン原子又はシアノ基である。

隣接した複数の  $R_8 \sim R_{10}$  は互いに結合し、環を形成する飽和もしくは不飽和の 2 価の基を形成してもよい。  $h$ 、 $i$  及び  $j$  は、それぞれ独立に、0 ~ 4 の整数を表す。)

【0050】

(11) 前記一般式(2)において、 $Ar_5 \sim Ar_7$  中、少なくとも 2 つが前記一般式(3)で表され、 $Ar_5 \sim Ar_7$  のうち 2 つが一般式(3)で表される場合、2 つの一般式(3)で表される基が同一ではなく、また、 $Ar_5 \sim Ar_7$  の 3 つが一般式(3)で表される基である場合、3 つの一般式(3)で表される基が同一ではない。

ジベンゾフラン構造を有するアリール基を少なくとも 2 種類有するアミン誘導体は、分子の対称性を低下させることができることから、結晶化が抑制され、有機 EL 素子を製造する歩留を向上させることができる。また、ジベンゾフラン構造を有するアリール基を有するアミン化合物は  $E_g$  が大きく、発光層からの電子を効果的にブロックすることが可能なため、効率を向上するとともに、正孔輸送層への電子の注入を抑制するため寿命を長くする効果があり、特に青色発光素子と組み合わせることにより、顕著な長寿命効果が得られる

また、 $I_p$  が小さくなり、ホスト中のドーパントに正孔が直接注入することが容易と考えられ、その結果、電圧が小さくなるため、好ましい。

(12) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表される。

(13) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  及び  $Ar_7$  が置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。

(14) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$  が置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。

(15) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  及び  $Ar_7$  が前記一般式(4)で表される。

(16) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$  が前記一般式(4)で表される。

(17) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  及び  $Ar_7$  が前記一般式(5)で表される。

(18) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$  が前記一般式(5)で表される。

(19) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  及び  $Ar_7$  が前記一般式(7)で表される。

(20) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_7$  が前記一般式(7)で表される。

(21) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$  が前記一般式(5)で表される。

(22) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$  が前記一般式(7)で表される。

(23) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(4)で表され、 $Ar_7$  が置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。

(24) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(5)で表され、 $Ar_7$  が置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。

(25) 前記一般式(2)において、 $Ar_5$  が前記一般式(3)で表され、 $Ar_6$  が前記一般式(7)で表され、 $Ar_7$  が置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 40 のアリール基である。

【0051】

前記一般式(1) ~ (7)において、 $R_1 \sim R_{10}$  で表される置換もしくは無置換のアルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチ

10

20

30

40

50

ル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基等が挙げられ、好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基である。

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ で表される置換もしくは無置換のシクロアルキル基の具体例としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロペンチルメチル基、シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基、4-フルオロシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられ、好ましくは、シクロペンチル基、シクロヘキシル基である。

10

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ で表されるトリアルキルシリル基の具体例としては、例えば、トリメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリプロピルシリル基、プロピルジメチルシリル基、トリブチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、トリペンチルシリル基、トリヘプチルシリル基、トリヘキシルシリル基等が挙げられ、好ましくは、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基である。シリル基に置換したアルキル基は同一でも異なっても良い。

#### 【0052】

20

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ で表されるトリアリールシリル基の具体例としては、例えば、トリフェニルシリル基、トリナフチルシリル基、トリアントリルシリル基等が挙げられ、好ましくは、トリフェニルシリル基である。シリル基に置換したアリール基は同一でも異なっても良い。

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ で表されるアルキルアリールシリル基の具体例としては、例えば、ジメチルフェニルシリル基、ジエチルフェニルシリル基、ジプロピルフェニルシリル基、ジブチルフェニルシリル基、ジペンチルフェニルシリル基、ジヘプチルフェニルシリル基、ジヘキシルフェニルシリル基、ジメチルナフチルシリル基、ジプロピルナフチルシリル基、ジブチルナフチルシリル基、ジペンチルナフチルシリル基、ジヘプチルナフチルシリル基、ジヘキシルナフチルシリル基、ジメチルアントリルシリル基、ジエチルアントリルシリル基、ジプロピルアントリルシリル基、ジブチルアントリルシリル基、ジペンチルアントリルシリル基、ジヘプチルアントリルシリル基、ジヘキシルアントリルシリル基、ジフェニルメチル基等が挙げられ、好ましくは、ジメチルフェニルシリル基、ジエチルフェニルシリル基、ジフェニルメチル基である。

30

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ 及び $Ar_1 \sim Ar_9$ で表されるアリール基の具体例としては、例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、ピフェニル基、4-メチルピフェニル基、4-エチルピフェニル基、4-シクロヘキシルピフェニル基、アントラセニル基、ナフタセニル基、ターフェニル基、トリフェニル基、3,5-ジクロロフェニル基、ナフチル基、5-メチルナフチル基、フェナントリル基、クリセニル基、ベンズフェナントリル基、ターフェニル基、ベンズアントラニル基、ベンゾクリセニル基、ペントセニル基、ピセニル基、ペンタフェニル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオレニル基、9,9-ジメチルフルオレニル基、インデニル基、アセナフチレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基等が挙げられ、好ましくは、フェニル基、ピフェニル基、ナフチル基である。

40

前記一般式(1)~(7)において、 $R_1 \sim R_{10}$ で表されるハロゲン原子の具体例はフッ素、塩素、臭素である。

#### 【0053】

前記一般式(1)~(7)において、 $L_1 \sim L_5$ で表される環形成炭素数6~50のアリール基の具体例としては、上記アリール基を2価基としたものが挙げられる。

50

上記置換基を有してもよい各基の置換基としては、炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子等が挙げられる。

上記各基が有してもよい置換基の炭素数 1 ~ 10 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、環形成炭素数 3 ~ 10 のシクロアルキル基、炭素数 3 ~ 10 のトリアルキルシリル基、環形成炭素数 18 ~ 30 のトリアリールシリル基、炭素数 8 ~ 15 のアルキルアリールシリル基（アリール部分の環形成炭素数は 6 ~ 14）、環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基、ハロゲン原子の具体例としては、 $R_1 \sim R_{10}$  の具体例として挙げられたものと同様のものが挙げられる。

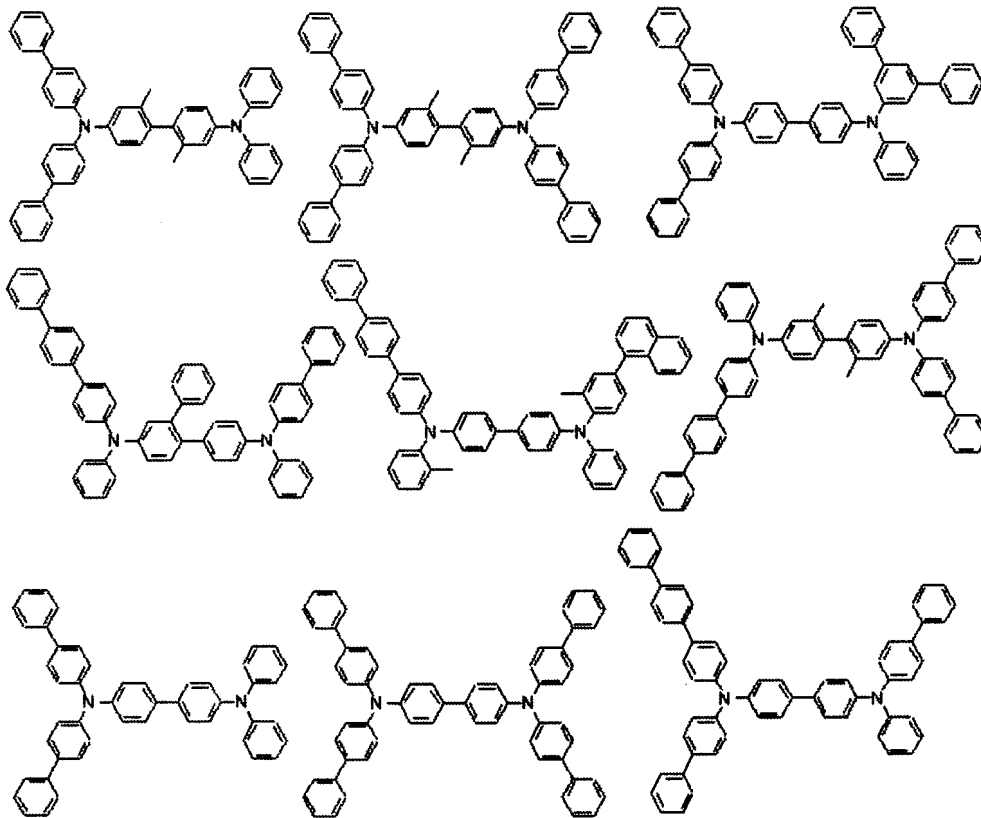
10

【0054】

以下、前記一般式(1)で表される化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

【0055】

【化15】



20

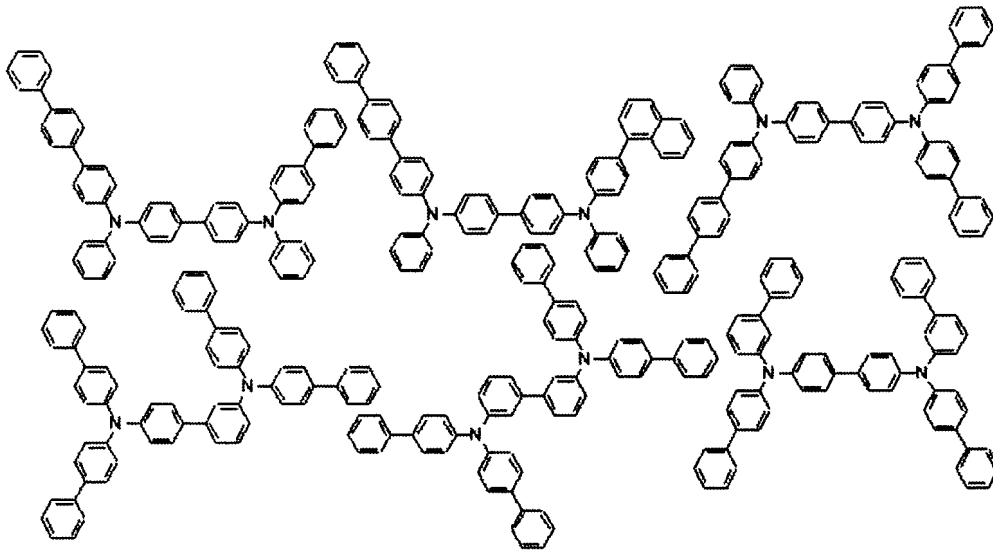
30

【0056】

40



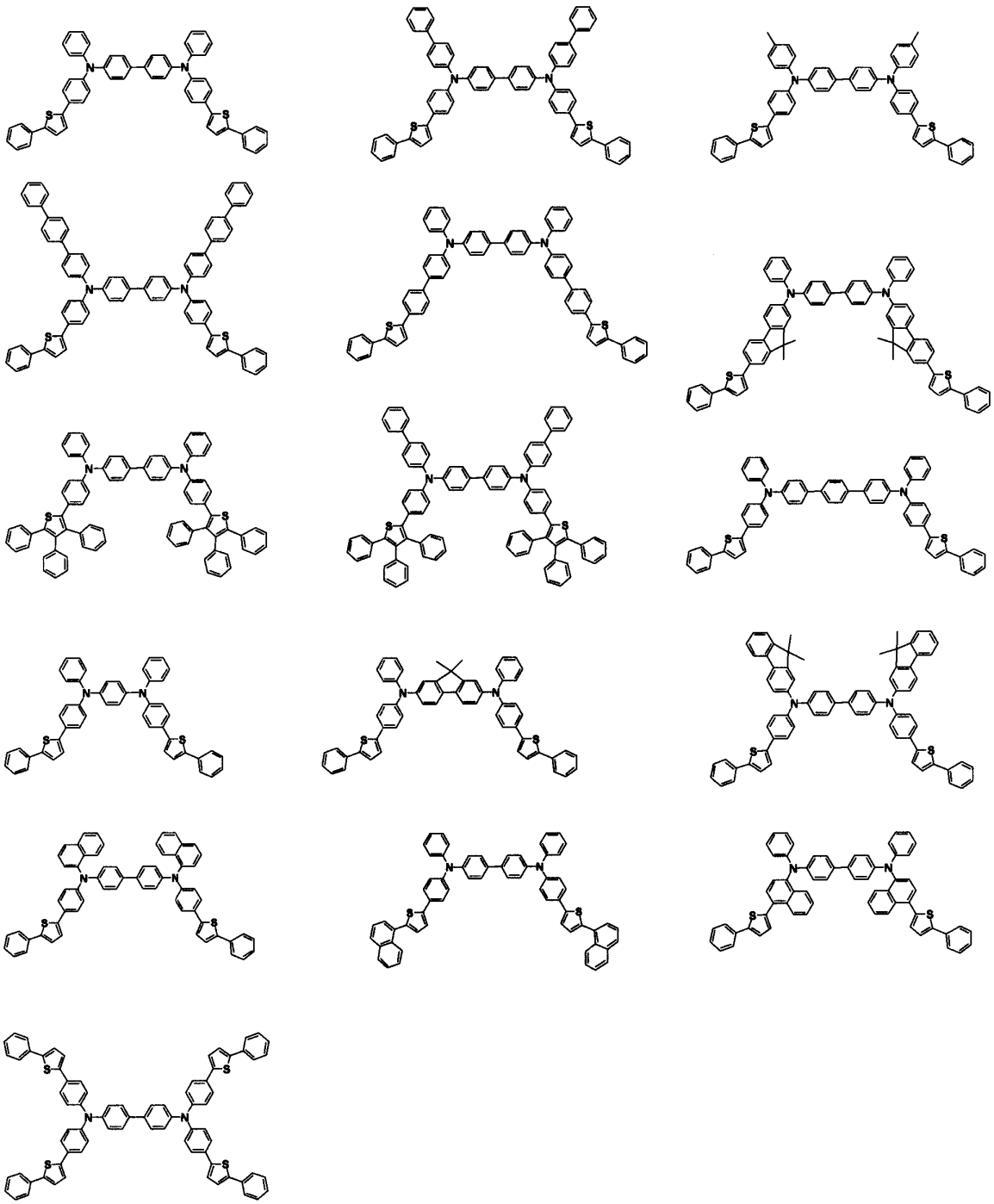
【化 1 6】



10

【 0 0 5 7 】

【化 1 7】

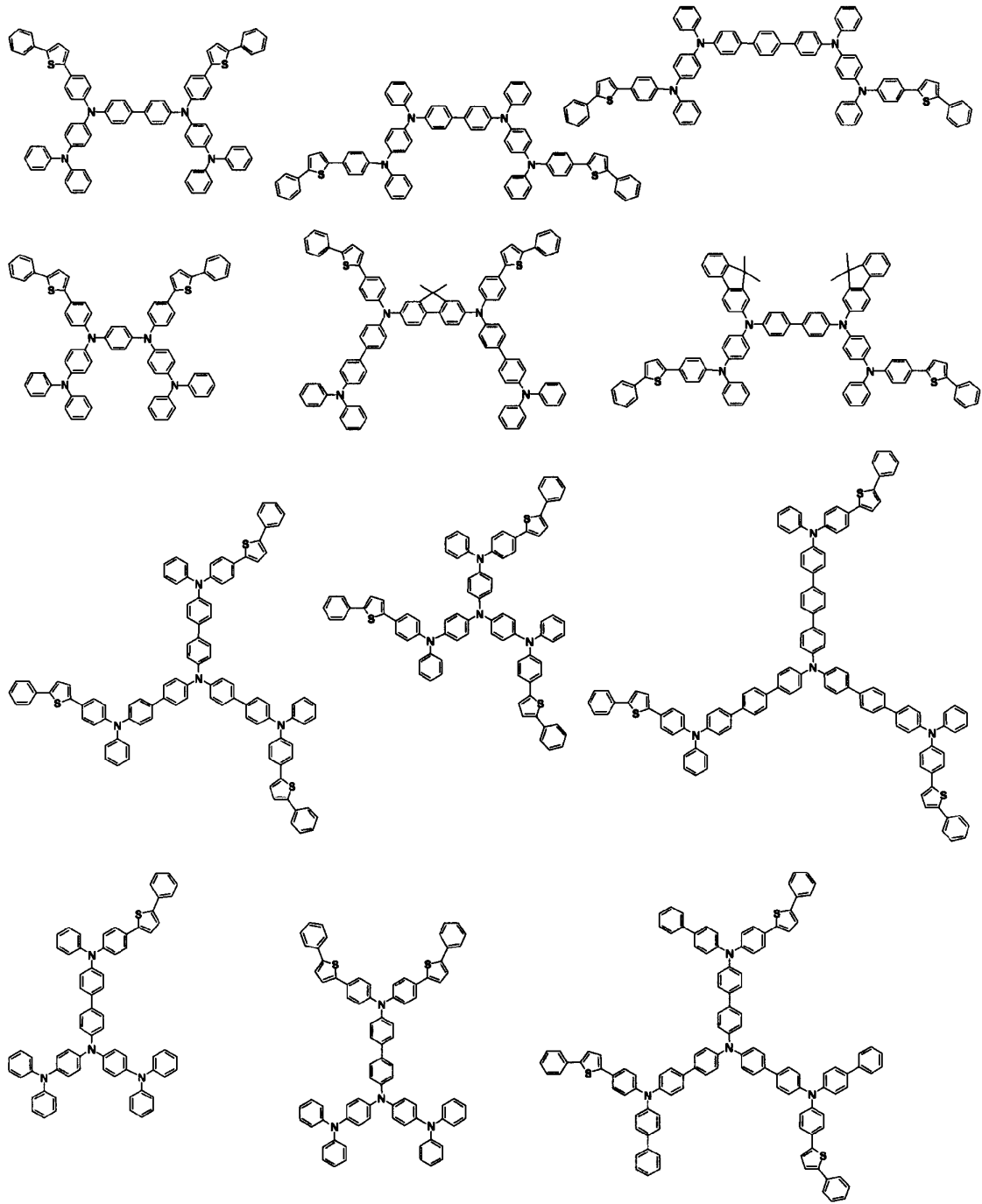


【 0 0 5 8 】

40

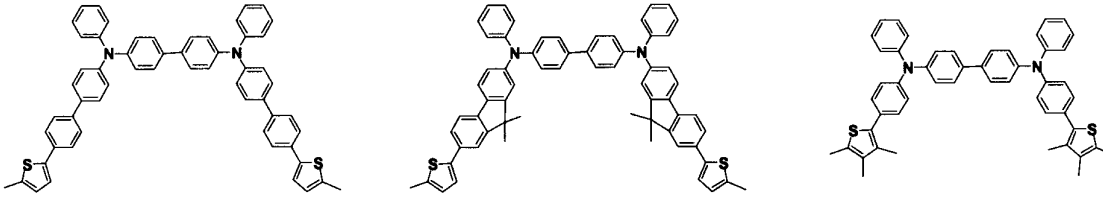
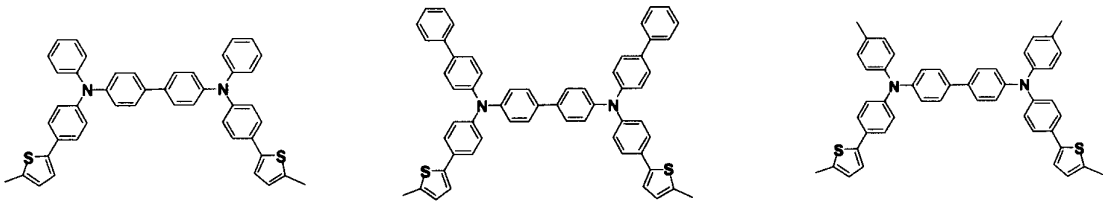


【化 19】

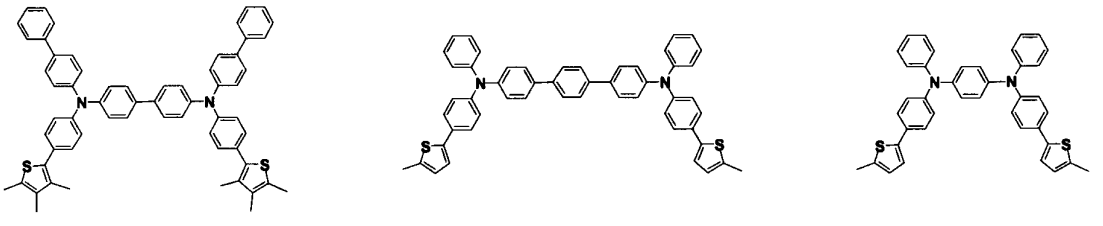


【 0 0 6 0 】

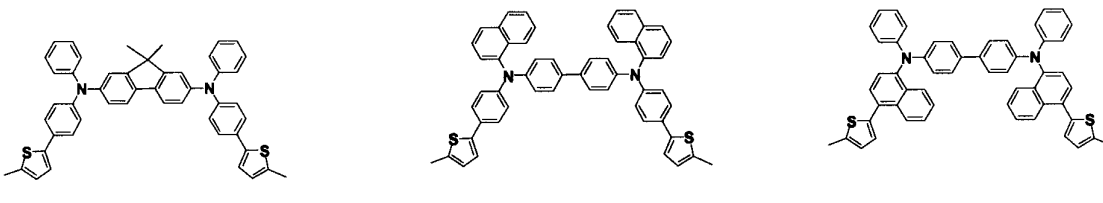
【化 2 0】



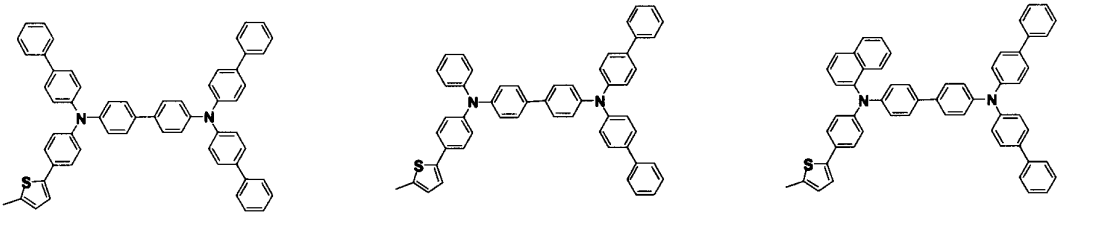
10



20

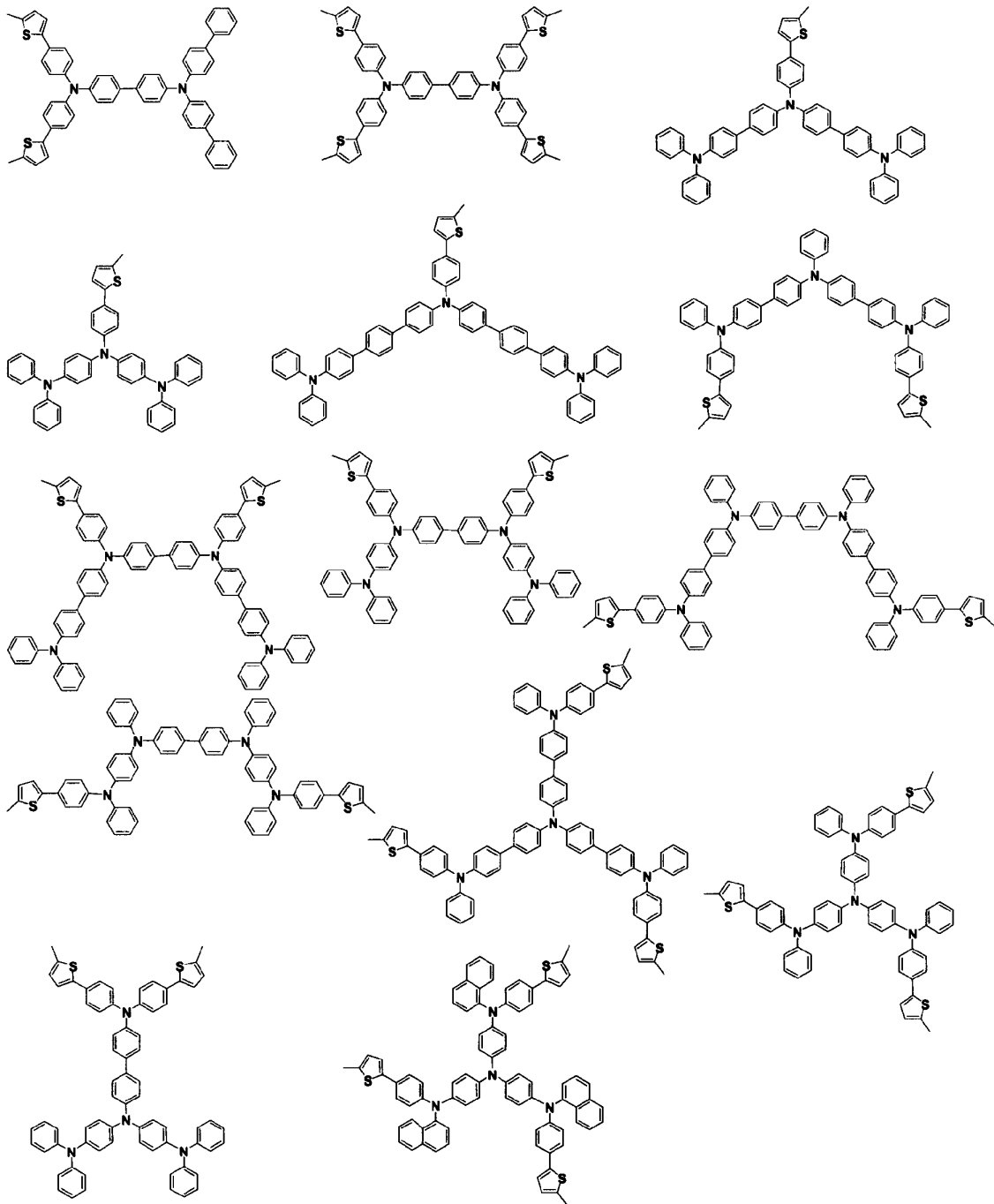


30



【 0 0 6 1】

【化 2 1】

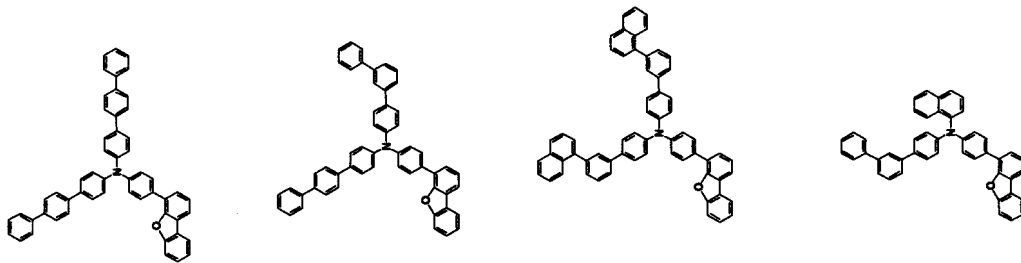
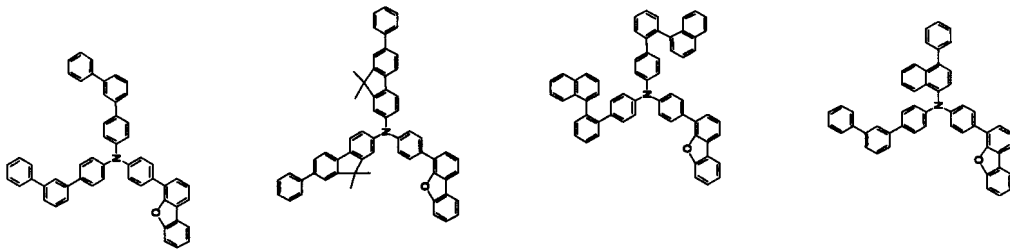
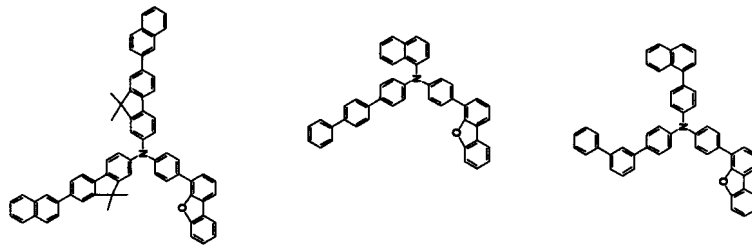
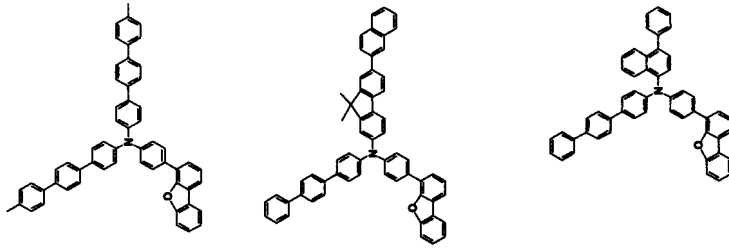
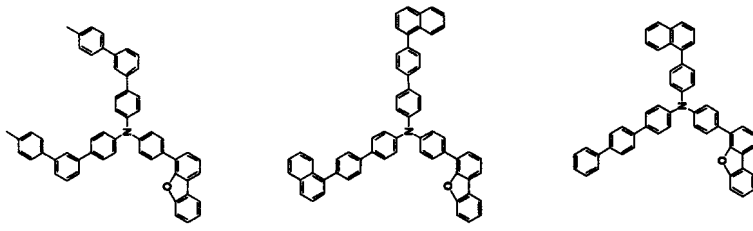


【 0 0 6 2】

以下、前記一般式(2)で表される化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。 40

【 0 0 6 3】

【化 2 2】



【 0 0 6 4 】

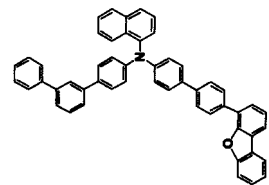
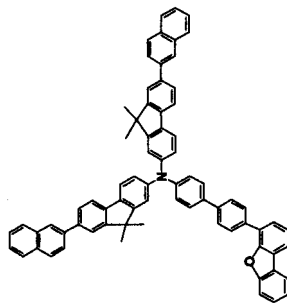
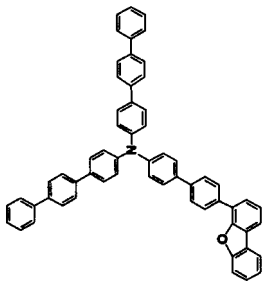
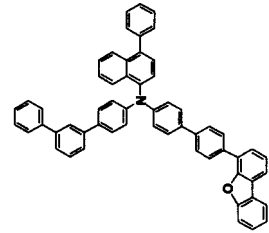
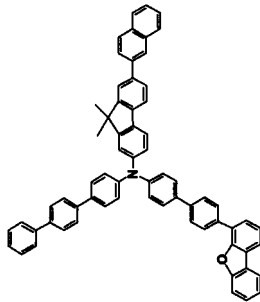
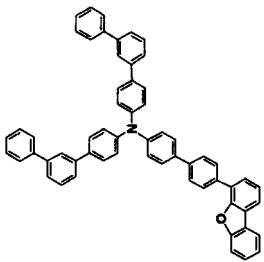
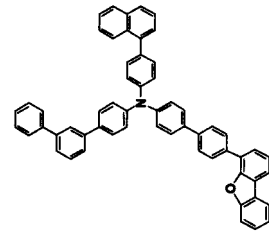
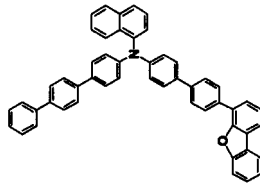
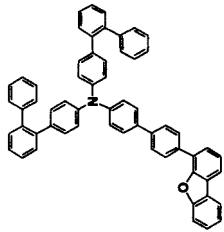
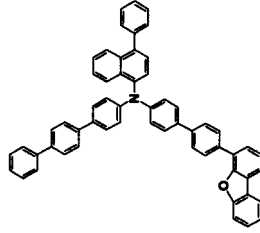
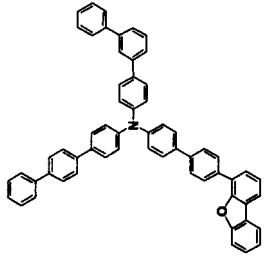
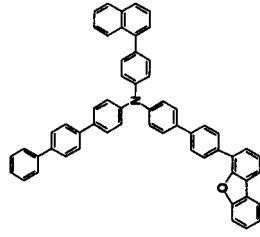
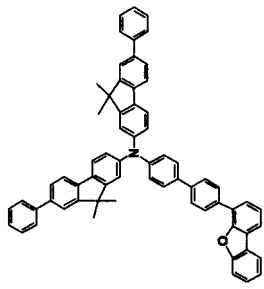
10

20

30

40

【化 2 3】



【 0 0 6 5 】

10

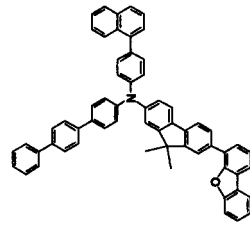
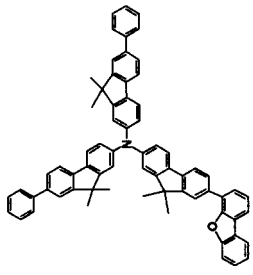
20

30

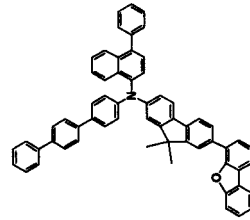
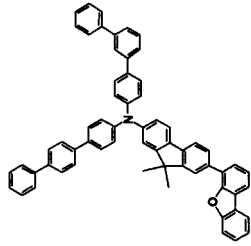
40



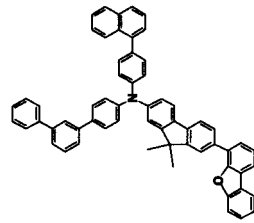
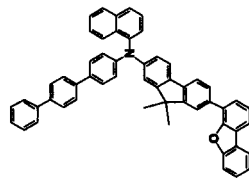
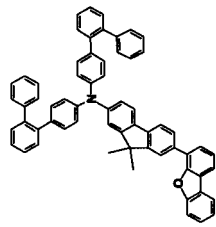
【化 2 4】



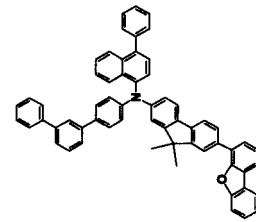
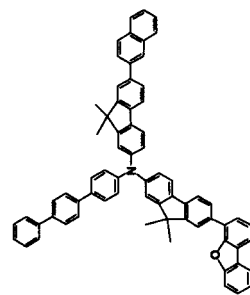
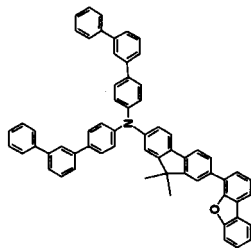
10



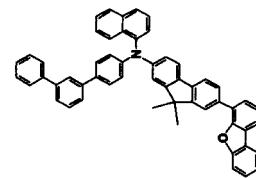
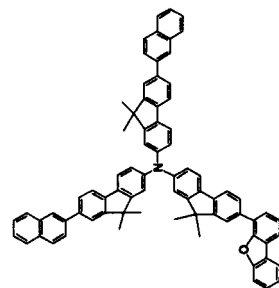
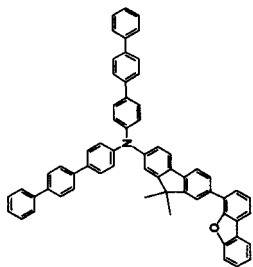
20



30

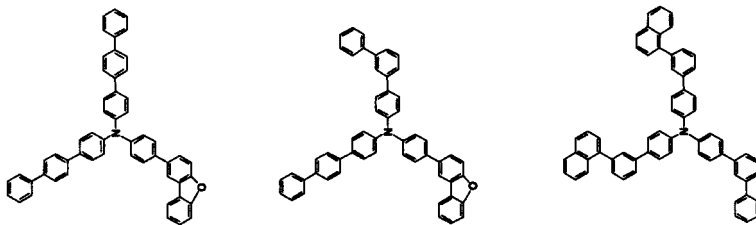
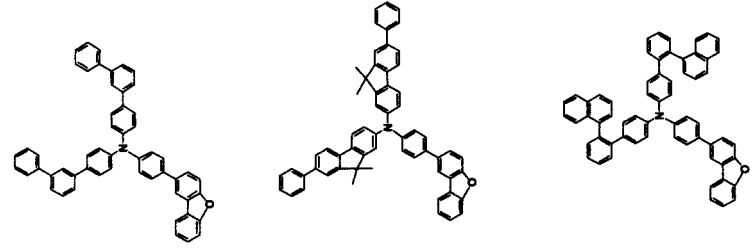
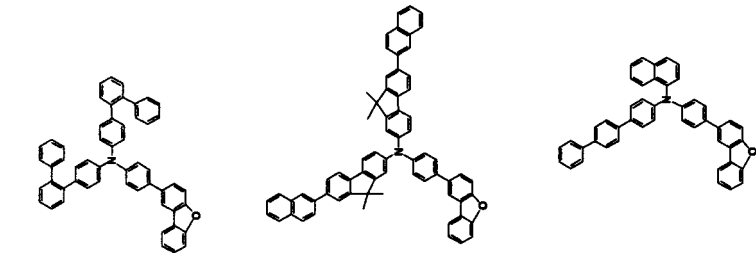
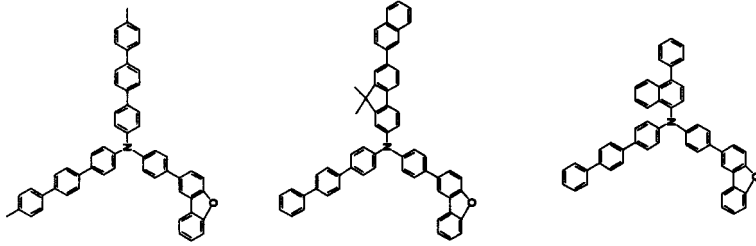
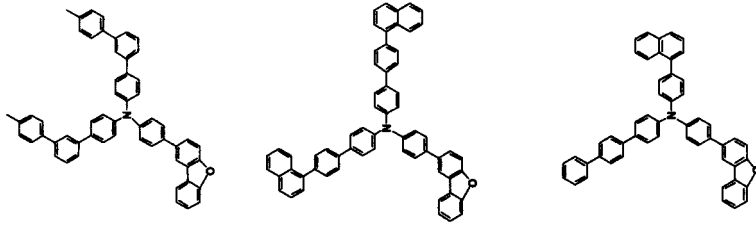


40



【 0 0 6 6 】

【化 2 5】



【 0 0 6 7】

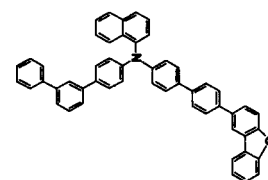
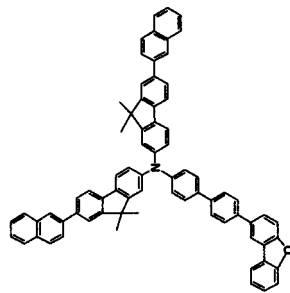
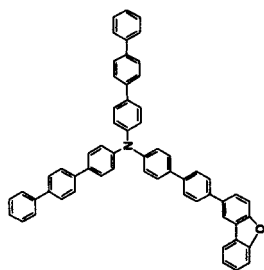
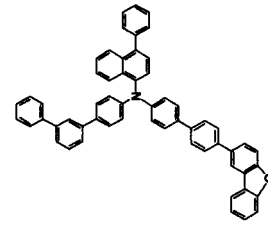
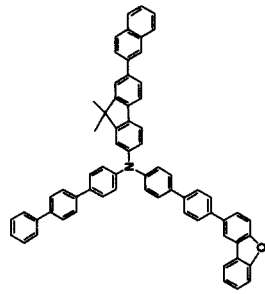
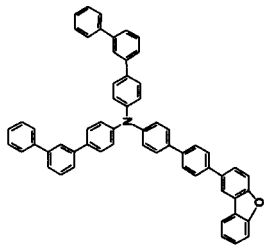
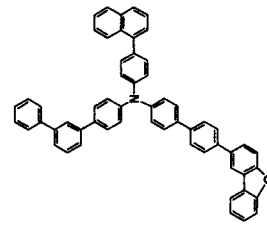
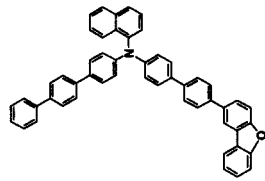
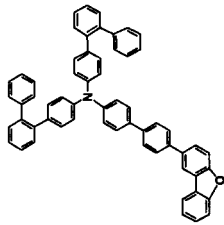
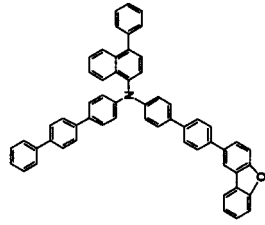
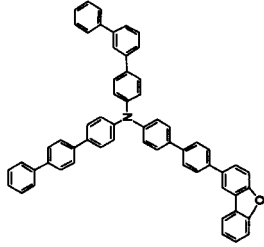
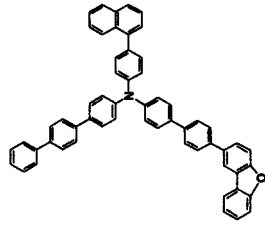
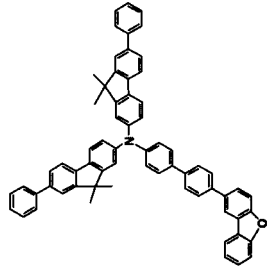
10

20

30

40

【化 2 6】



【 0 0 6 8】

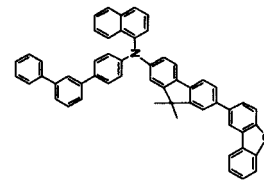
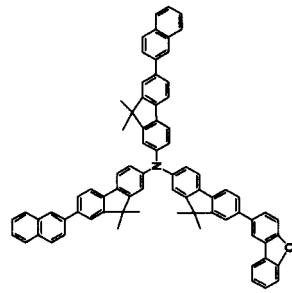
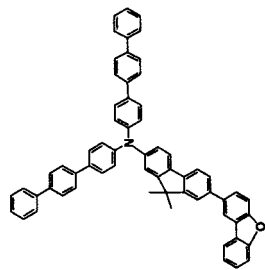
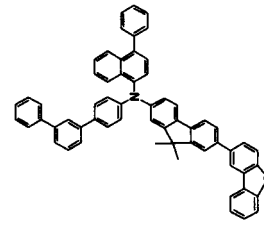
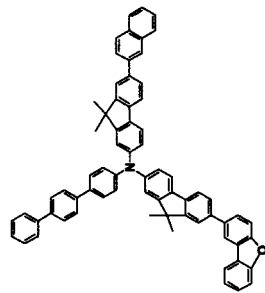
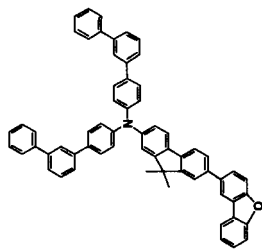
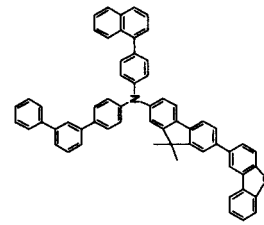
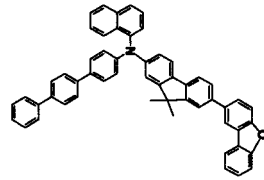
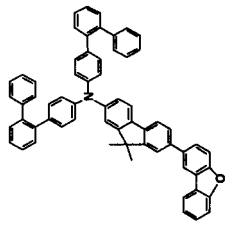
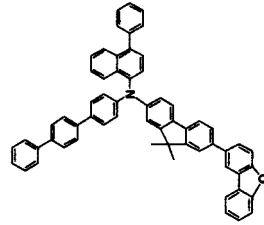
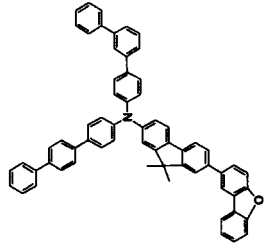
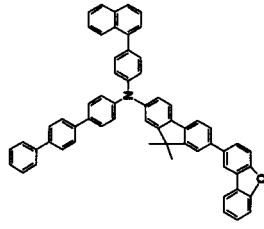
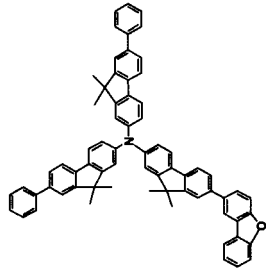
10

20

30

40

【化 27】



【 0 0 6 9 】

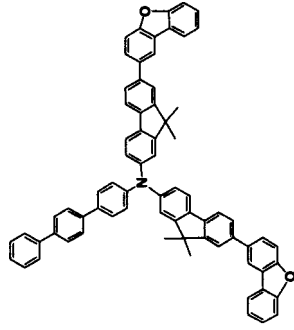
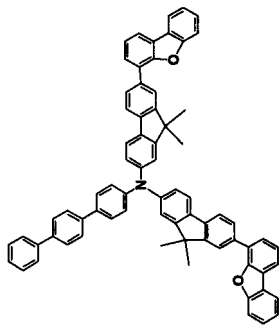
10

20

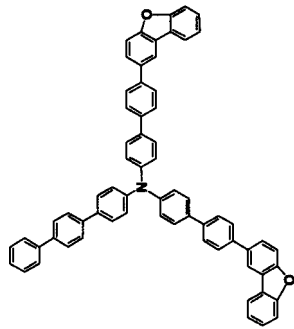
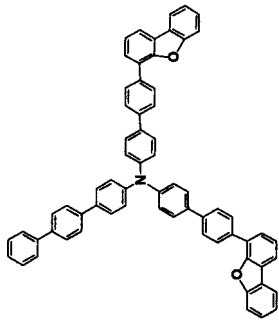
30

40

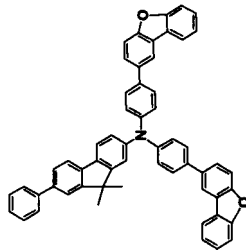
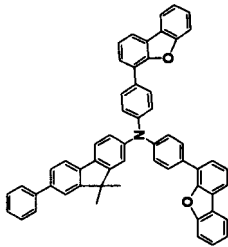
【化 2 8】



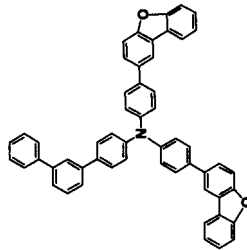
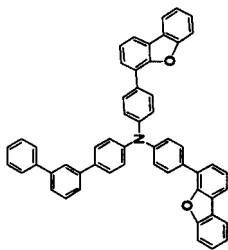
10



20



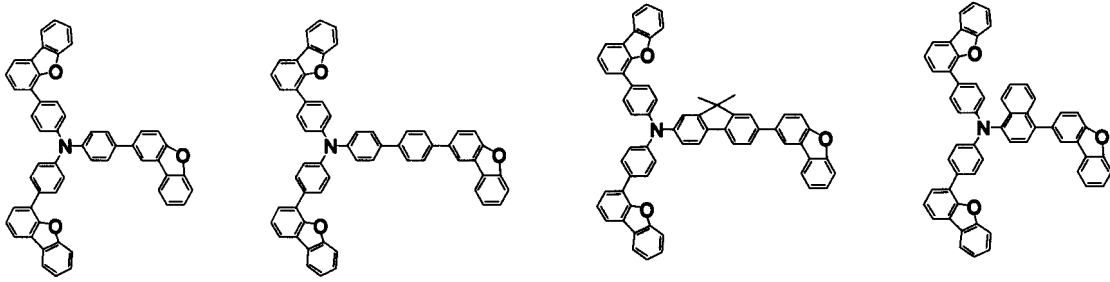
30



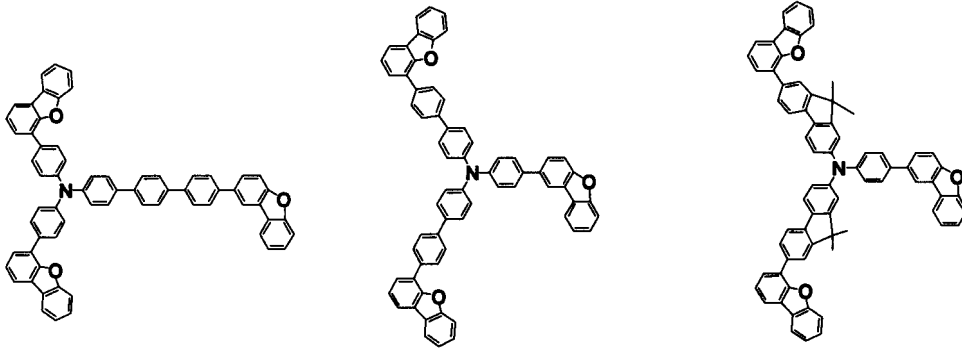
40

【 0 0 7 0】

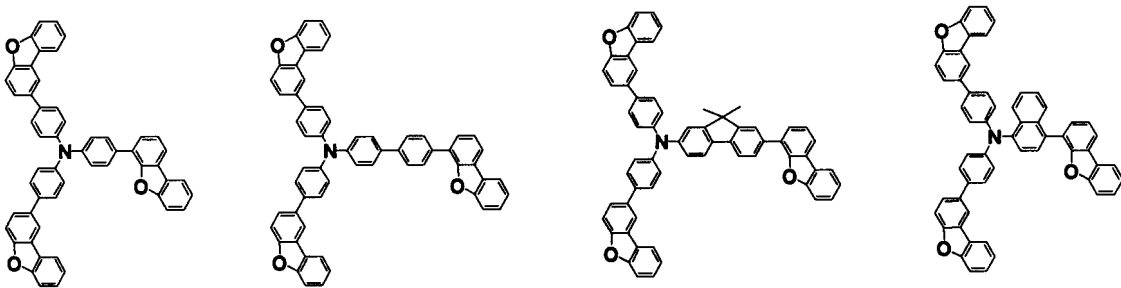
【化 2 9】



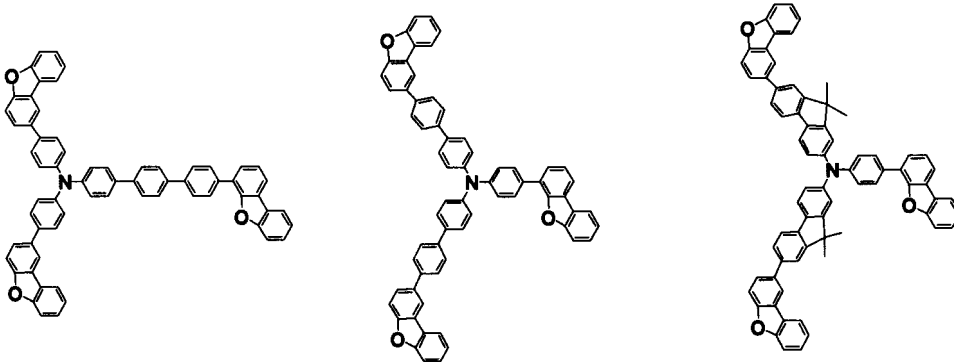
10



20



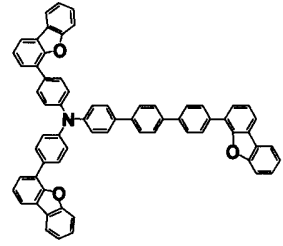
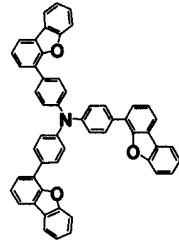
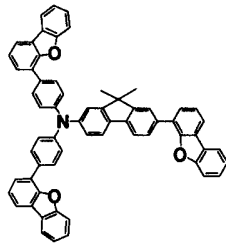
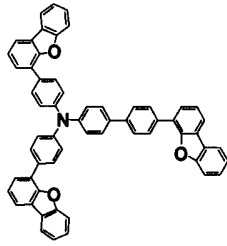
30



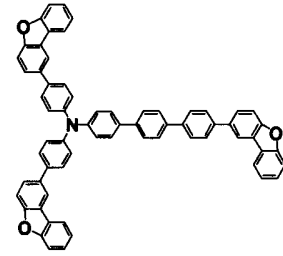
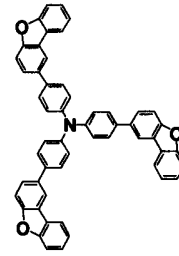
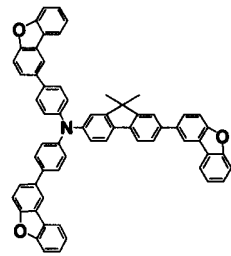
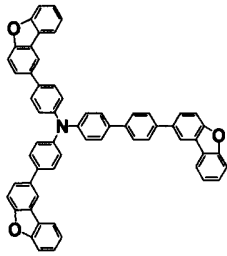
40

【 0 0 7 1】

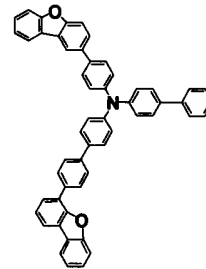
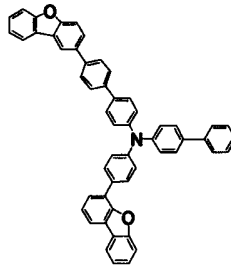
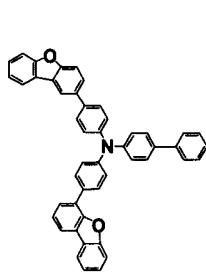
【化 3 0】



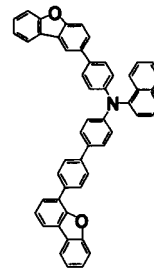
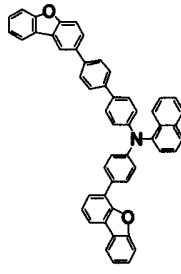
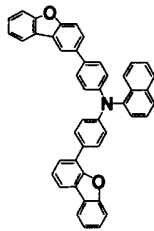
10



20



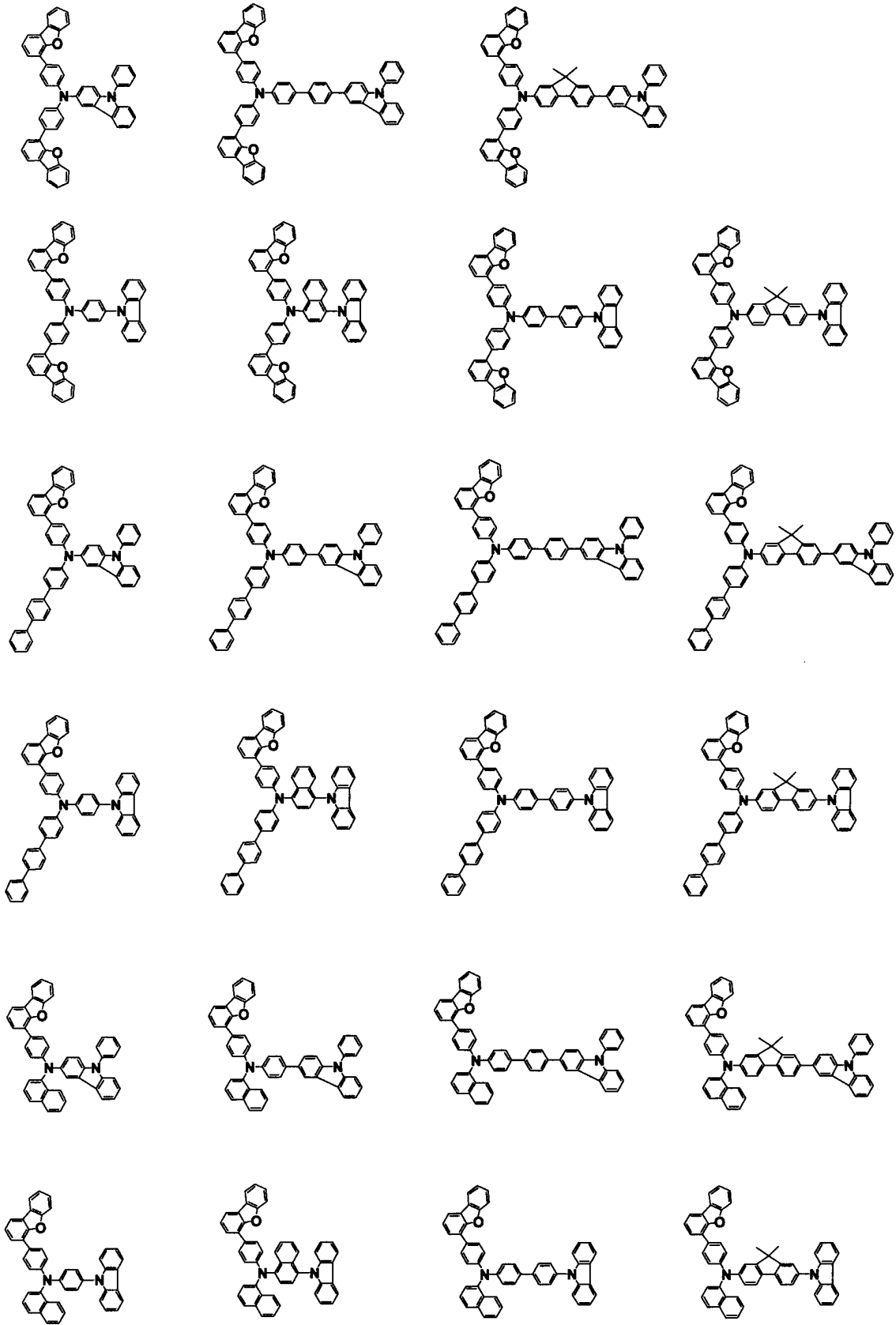
30



40

【 0 0 7 2】

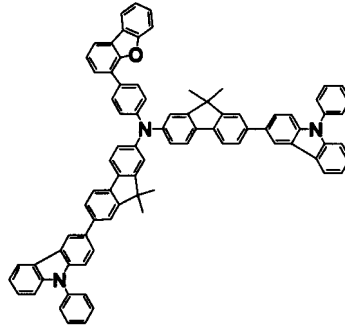
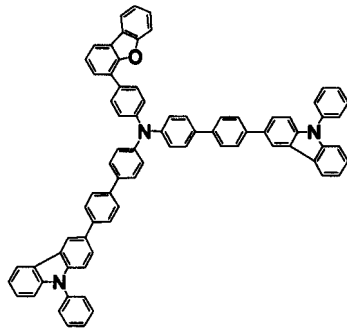
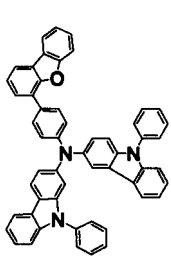
【化 3 1】



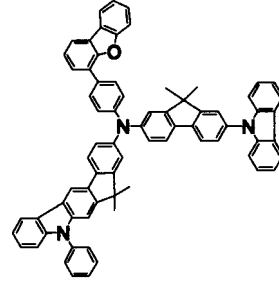
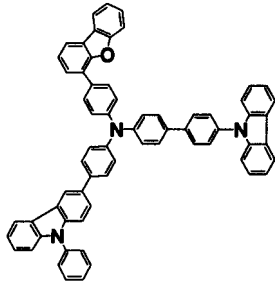
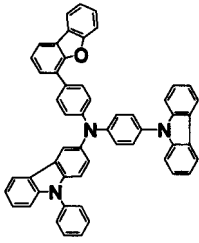
【 0 0 7 3 】



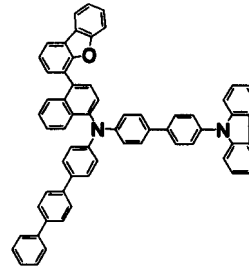
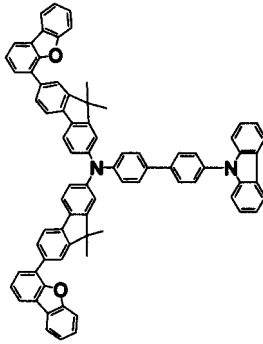
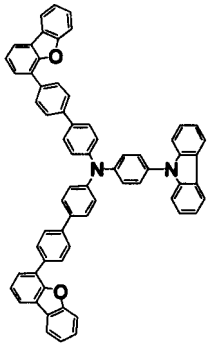
【化 3 2】



10



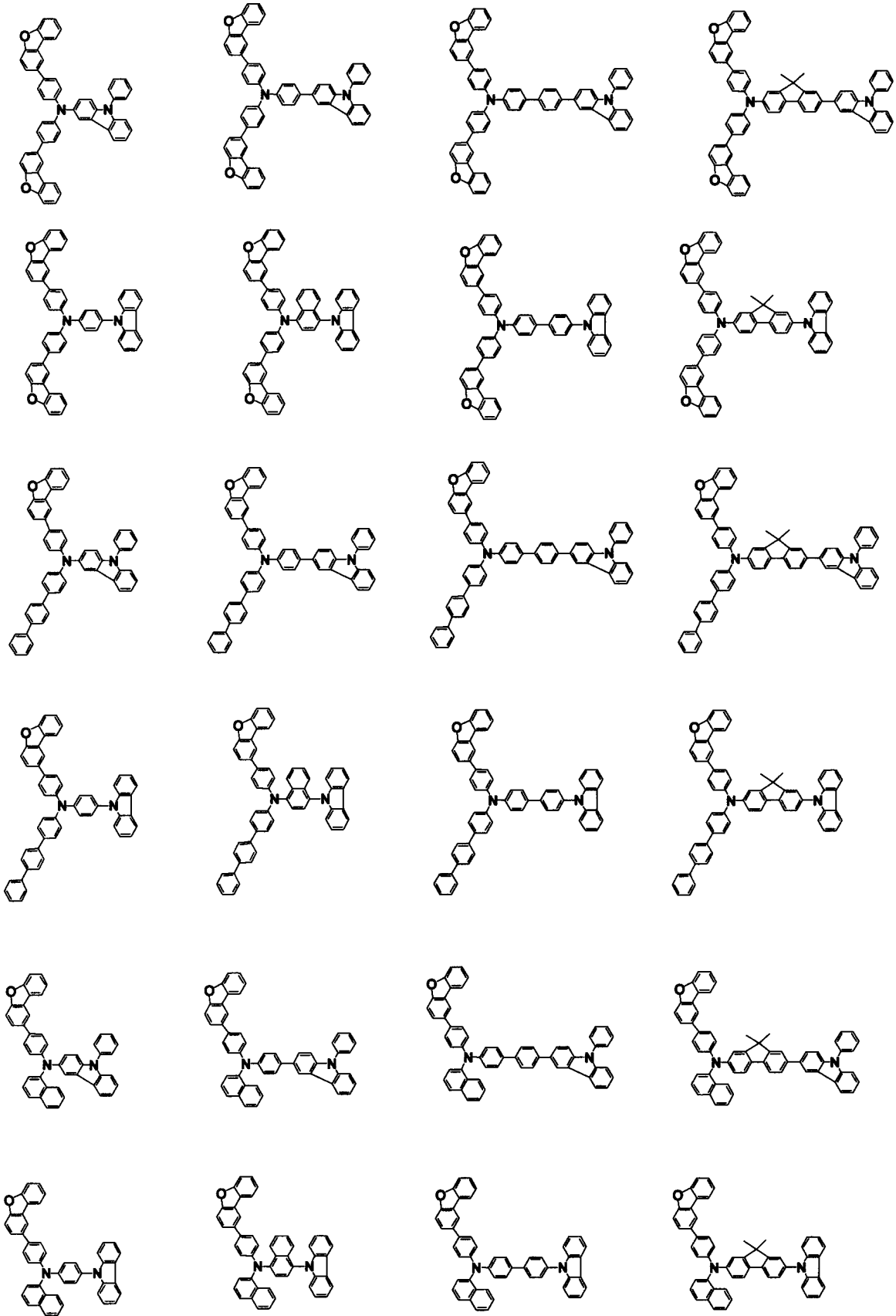
20



30

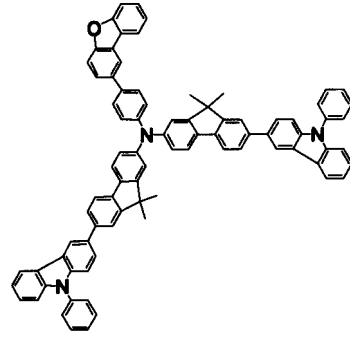
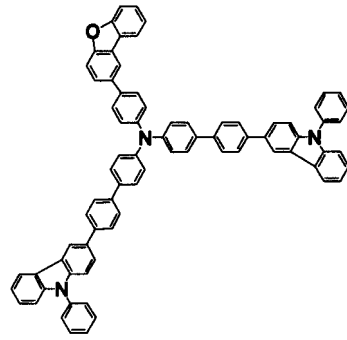
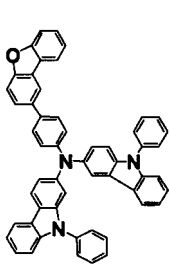
【 0 0 7 4 】

【化 3 3】

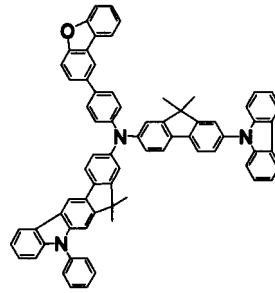
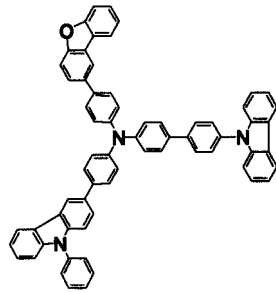
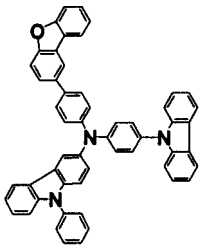


【 0 0 7 5 】

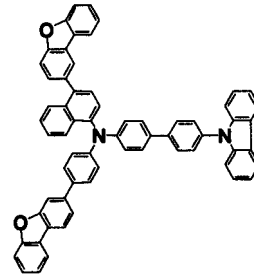
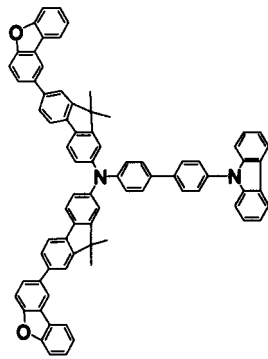
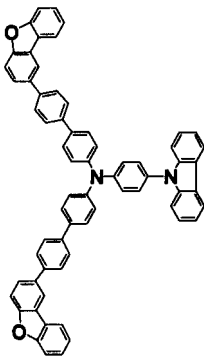
【化 3 4】



10



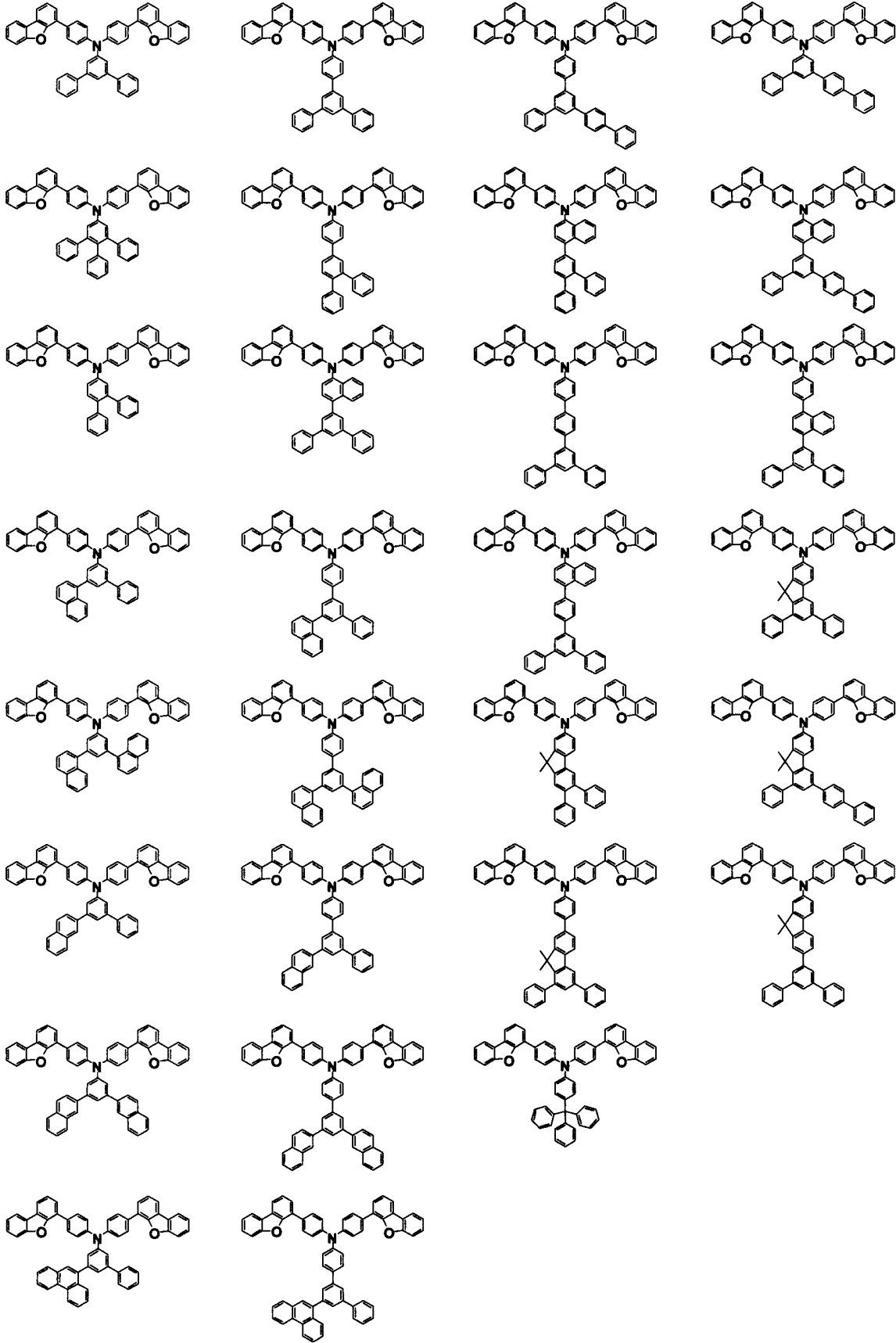
20



30

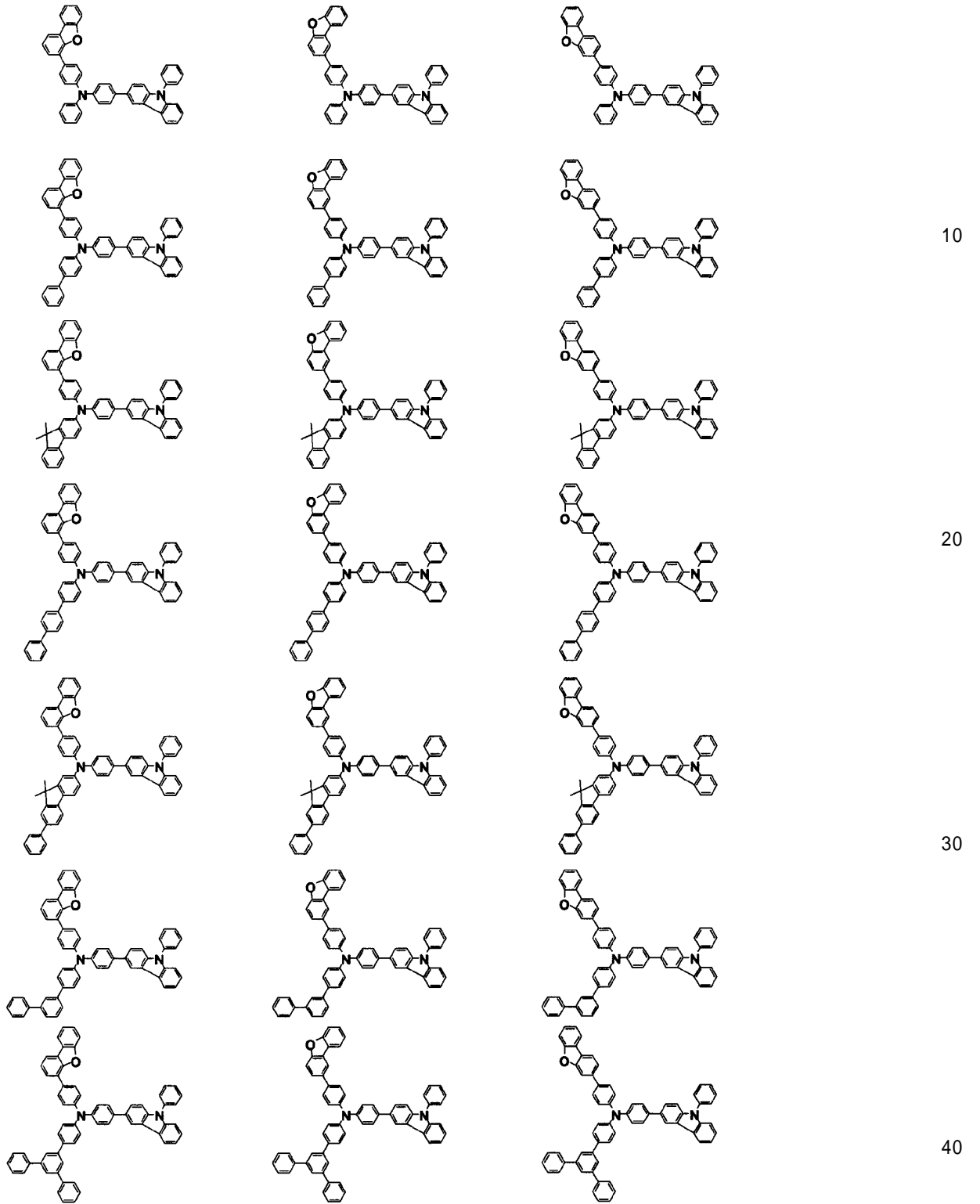
【 0 0 7 6 】

【化 3 5】



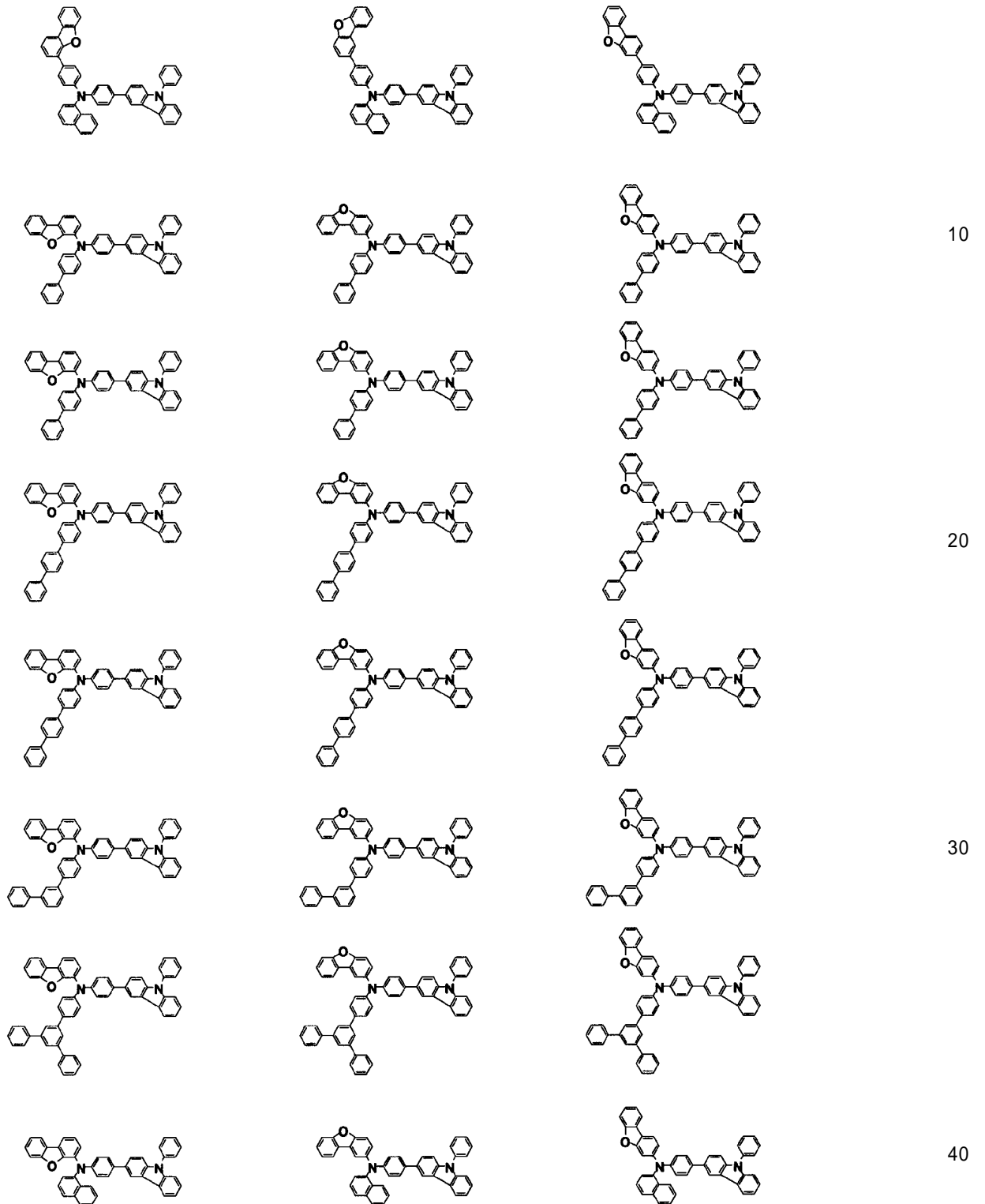
【 0 0 7 7 】

【化 3 6】



【 0 0 7 8 】

## 【化 3 7】



## 【0079】

また、正孔輸送層に含まれる前記一般式(1)、(2)で表される化合物は、1種類に限定されない。つまり、第1正孔輸送層は、前記一般式(1)で表される化合物のうち、複数含有していてもよく、第2正孔輸送層は、前記一般式(2)で表される化合物のうち、複数含有していてもよい。

## 【0080】

本発明では、前記正孔輸送層は、前記陽極側から順に、第1正孔輸送層および第2正孔

輸送層を有し、前記第1正孔輸送層は、前記一般式(1)で表されるアミノ化合物を有し、前記第2正孔輸送層は、前記一般式(2)で表される化合物を含有する。

【0081】

本発明では、前記一般式(1)で表される化合物は、窒素原子数が4以下、かつ分子量が300以上1500以下であることが好ましい。

このような構成によれば、蒸着時に熱分解が起こらず、Tgが高く安定した薄膜が得られる。すなわち、薄膜を蒸着法により形成することが可能である。

ここで、分子量が300未満であると、Tgが低くなり薄膜の安定性に欠けるので好ましくない。一方、分子量が1500を超えると、蒸着時の熱による分解が発生しやすいので好ましくない。

なお、前記一般式(1)で表される化合物としては高分子材料も好適に用いることができ、この場合は塗布法が好ましく用いられることから、分子量の上限は制限無く用いることができる。

【0082】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、下記(26)~(34)を満たすものが好ましい。

(26)前記正孔輸送層が、前記発光層に接合している。

具体的には、前記第2正孔輸送層が、前記発光層に接合していることが好ましい。

(27)前記発光材料が、Ir, Pt, Os, Cu, Ru, Re, Auから選択される金属を含有する金属錯体化合物である。

このような金属錯体化合物を発光材料として用いた場合、発光の量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができる。

特に、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体が好ましく、イリジウム錯体および白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。

(28)前記発光材料において、中心金属原子と配位子に含まれる炭素原子とが、オルトメタル結合している。

このような構成によれば、発光の量子収率をさらに向上することができる。

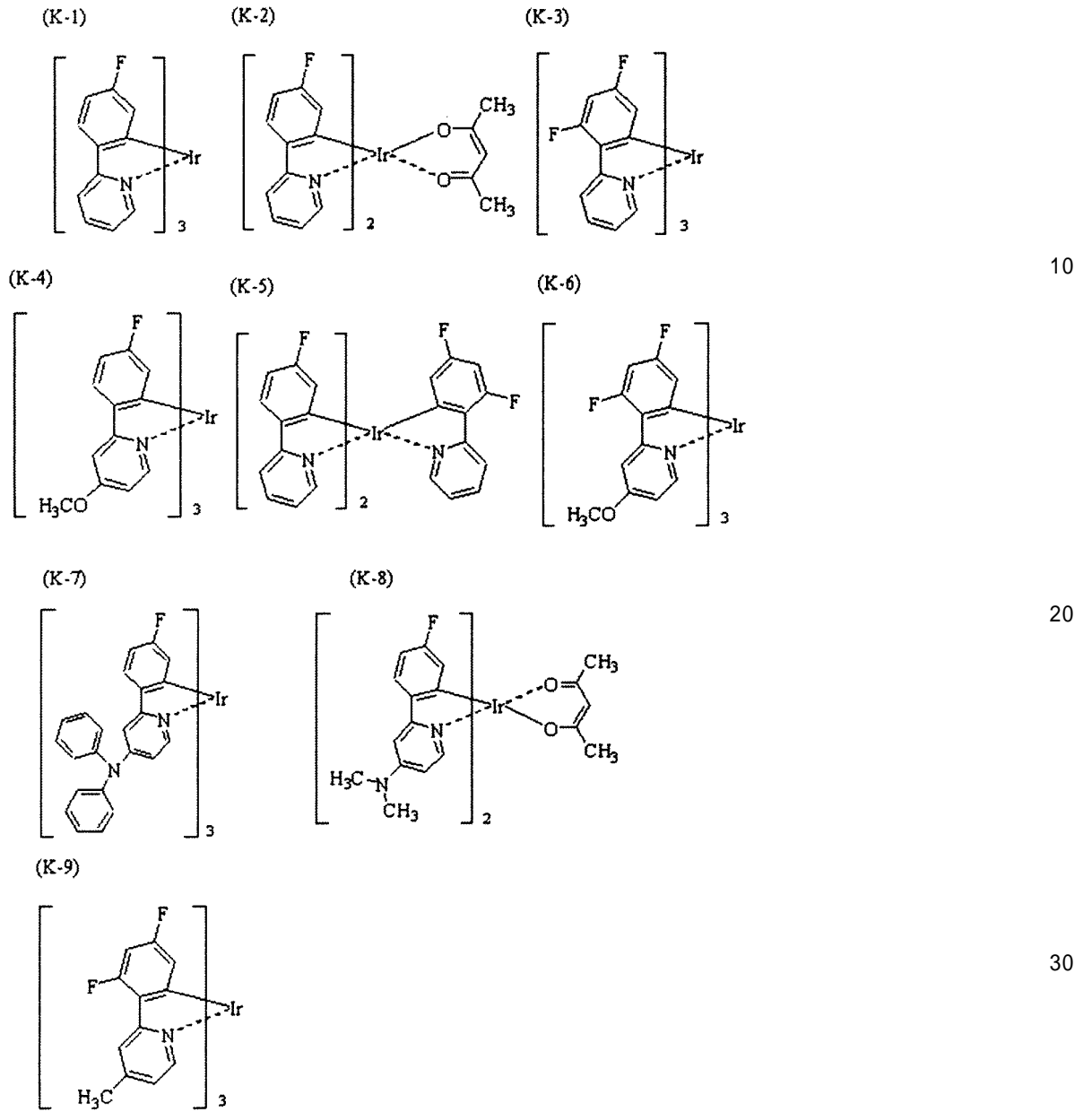
オルトメタル化金属錯体としては、例えば、以下に示すイリジウム錯体が好ましい。

【0083】

10

20

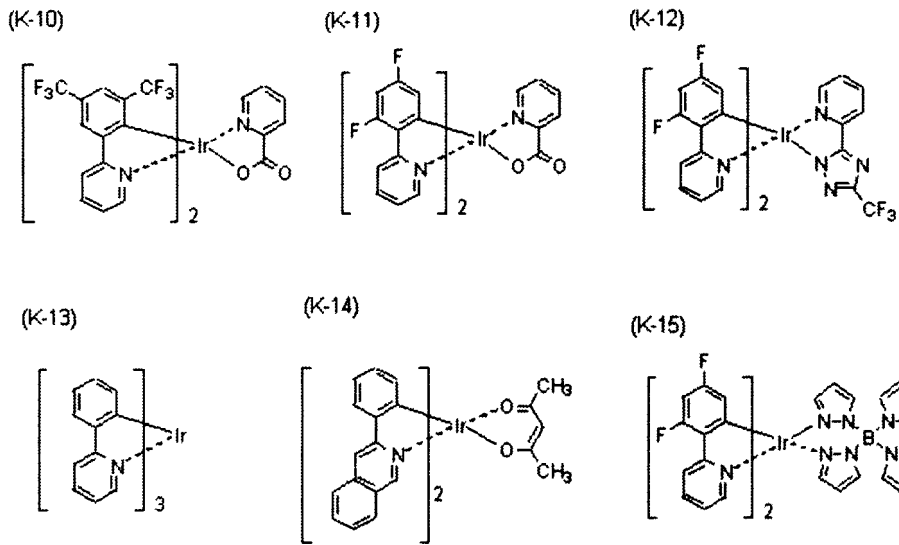
【化38】



【0084】



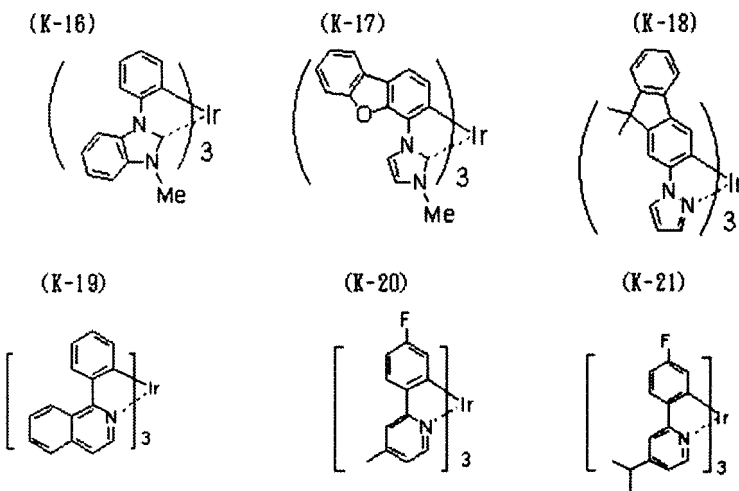
【化39】



10

【0085】

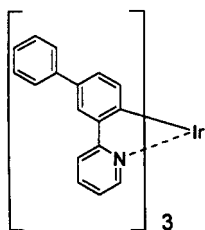
【化40】



20

30

D1



40

【0086】

(29) 前記ホスト材料の励起3重項エネルギーギャップが、2.0 eV以上3.2 eV以下である。

このような構成によれば、発光材料への効果的なエネルギー移動が可能になる。

ここで、励起3重項エネルギーギャップEg(T)は、例えば、発光スペクトルに基づいて以下のように規定できる。

すなわち、測定対象の材料をEPA溶媒(容積比でジエチルエーテル:イソペンタン:エタノール=5:5:2)に10 μmol/Lで溶解し、燐光測定用試料とする。

50

そして、燐光測定用試料を石英セルに入れ、77 Kに冷却し、励起光を照射し、放射される燐光の波長を測定する。

得られた燐光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、この接線とベースラインとの交点の波長値をエネルギーに換算した値を励起3重項エネルギーギャップ  $E_g(T)$  とする。

なお、測定には市販の測定装置 F-4500 (日立製) を用いることができる。

#### 【0087】

(30) 前記陰極と前記有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されている。

還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

10

#### 【0088】

アルカリ金属としては、Na (仕事関数: 2.36 eV)、K (仕事関数: 2.28 eV)、Rb (仕事関数: 2.16 eV)、Cs (仕事関数: 1.95 eV) 等が挙げられ、仕事関数が 2.9 eV 以下のものが特に好ましい。これらのうち好ましくは K、Rb、Cs、さらに好ましくは Rb 又は Cs であり、最も好ましくは Cs である。

アルカリ土類金属としては、Ca (仕事関数: 2.9 eV)、Sr (仕事関数: 2.0 ~ 2.5 eV)、Ba (仕事関数: 2.52 eV) 等が挙げられ、仕事関数が 2.9 eV 以下のものが特に好ましい。

希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb 等が挙げられ、仕事関数が 2.9 eV 以下のものが特に好ましい。

20

以上の金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機 EL 素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

#### 【0089】

アルカリ金属化合物としては、 $Li_2O$ 、 $Cs_2O$ 、 $K_2O$  等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF 等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、 $Li_2O$ 、NaF のアルカリ酸化物又はアルカリフッ化物が好ましい。

アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO 及びこれらを混合した  $Ba_xSr_{1-x}O$  ( $0 < x < 1$ ) や、 $Ba_xCa_{1-x}O$  ( $0 < x < 1$ ) 等が挙げられ、BaO、SrO、CaO が好ましい。

30

希土類金属化合物としては、 $YbF_3$ 、 $ScF_3$ 、 $ScO_3$ 、 $Y_2O_3$ 、 $Ce_2O_3$ 、 $GdF_3$ 、 $TbF_3$  等が挙げられ、 $YbF_3$ 、 $ScF_3$ 、 $TbF_3$  が好ましい。

#### 【0090】

アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ピピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、ニジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

40

#### 【0091】

還元性ドーパントの添加形態としては、界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比で有機物:還元性ドーパント = 100:1 ~ 1:100、好ましくは 5:1 ~ 1:5 である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材

50

料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1~15nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み0.05~1nmで形成する。

また、本発明の有機EL素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント=5：1~1：5であると好ましく、2：1~1：2であるとさらに好ましい。

【0092】

(31)前記発光層と前記陰極との間に電子注入層を有し、前記電子注入層が、含窒素環誘導体を主成分として含有する。

10

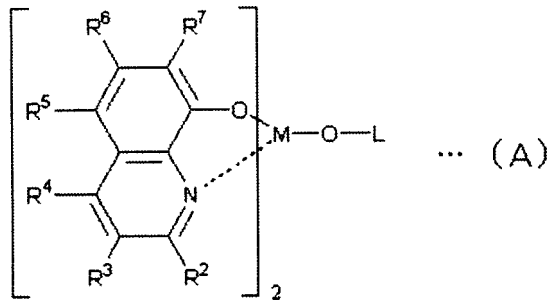
ここで、「主成分として」とは、含窒素環誘導体が電子注入層中に、少なくとも50質量%以上含まれていることをいう。

電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を1個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。

含窒素環誘導体としては、例えば、下記式(A)で表されるものが好ましい。

【0093】

【化41】



20

【0094】

式(A)中、R<sup>2</sup>~R<sup>7</sup>は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、又は炭素数1~40の炭化水素基であり、これらは置換されていてもよい。

30

ハロゲン原子の例としては、フッ素、塩素等が挙げられる。また、置換されていても良いアミノ基の例としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基と、前記アミノ基と同様のものが挙げられる。

炭素数1~40の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基等が挙げられる。アルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基の例としては、前記と同様のものが挙げられ、アルコキシカルボニル基は-COOY'と表され、Y'の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。

40

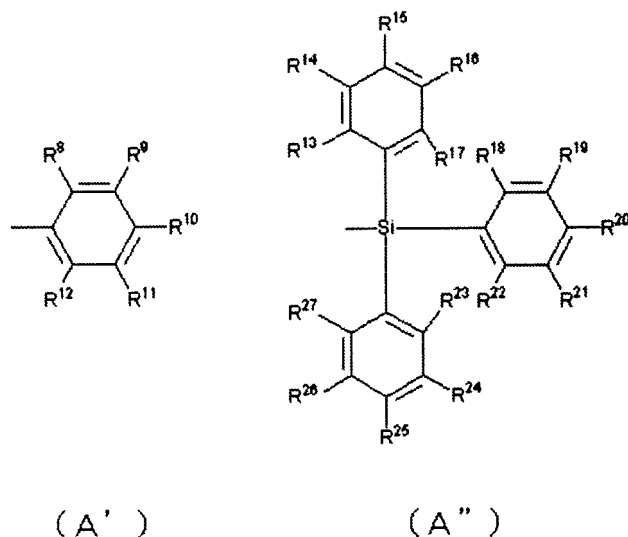
【0095】

Mは、アルミニウム(Al)、ガリウム(Ga)又はインジウム(In)であり、アルミニウム(Al)であると好ましい。

前記式(A)のLは、下記式(A')又は(A'')で表される基である。

【0096】

## 【化 4 2】



10

## 【0097】

式(A')中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

20

また、式(A'')中、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数1～40の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。

## 【0098】

一般式(A')及び(A'')の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示す炭素数1～40の炭化水素基としては、前記 $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

また、 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の2個の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

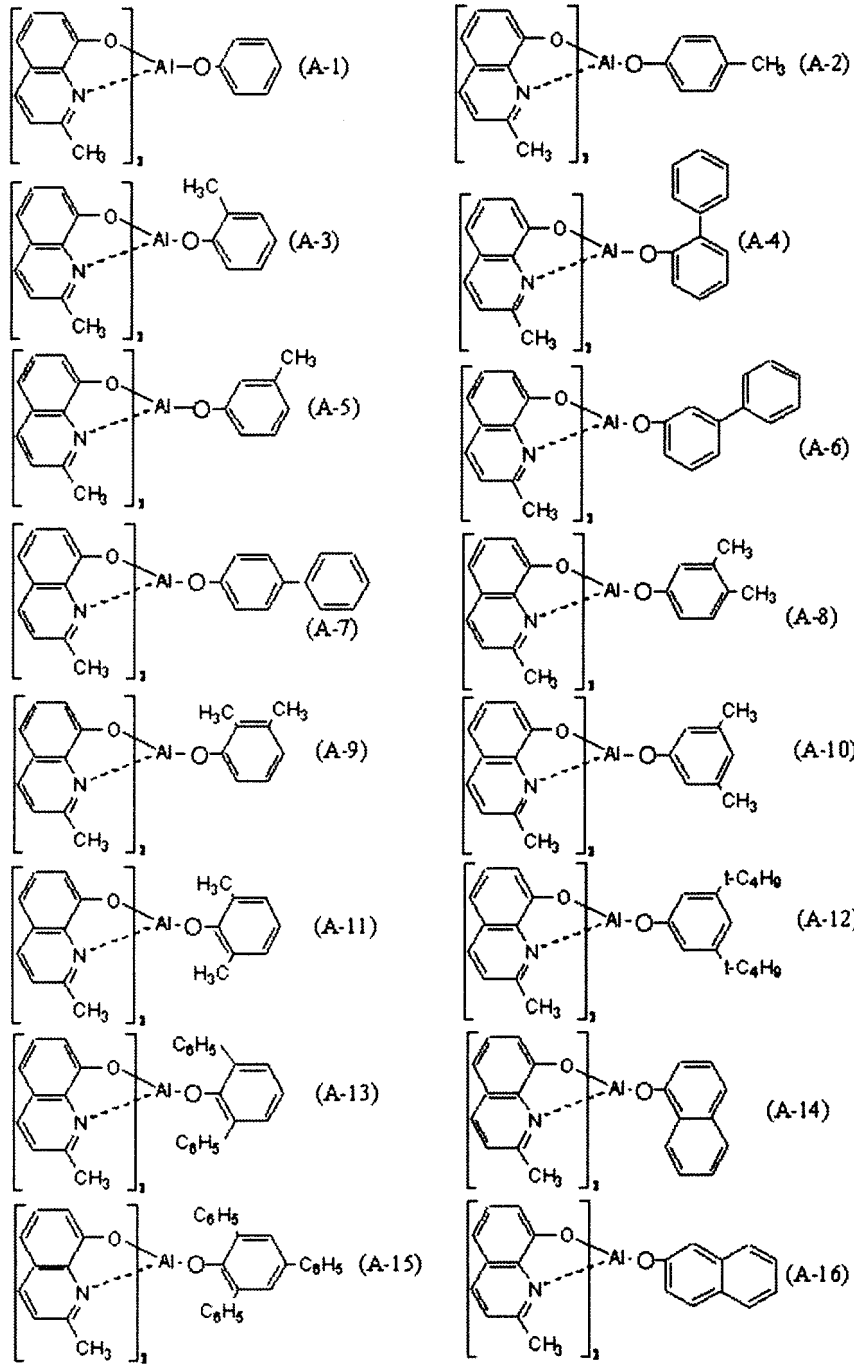
30

## 【0099】

一般式(A)で表される含窒素環の金属キレート錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

## 【0100】

【化 4 3】



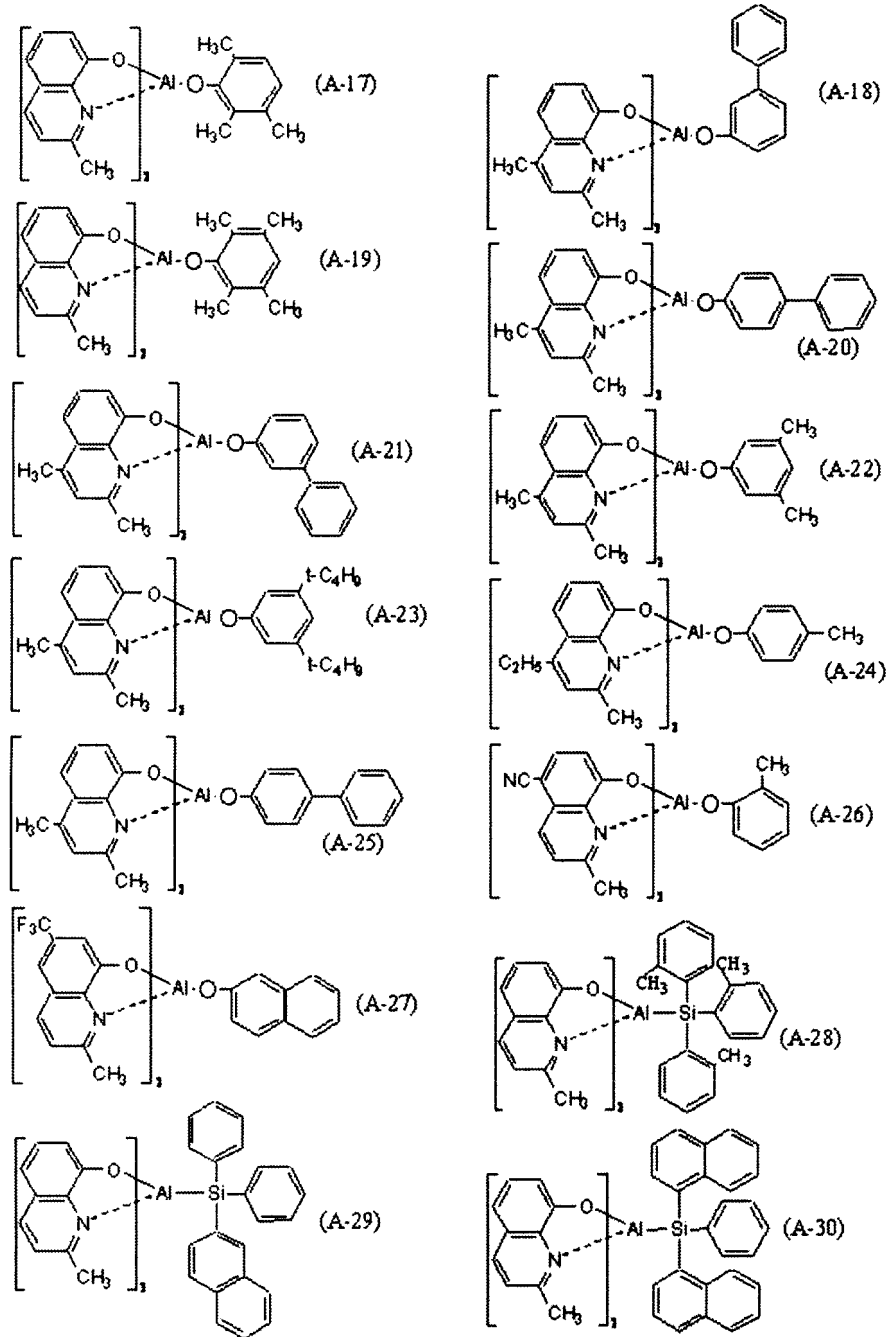
10

20

30

【 0 1 0 1 】

【化 4 4】



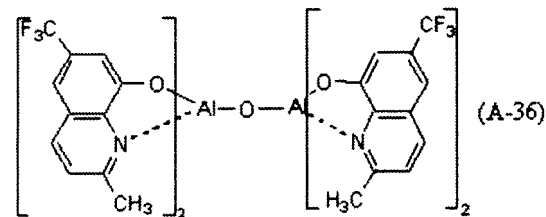
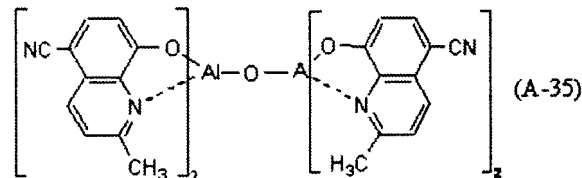
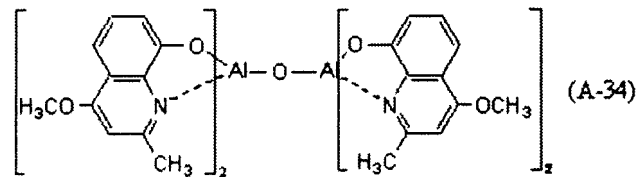
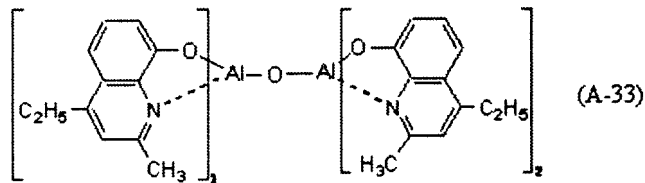
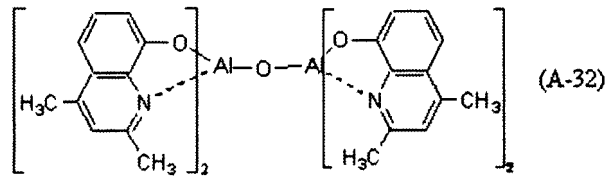
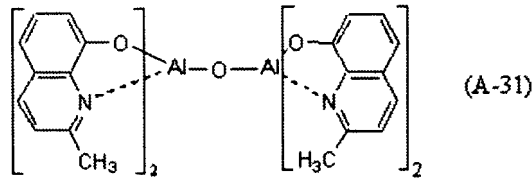
10

20

30

【 0 1 0 2 】

## 【化45】

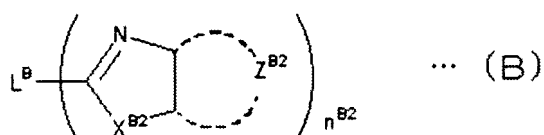


## 【0103】

電子注入層の主成分である含窒素環誘導体としては、含窒素5員環誘導体も好ましく、含窒素5員環としては、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記式(B)で表される化合物である。

## 【0104】

## 【化46】



## 【0105】

10

20

30

40

50

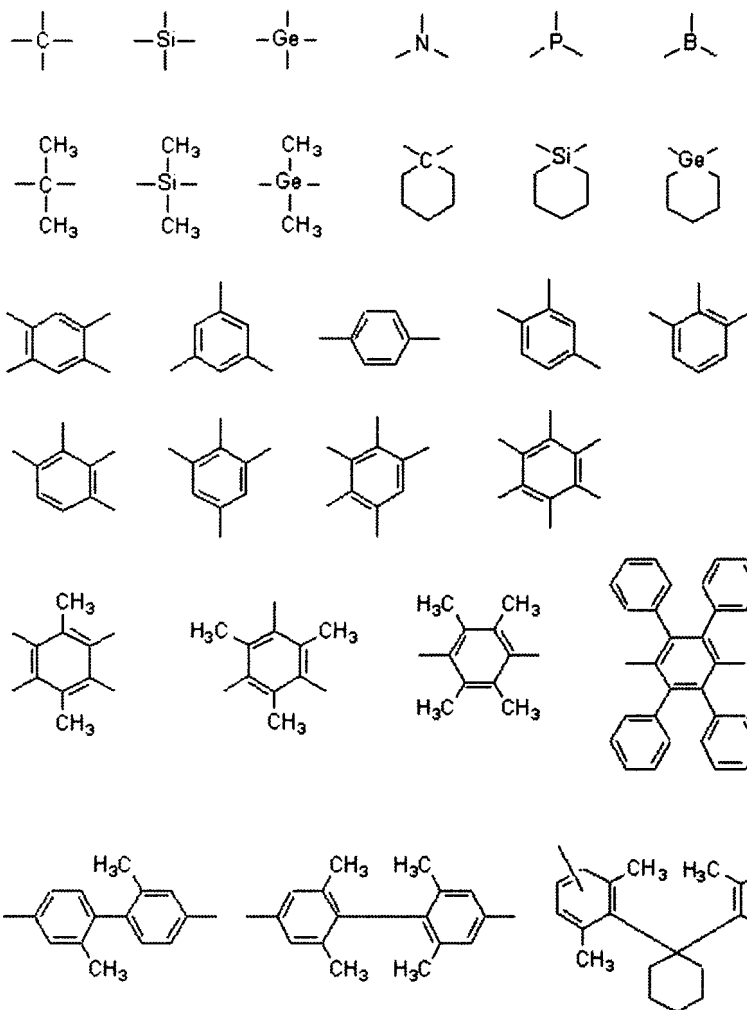
式(B)中、 $L^B$ は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属(例えば、バリウム、ベリリウム)、アリール基、芳香族複素環等が挙げられ、これらのうち炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、アリール基、芳香族複素環基が好ましく、炭素原子、ケイ素原子、アリール基、芳香族複素環基がさらに好ましい。

$L^B$ のアリール基及び芳香族複素環基は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

$L^B$ の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。

【0106】

【化47】



【0107】

式(B)における $X^{B2}$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $=N-R^{B2}$ を表す。 $R^{B2}$ は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基を表す。

$R^{B2}$ の脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基(好ましくは炭素数1 ~

10

20

30

40

50



20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、イソプロピル、t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。) 、アルケニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8のアルケニル基であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。) 、アルキニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8のアルキニル基であり、例えば、プロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。) であり、アルキル基であると好ましい。

【0108】

R<sup>B2</sup>のアリール基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、さらに好ましくは炭素数6～12のアリール基であり、例えば、フェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

10

【0109】

R<sup>B2</sup>の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、さらに好ましくは炭素数2～10の複素環基であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

20

30

【0110】

R<sup>B2</sup>で表される脂肪族炭化水素基、アリール基及び複素環基は置換基を有していてもよく、置換基としては前記L<sup>B</sup>で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

R<sup>B2</sup>として好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、さらに好ましくは炭素数6～12のもの)又はアリール基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、さらに好ましくは炭素数2～10のもの)である。

X<sup>B2</sup>として好ましくは-O-、=N-R<sup>B2</sup>であり、より好ましくは=N-R<sup>B2</sup>であり、特に好ましくは=N-R<sup>B2</sup>である。

40

【0111】

Z<sup>B2</sup>は、芳香族環を形成するために必要な原子群を表す。Z<sup>B2</sup>で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族複素環のいずれでもよく、具体例としては、例えば、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

50

## 【 0 1 1 2 】

Z<sup>B2</sup>で形成される芳香族環は、さらに他の環と縮合環を形成してもよく、置換基を有していてもよい。置換基としては前記L<sup>B</sup>で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

10

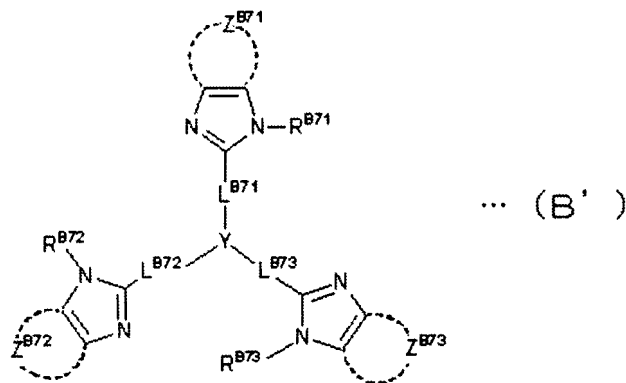
n<sup>B2</sup>は、1～4の整数であり、2～3であると好ましい。

## 【 0 1 1 3 】

前記式(B)で表される含窒素5員環誘導体のうち、下記式(B')で表される化合物がさらに好ましい。

## 【 0 1 1 4 】

## 【化48】



20

30

## 【 0 1 1 5 】

式(B')中、R<sup>B71</sup>、R<sup>B72</sup>及びR<sup>B73</sup>は、それぞれ前記式(B)におけるR<sup>B2</sup>と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

Z<sup>B71</sup>、Z<sup>B72</sup>及びZ<sup>B73</sup>は、それぞれ前記式(B)におけるZ<sup>B2</sup>と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

L<sup>B71</sup>、L<sup>B72</sup>及びL<sup>B73</sup>は、それぞれ連結基を表し、前記式(B)におけるL<sup>B</sup>の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。L<sup>B71</sup>、L<sup>B72</sup>及びL<sup>B73</sup>は置換基を有していてもよく、置換基としては前記式(B)におけるL<sup>B</sup>で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

40

Yは、窒素原子、1,3,5-ベンゼントリイル基又は2,4,6-トリアジントリイル基を表す。1,3,5-ベンゼントリイル基は2,4,6-位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、アルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

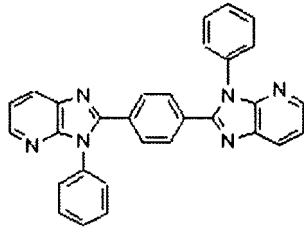
## 【 0 1 1 6 】

前記式(B)又は前記式(B')で表される含窒素5員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

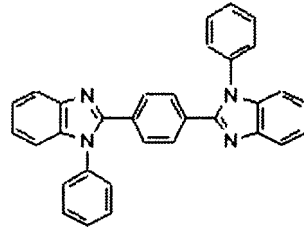
## 【 0 1 1 7 】

【化 4 9】

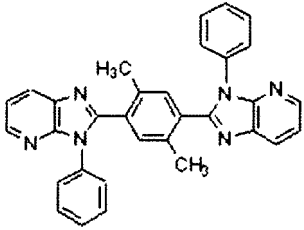
(B-1)



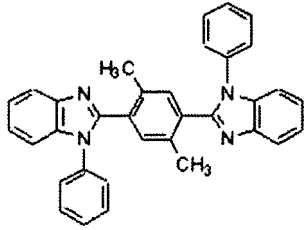
(B-5)



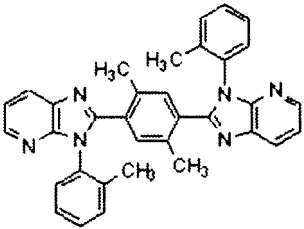
(B-2)



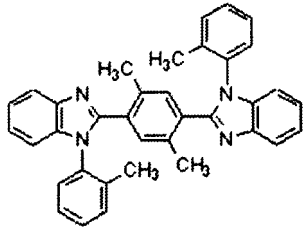
(B-6)



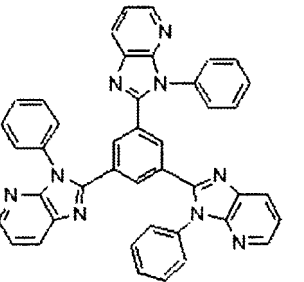
(B-3)



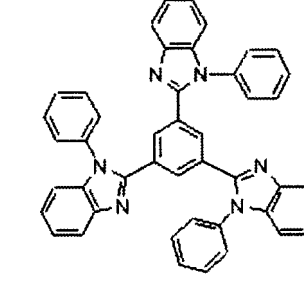
(B-7)



(B-4)



(B-8)



【 0 1 1 8 】

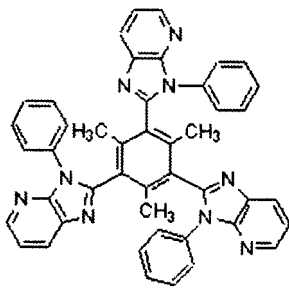
10

20

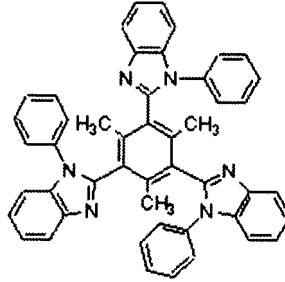
30

## 【化50】

(B-9)

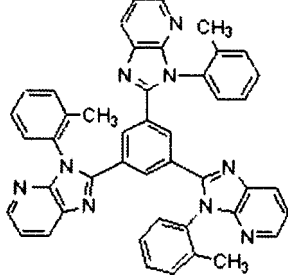


(B-13)

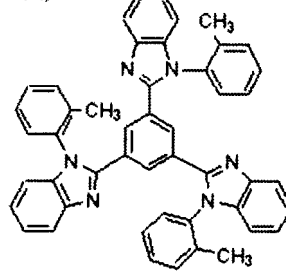


10

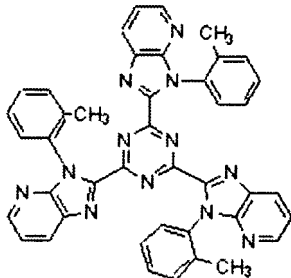
(B-10)



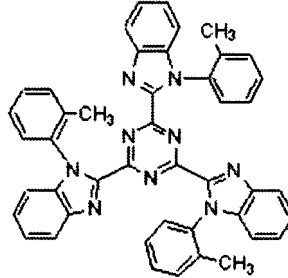
(B-14)



(B-11)

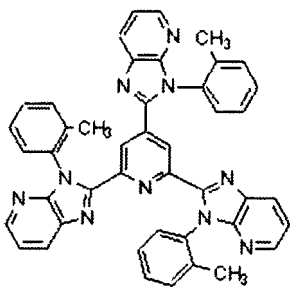


(B-15)

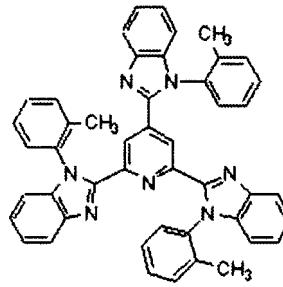


20

(B-12)



(B-16)



30

## 【0119】

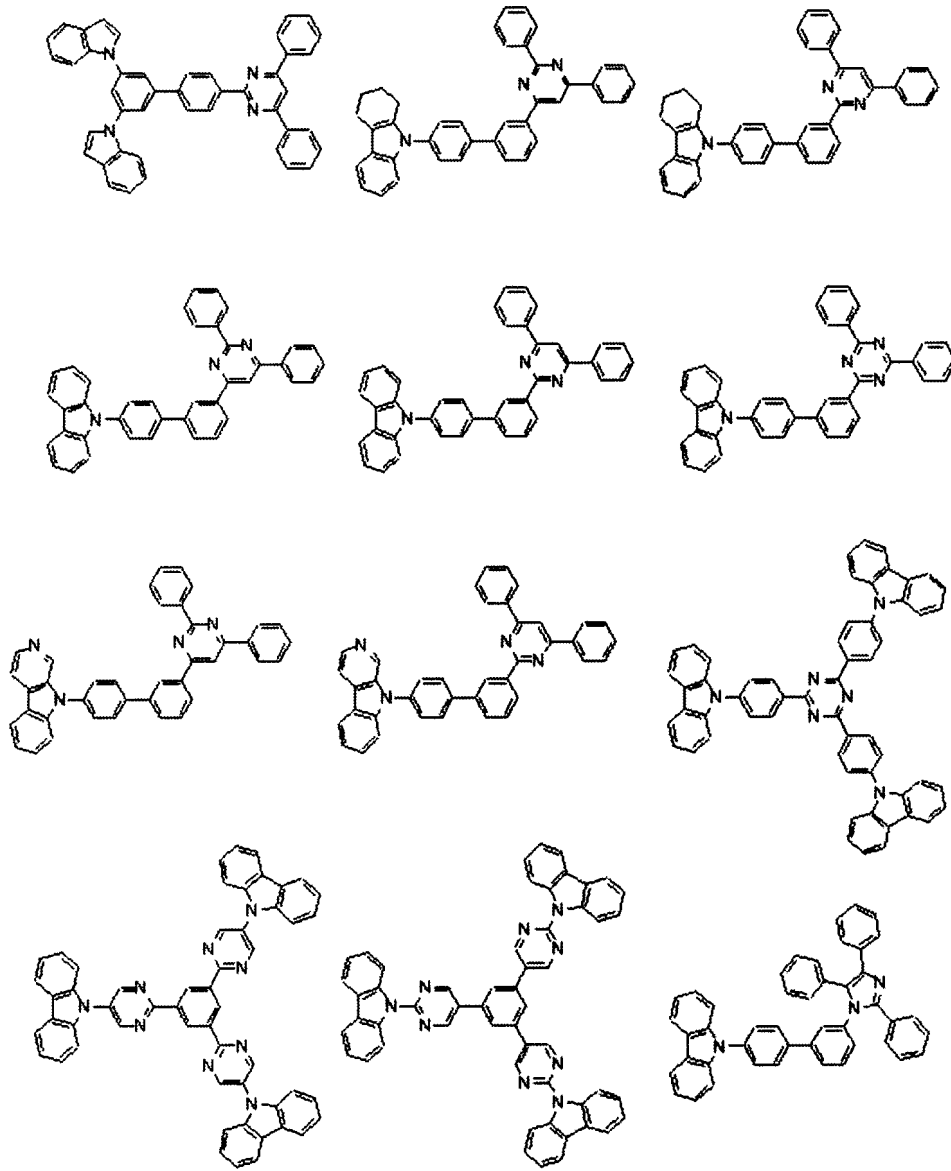
電子注入層及び電子輸送層を構成する化合物としては、電子欠乏性含窒素5員環または電子欠乏性含窒素6員環骨格と、置換又は無置換のインドール骨格、置換又は無置換のカルバゾール骨格、置換又は無置換のアザカルバゾール骨格を組み合わせた構造を有する化合物等も挙げられる。また、好適な電子欠乏性含窒素5員環または電子欠乏性含窒素6員環骨格としては、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、トリアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール、キノキサリン、ピロール骨格及び、それらがお互いに縮合したベンズイミダゾール、イミダゾピリジン等の分子骨格が挙げられる。これらの組み合わせの中で好ましくはピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン骨格と、カルバゾール、インドール、アザカルバゾール、キノキサリン骨格が挙げられる。前述の骨格は置換されていても無置換であってもよい。

40

電子輸送性化合物の具体例を以下に示す。

## 【0120】

【化 5 1】



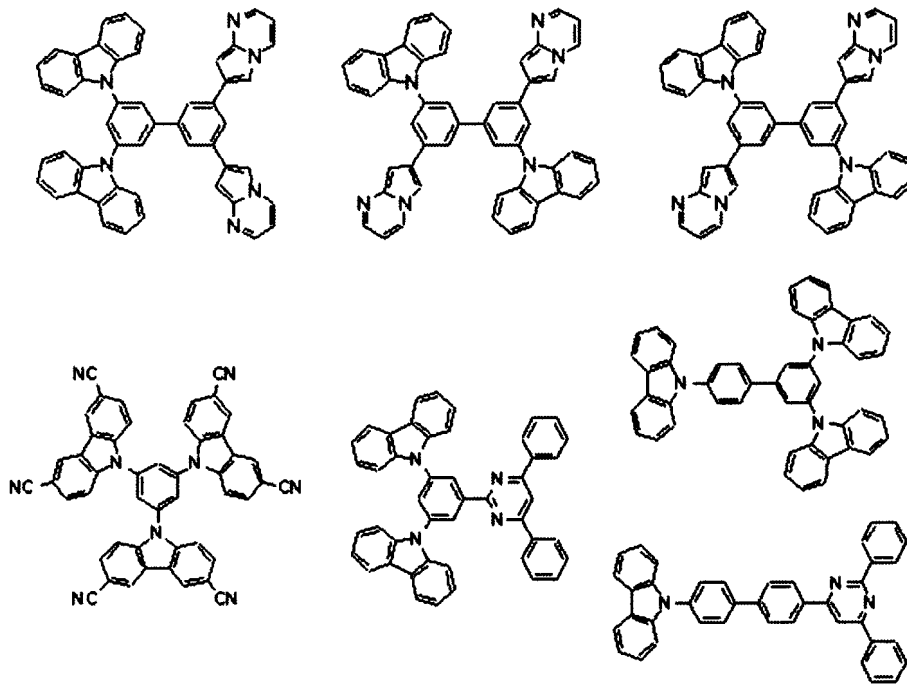
10

20

30

【 0 1 2 1】

## 【化52】



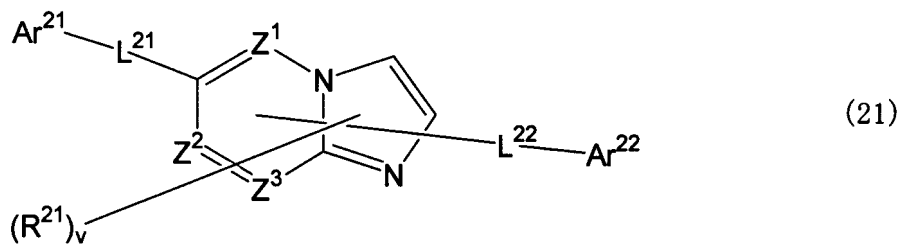
10

20

## 【0122】

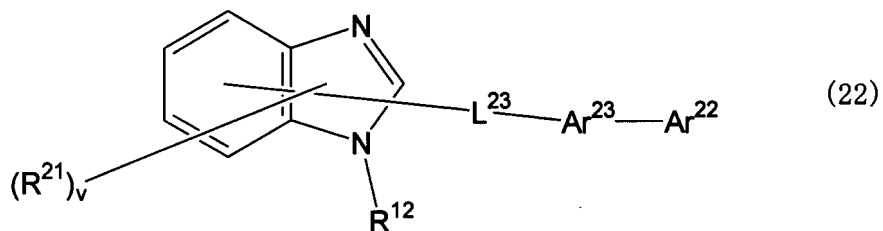
特に、本発明の有機EL素子においては、前記含窒素五員誘導体として、下記式(21)~(23)のいずれかで表されるベンゾイミダゾール誘導体が好ましい。

## 【化53】



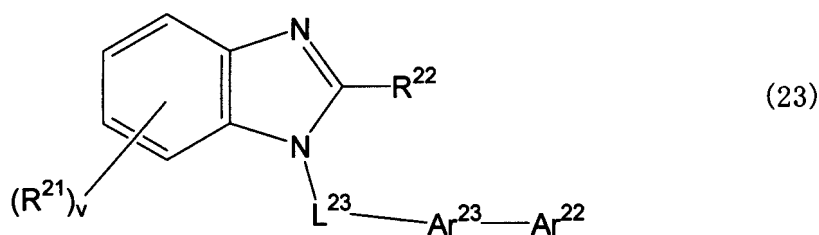
(21)

30



(22)

40



(23)

## 【0123】

(式(21)~(23)中、 $Z^1$ 、 $Z^2$ 及び $Z^3$ は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

50

$R^{21}$ 及び $R^{22}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリール基、炭素数1～20のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数1～20のアルキル基又は炭素数1～20のアルコキシ基である。

$v$ は0～5の整数であり、 $v$ が2以上の整数であるとき、複数の $R^{21}$ は互いに同一でも異なってもよい。また、隣接する複数の $R^{21}$ 同士が互いに結合して、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素環を形成していてもよい。

$Ar^{21}$ は、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリール基である。

$Ar^{22}$ は、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、ハロゲン原子が置換した炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリール基である。

但し、 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ のいずれか一方は、置換もしくは無置換の炭素数10～50の縮合環基又は置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基である。

$Ar^{23}$ は、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基又は置換もしくは無置換の炭素数3～50のヘテロアリーレン基である。

$L^{21}$ 、 $L^{22}$ 及び $L^{23}$ は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリーレン基、置換もしくは無置換の環形成原子数9～50のヘテロ縮合環基又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。)

【0124】

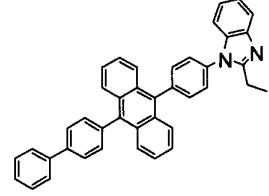
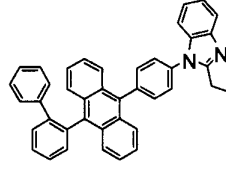
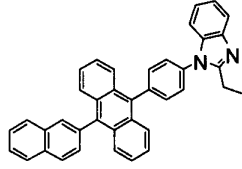
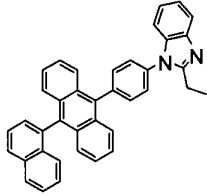
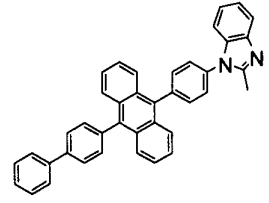
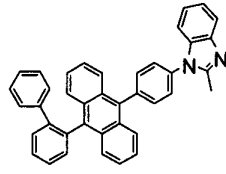
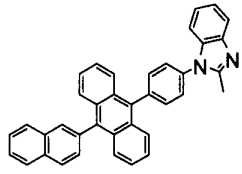
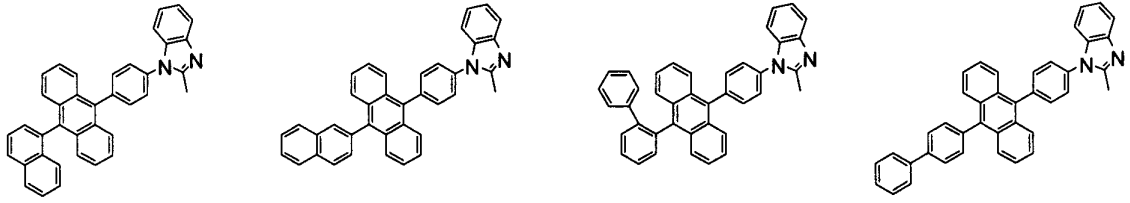
前記式(21)～(23)で表される含窒素5員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

【0125】

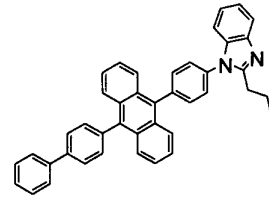
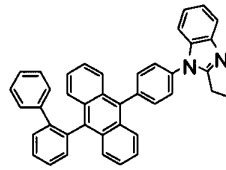
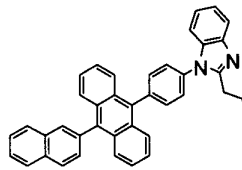
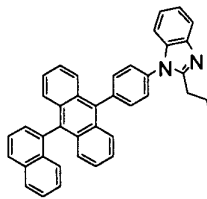
10

20

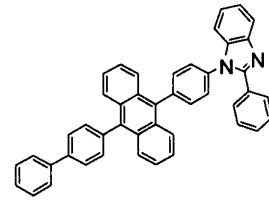
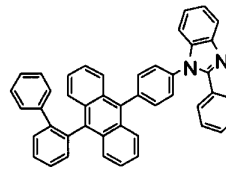
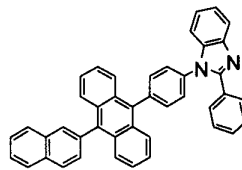
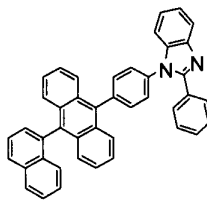
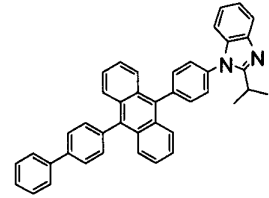
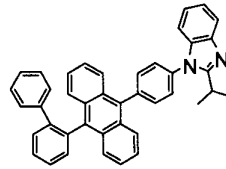
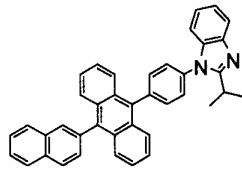
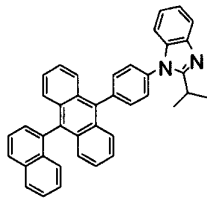
【化54】



10



20

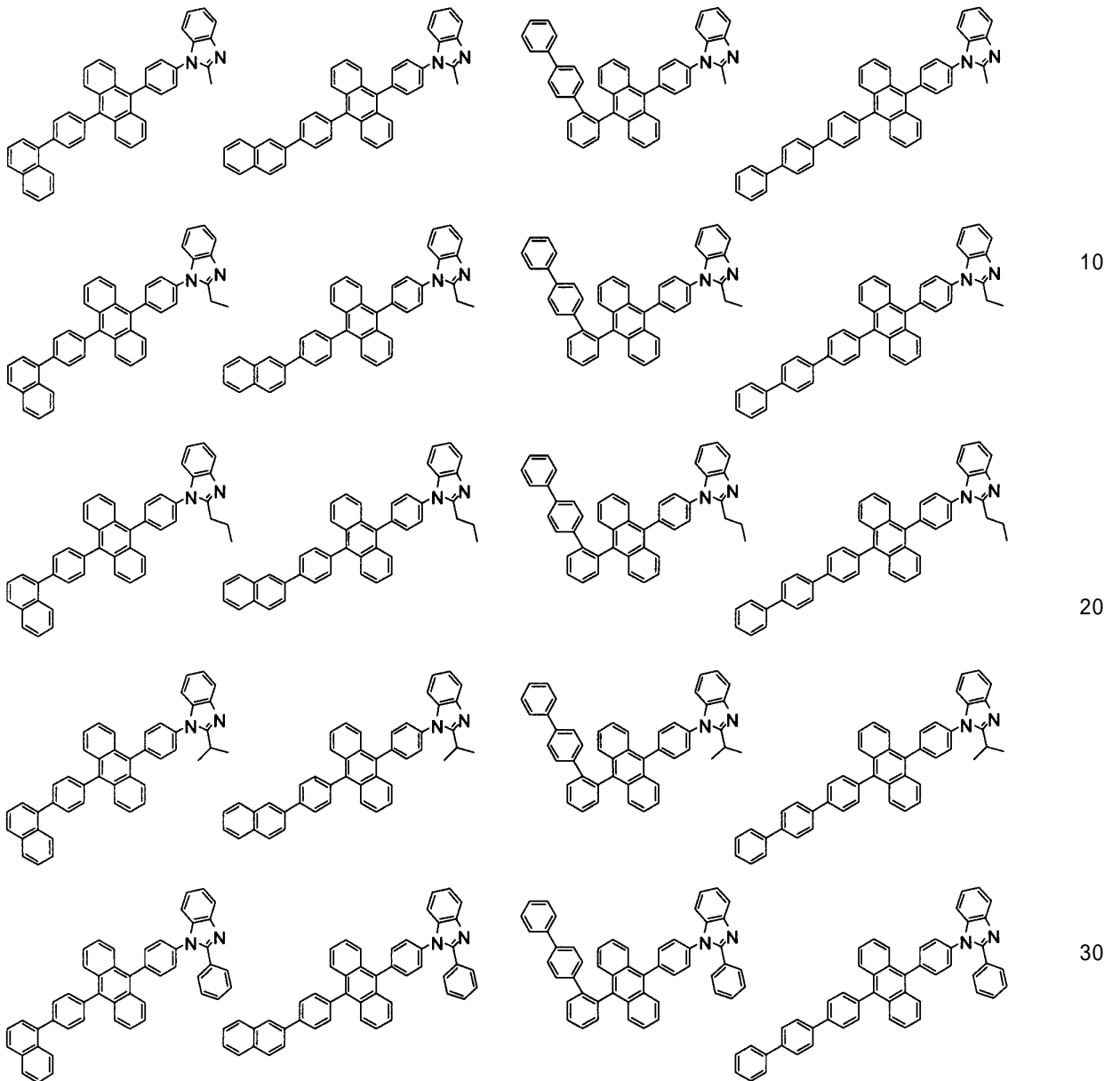


30

【0126】



## 【化55】



## 【0127】

電子注入層及び電子輸送層は、前記材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。これらは電子欠乏性含窒素ヘテロ環基であることが好ましい。

## 【0128】

また、前記電子注入層の構成成分として、前記含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲニド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲニドとしては、例えば、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{Na}_2\text{Se}$ 及び $\text{Na}_2\text{O}$ が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲニドとしては、例えば、 $\text{CaO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BeO}$ 、 $\text{BaS}$ 及び $\text{CaSe}$ が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 $\text{LiF}$ 、

10

20

30

40

50

NaF、KF、LiCl、KCl及びNaCl等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF<sub>2</sub>、BaF<sub>2</sub>、SrF<sub>2</sub>、MgF<sub>2</sub>及びBeF<sub>2</sub>等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、前記アルカリ金属カルコゲニド、アルカリ土類金属カルコゲニド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

10

また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

#### 【0129】

本発明では、前記発光材料は、発光の極大波長が500nm以下の金属錯体であることが好ましい。

発光波長の短い発光材料は、一般に、励起3重項エネルギーギャップが大きい。

ここで、米国特許2006-0088728号公報に記載の有機EL素子のように、NPDを用いて正孔輸送層を形成した場合、NPDの励起3重項エネルギーギャップが2.5eV以下であるため、正孔輸送層の3重項エネルギーギャップが発光材料の励起3重項エネルギーギャップよりも小さくなる場合がある。

20

この場合、発光層の励起3重項エネルギーが隣接する正孔輸送層に漏洩し、発光に寄与することなく失活するため、発光効率が低下するおそれがある。

これに対し、本発明では、NPDよりも励起3重項エネルギーギャップが大きい前記式(1)~(5)の化合物を用いて第1正孔輸送層、第2正孔輸送層を形成するので、発光波長の短い発光材料を採用した場合にも、高い発光効率を維持することができる。

#### 【0130】

(32)前記正孔輸送層に電子受容性物質が接合されている。

このような構成によれば、後述の特許に記載された効果により低電圧駆動および高効率発光が実現する。

30

本発明の第1正孔輸送層または第2正孔輸送層に添加または接合される電子受容性物質としては、特許公報第3614405号、3571977号または米国特許4,780,536に記載されているヘキサアザトリフェニレン誘導体等の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物、酸化モリブデンなどの電子受容性無機酸化物、TCNQ誘導体等の電子受容性有機化合物等も好適に使用することができる。

#### 【0131】

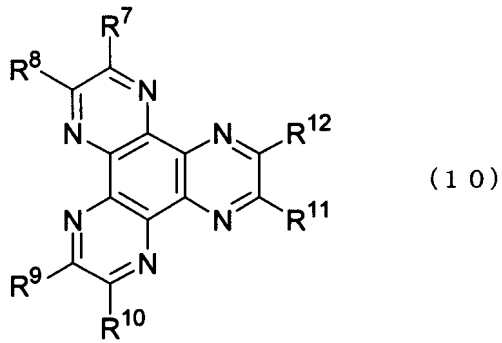
本発明の正孔輸送層は、第1正孔輸送層のさらに陽極側に、電子受容性化合物を含有する層を有することが好ましい。

#### 【0132】

電子受容性化合物としては、下記一般式(10)又は(11)で表されるものが好ましく用いられる。

40

## 【化56】



10

## 【0133】

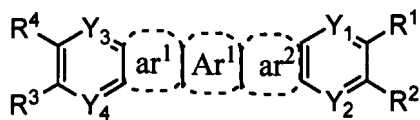
[上記一般式(10)中、 $R^7 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立にシアノ基、 $-\text{CONH}_2$ 、カルボキシル基、もしくは $-\text{COOR}^{13}$ ( $R^{13}$ は、炭素数1~20のアルキル基である。)を表すか、又は、 $R^7$ 及び $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ 、もしくは $R^{11}$ 及び $R^{12}$ が、互いに結合して $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ で示される基を表す。]

上記アルキル基としては、直鎖、分岐又は環状のものが挙げられ、好ましくは炭素数1~12、より好ましくは炭素数1~8のものであり、具体的には、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-オクチル基、*n*-デシル基、*n*-ヘキサデシル基、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

20

## 【0134】

## 【化57】



(11)

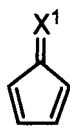
30

## 【0135】

[上記一般式(11)中、 $\text{Ar}^1$ は、環形成炭素数6~24の縮合環、又は環形成原子数6~24の複素環である。 $\text{ar}^1$ 及び $\text{ar}^2$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、下記式(i)もしくは(ii)である。

## 【0136】

## 【化58】



(i)



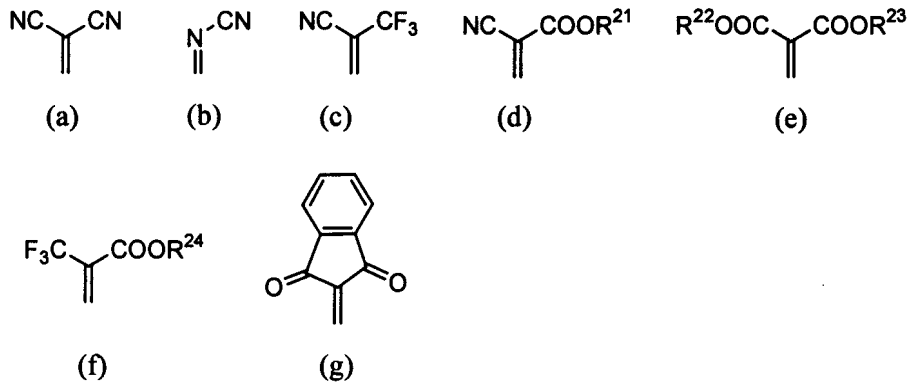
(ii)

40

{式中、 $X^1$ 及び $X^2$ は互いに同一でも異なっていてもよく、下記式(a)~(g)で表わされる二価の基のいずれかである。

## 【0137】

## 【化59】



10

## 【0138】

(式中、 $R^{21} \sim R^{24}$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基又は置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基であり、 $R^{22}$ と $R^{23}$ は互いに結合して環を形成してもよい。)

一般式(11)中の $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ互いに同一でも異なっていてもよく、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。 $R^1 \sim R^4$ のうち互いに隣接するものは互いに結合して環を形成してもよい。 $Y^1 \sim Y^4$ は互いに同一でも異なっていてもよく、 $-N=$ 、 $-CH=$ 、又は $C(R^5)=$ であり、 $R^5$ は、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～50のアリール基、置換もしくは無置換の環形成原子数3～50の複素環基、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のフルオロアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～50の炭素数6～50のアリールオキシ基、又はシアノ基である。]

20

30

## 【0139】

図1に、本発明の有機EL素子の一実施態様の概略構成を示す。

有機EL素子1は、透明な基板2と、陽極3と、陰極4と、陽極3と陰極4との間に配置された発光層5と、を有する。発光層5と陽極3との間には、陽極3側から順に第1正孔輸送層61および第2正孔輸送層62を有する正孔輸送層6が、発光層5と陰極4との間には、電子注入・輸送層7が設けられている。

## 【0140】

第1正孔輸送層61は、前記一般式(1)で表される化合物を含有し、第2正孔輸送層62は、前記一般式(2)で表される化合物を含有する。

ここで、第1正孔輸送層61、第2正孔輸送層62に含まれる前記一般式(1)及び(2)で表される化合物は、1種類に限定されない。つまり、第1正孔輸送層61は、前記一般式(1)で表される化合物のうち、複数を含有していてもよく、第2正孔輸送層62は、前記一般式(2)で表される化合物のうち、複数を含有していてもよい。

第1正孔輸送層における、前記一般式(1)で表される化合物の含有量は90質量%以上であることが好ましい。また、第2正孔輸送層における、前記一般式(2)で表される化合物の含有量は90質量%以上であることが好ましい。

## 【0141】

40

50

本発明において、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔注入層または正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NSA）、金、銀、白金、銅等が適用できる。また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-スカンジウム-リチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。

#### 【0142】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。

10

例えば、従来公知の真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法により形成することができる。

本発明の有機EL素子の各層の膜厚は特に制限されないが、一般に、膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

#### 【0143】

なお、本発明の有機EL素子は、図1に示した構成に限定されない。

例えば、第1正孔輸送層と陽極3との間には、正孔注入層が設けられていてもよい。

また、正孔輸送層6は、第1正孔輸送層61と第2正孔輸送層62の二層構造である。

20

さらに、発光層5と電子注入・輸送層7との間に正孔障壁層を備えていてもよい。

正孔障壁層によれば、正孔を発光層5に閉じ込めて、発光層5における電荷の再結合確率を高め、発光効率を向上することができる。

#### 【0144】

本願第二の発明の有機EL素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた有機薄膜層と、を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機薄膜層は、ホスト材料と発光材料とを含有する発光層と、前記発光層よりも前記陽極側に設けられた正孔輸送層と、を有し、前記正孔輸送層は、前記陽極から順に、電子受容性化合物を含有する層及び第1正孔輸送層を有し、前記電子受容性化合物が上記一般式(10)で表され、前記第1正孔輸送層は上記一般式(2)で表される化合物を含有する。

30

#### 【0145】

本願第二の発明の有機EL素子のその他の構成は、本願第一の発明の有機EL素子と同様である。

#### 【実施例】

#### 【0146】

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0147】

#### [実施例1-1]

40

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板（旭硝子製）に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄をした後、30分間のUVオゾン洗浄を行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、第1正孔輸送層として前記透明電極を覆うようにして膜厚40nmの下記化合物X1を抵抗加熱により成膜した。

第1正孔輸送層の成膜に続けて、第2正孔輸送層としてこの膜上に膜厚20nmで、下記化合物Y1-1（Af：2.48eV、Eg（S）：3.12eV、Ip：5.60eV）を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第2正孔輸送層上に膜厚40nmで、ホスト材料として化合物H1、燐光

50

発光材料として化合物 D 1 を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物 D 1 の濃度は 7 . 5 % であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層上に膜厚 1 0 n m で、化合物 H B を、抵抗加熱により共蒸着した。この膜は正孔障壁層として機能する。

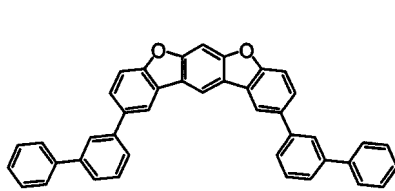
そして、この正孔障壁層成膜に続けて化合物 E T 1 を膜厚 3 0 n m で成膜した。この E T 1 膜は電子輸送層として機能する。

次に、L i F を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 0 . 1 オングストレーム / m i n で膜厚を 1 n m とした。この L i F 膜上に金属 A l を蒸着させ、金属陰極を膜厚 8 0 n m で形成し有機 E L 素子を作製した。

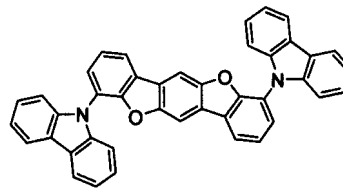
【 0 1 4 8 】

10

【 化 6 0 】

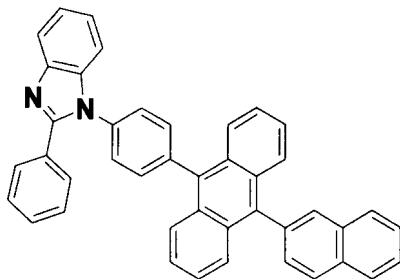


H 1

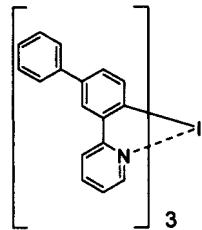


H B

20



E T 1

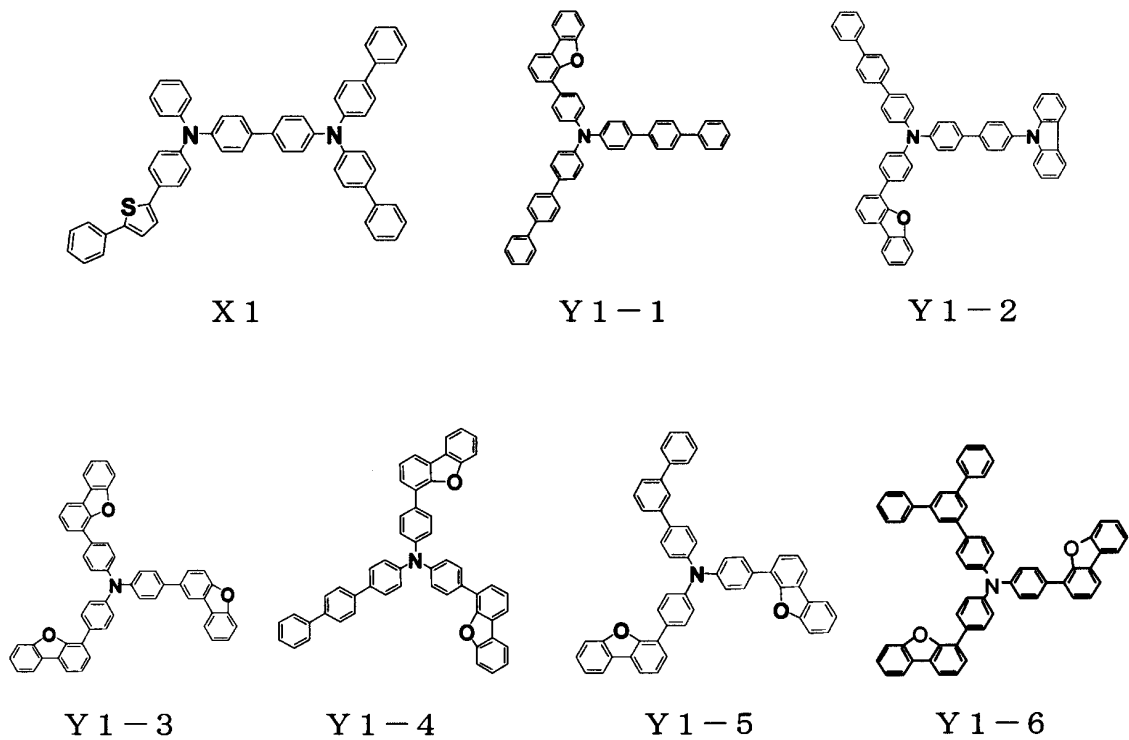


D 1

30

【 0 1 4 9 】

## 【化 6 1】



10

20

## 【 0 1 5 0 】

実施例 1 - 1 において、 $A_f$ 、 $E_g(S)$ 、 $I_p$ は、それぞれ以下に示すようにして測定した。 $A_f$  (アフィニティ準位) :

イオン化ポテンシャル  $I_p$  と光学エネルギーギャップ  $E_g(S)$  とにより次のように規定した。

$$A_f = I_p - E_g(S)$$

$E_g(S)$  (光学エネルギーギャップ) :

材料のトルエン希薄溶液の吸収スペクトルの長波長側接線とベースライン (吸収ゼロ) との交点の波長値をエネルギーに換算して求めた。

$I_p$  (イオン化ポテンシャル) :

化合物から電子を取り去ってイオン化するために要するエネルギーであり、紫外線光電子分光分析装置 (AC-3、理研 (株) 計器) で測定した値である。

30

## 【 0 1 5 1 】

[ 実施例 1 - 2 ]

実施例 1 - 1 において、第 2 正孔輸送層として、Y 1 - 2 を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

## 【 0 1 5 2 】

[ 実施例 1 - 3 ]

実施例 1 - 1 において、第 2 正孔輸送層として、Y 1 - 3 ( $A_f$  : 2.45 eV、 $E_g(S)$  : 3.17 eV、 $I_p$  : 5.62 eV、 $E_g(T)$  : 2.63 eV) を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

尚、 $A_f$ 、 $E_g(S)$  及び  $I_p$  は実施例 1 - 1 と同様にして測定し、 $E_g(T)$  は以下に示すようにして測定した。

$E_g(T)$  (3 重項エネルギーギャップ) :

燐光発光スペクトルに基づいて測定した。

材料を EPA 溶媒 (容積比でジエチルエーテル : イソペンタン : エタノール = 5 : 5 : 2) に  $10 \mu\text{mol/L}$  で溶解し、燐光測定用試料とした。この燐光測定用試料を石英セルに入れ、77 K に冷却し、励起光を照射し、放射される燐光の波長を測定した。

40

50

得られた発光スペクトルの短波長側の立ち上がりに対して接線を引き、この接線とベースラインとの交点の波長値をエネルギーに換算した値を励起3重項エネルギーギャップ  $E_g(T)$  とした。

なお、測定には市販の測定装置 F - 4 5 0 0 (日立製) を用いた。

【0153】

[実施例1-4]

実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Y1-4を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0154】

[実施例1-5]

実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Y1-5を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0155】

[実施例1-6]

実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Y1-6を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0156】

[比較例1-1]

実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Z1-1 ( $A_f: 2.43 \text{ eV}$ 、 $E_g(S): 3.21 \text{ eV}$ )を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0157】

[比較例1-2]

実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Z1-2を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

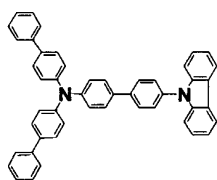
【0158】

[比較例1-3]

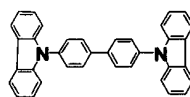
実施例1-1において、第2正孔輸送層として、Z1-3を用いた以外は、実施例1-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0159】

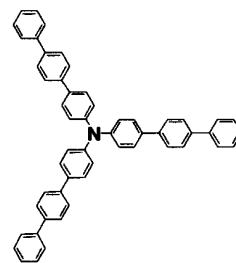
【化62】



Z1-1



Z1-2



Z1-3

【0160】

[有機EL素子の特性、寿命評価]

以上のように作製した各有機EL素子の、初期輝度  $20000 \text{ cd/m}^2$  における半減寿命を下記表1に示す。

【0161】

10

20

30

40



【表 1】

表 1

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例 1-1	X 1	Y 1-1	20000	610
実施例 1-2	X 1	Y 1-2	20000	600
実施例 1-3	X 1	Y 1-3	20000	550
実施例 1-4	X 1	Y 1-4	20000	700
実施例 1-5	X 1	Y 1-5	20000	620
実施例 1-6	X 1	Y 1-6	20000	700
比較例 1-1	X 1	Z 1-1	20000	100
比較例 1-2	X 1	Z 1-2	20000	20
比較例 1-3	X 1	Z 1-3	20000	290

10

20

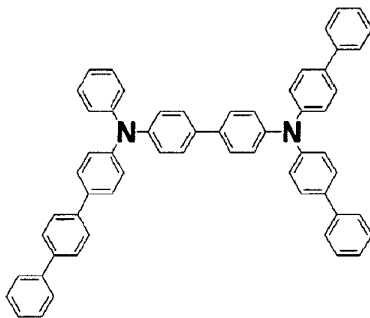
【 0 1 6 2 】

[ 実施例 1 - 7 ]

実施例 1 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、X 2 を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 6 3 】

【化 6 3】



X 2

30

【 0 1 6 4 】

[ 実施例 1 - 8 ~ 1 - 1 2 ]

実施例 1 - 7 において、第 2 正孔輸送層として、表 2 に記載の材料を用いた以外は、実施例 1 - 7 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 6 5 】

[ 比較例 1 - 4 ]

実施例 1 - 1 において、第 1 正孔輸送層として X 2、第 2 正孔輸送層として Z 1 - 1 を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 6 6 】

[ 比較例 1 - 5 及び 1 - 6 ]

比較例 1 - 4 において、第 2 正孔輸送層として、表 2 に記載の材料を用いた以外は、比

40

50

較例 1 - 4 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 6 7 】

[ 有機 E L 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 E L 素子の、初期輝度  $20000 \text{ cd/m}^2$  における半減寿命を下記表 2 に示す。

【 0 1 6 8 】

【表 2】

表 2

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 ( $\text{cd/m}^2$ )	半減寿命 (hr)
実施例 1 - 7	X 2	Y 1 - 1	20000	600
実施例 1 - 8	X 2	Y 1 - 2	20000	580
実施例 1 - 9	X 2	Y 1 - 3	20000	500
実施例 1 - 1 0	X 2	Y 1 - 4	20000	680
実施例 1 - 1 1	X 2	Y 1 - 5	20000	590
実施例 1 - 1 2	X 2	Y 1 - 6	20000	690
比較例 1 - 4	X 2	Z 1 - 1	20000	50
比較例 1 - 5	X 2	Z 1 - 2	20000	20
比較例 1 - 6	X 2	Z 1 - 3	20000	30

10

20

【 0 1 6 9 】

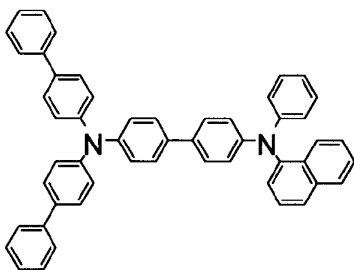
[ 実施例 1 - 1 3 ]

実施例 1 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、X 3 を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

30

【 0 1 7 0 】

【化 6 4】



X 3

40

【 0 1 7 1 】

[ 実施例 1 - 1 4 ~ 1 - 1 8 ]

実施例 1 - 1 3 において、第 2 正孔輸送層として、表 3 に記載の材料を用いた以外は、実施例 1 - 1 3 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 7 2 】

[ 比較例 1 - 7 ]

実施例 1 - 1 において、第 1 正孔輸送層として X 3、第 2 正孔輸送層として Z 1 - 1 を

50

用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 7 3 】

[ 比較例 1 - 8 及び 1 - 9 ]

比較例 1 - 7 において、第 2 正孔輸送層として、表 3 に記載の材料を用いた以外は、比較例 1 - 7 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 7 4 】

[ 有機 E L 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 E L 素子の、初期輝度  $20000 \text{ cd/m}^2$  における半減寿命を下記表 3 に示す。

【 0 1 7 5 】

【表 3】

表 3

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 ( $\text{cd/m}^2$ )	半減寿命 (hr)
実施例 1 - 1 3	X 3	Y 1 - 1	20000	630
実施例 1 - 1 4	X 3	Y 1 - 2	20000	620
実施例 1 - 1 5	X 3	Y 1 - 3	20000	590
実施例 1 - 1 6	X 3	Y 1 - 4	20000	700
実施例 1 - 1 7	X 3	Y 1 - 5	20000	640
実施例 1 - 1 8	X 3	Y 1 - 6	20000	700
比較例 1 - 7	X 3	Z 1 - 1	20000	130
比較例 1 - 8	X 3	Z 1 - 2	20000	50
比較例 1 - 9	X 3	Z 1 - 3	20000	320

【 0 1 7 6 】

表 1 ~ 3 に示すように、本発明所定の化合物を用いて第 1 正孔輸送層、第 2 正孔輸送層を形成した実施例 1 - 1 ~ 1 - 1 8 の有機 E L 素子は、比較例 1 - 1 ~ 1 - 9 のものに比べ、素子寿命が向上する効果が得られた。

第 2 正孔輸送層として、Y 1 - 3 に比べ Y 1 - 4、Y 1 - 6 を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

さらに第 1 正孔輸送層として、X 2 を用いた素子に比べ、X 1、X 3 を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

【 0 1 7 7 】

[ 実施例 2 - 1 ]

25 mm x 75 mm x 1.1 mm 厚の I T O 透明電極付きガラス基板 (旭硝子製) に、イソプロピルアルコール中で 5 分間の超音波洗浄をした後、30 分間の U V オゾン洗浄を行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、第 1 正孔輸送層として前記透明電極を覆うようにして膜厚 60 nm の化合物 X 1 を抵抗加熱により成膜した。

第 1 正孔輸送層の成膜に続けて、第 2 正孔輸送層としてこの膜上に膜厚 20 nm で、化合物 Y 1 - 1 を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第 2 正孔輸送層上に膜厚 40 nm で、ホスト材料として化合物 H 2、蛍光

10

20

30

40

50

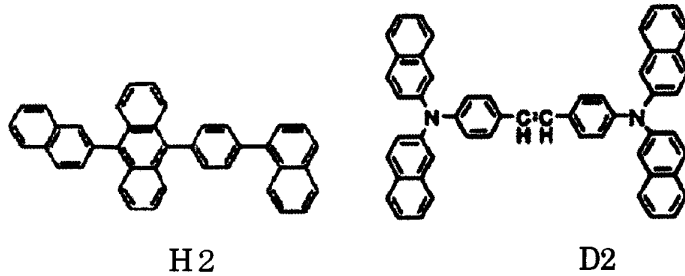
発光材料として化合物 D 2 を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物 D 2 の濃度は 5 % であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層膜に続けて化合物 E T 1 を膜厚 2 0 n m で成膜した。この E T 1 膜は電子輸送層として機能する。

次に、L i F を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 0 . 1 オングストレーム / m i n で膜厚を 1 n m とした。この L i F 膜上に金属 A l を蒸着させ、金属陰極を膜厚 1 0 0 n m で形成し有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 7 8 】

【化 6 5】



10

【 0 1 7 9 】

[ 実施例 2 - 2 ~ 2 - 6 ]

実施例 2 - 1 において、第 2 正孔輸送層として、表 4 に記載の材料を用いた以外は、実施例 2 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 8 0 】

[ 比較例 2 - 1 ]

実施例 2 - 1 において、第 2 正孔輸送層として、Z 1 - 1 を用いた以外は、実施例 2 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 8 1 】

[ 比較例 2 - 2 及び 2 - 3 ]

比較例 2 - 1 において、第 2 正孔輸送層として、表 4 に記載の材料を用いた以外は、比較例 2 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

【 0 1 8 2 】

[ 有機 E L 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 E L 素子の、初期輝度 5 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> における半減寿命を下記表 4 に示す。

【 0 1 8 3 】

20

30

【表 4】

表 4

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例 2-1	X 1	Y 1-1	5000	750
実施例 2-2	X 1	Y 1-2	5000	710
実施例 2-3	X 1	Y 1-3	5000	620
実施例 2-4	X 1	Y 1-4	5000	820
実施例 2-5	X 1	Y 1-5	5000	690
実施例 2-6	X 1	Y 1-6	5000	800
比較例 2-1	X 1	Z 1-1	5000	230
比較例 2-2	X 1	Z 1-2	5000	80
比較例 2-3	X 1	Z 1-3	5000	330

10

20

## 【 0 1 8 4 】

## [ 実施例 2 - 7 ]

実施例 2 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、X 2 を用いた以外は、実施例 2 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 1 8 5 】

## [ 実施例 2 - 8 ~ 2 - 1 2 ]

実施例 2 - 7 において、第 2 正孔輸送層として、表 5 に記載の材料を用いた以外は、実施例 2 - 7 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 1 8 6 】

## [ 比較例 2 - 4 ]

実施例 2 - 1 において、第 1 正孔輸送層として X 2、第 2 正孔輸送層として、Z 1 - 1 を用いた以外は、実施例 2 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 1 8 7 】

## [ 比較例 2 - 5 及び 2 - 6 ]

比較例 2 - 4 において、第 2 正孔輸送層として、表 5 に記載の材料を用いた以外は、比較例 2 - 4 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 1 8 8 】

## [ 有機 E L 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 E L 素子の、初期輝度 5 0 0 0 c d / m<sup>2</sup> における半減寿命を下記表 5 に示す。

30

40

## 【 0 1 8 9 】

【表 5】

表 5

	第1正孔輸送層	第2正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例2-7	X2	Y1-1	5000	700
実施例2-8	X2	Y1-2	5000	680
実施例2-9	X2	Y1-3	5000	600
実施例2-10	X2	Y1-4	5000	770
実施例2-11	X2	Y1-5	5000	670
実施例2-12	X2	Y1-6	5000	770
比較例2-4	X2	Z1-1	5000	50
比較例2-5	X2	Z1-2	5000	50
比較例2-6	X2	Z1-3	5000	220

10

20

## 【0190】

## [実施例2-13]

実施例2-1において、第1正孔輸送層として、X3を用いた以外は、実施例2-1と同様にして有機EL素子を作製した。

## 【0191】

## [実施例2-14～2-18]

実施例2-13において、第2正孔輸送層として、表6に記載の材料を用いた以外は、実施例2-13と同様にして有機EL素子を作製した。

## 【0192】

## [比較例2-7]

実施例2-1において、第1正孔輸送層としてX3、第2正孔輸送層としてZ1-1を用いた以外は、実施例2-1と同様にして有機EL素子を作製した。

30

## 【0193】

## [比較例2-8及び2-9]

比較例2-7において、第2正孔輸送層として、表6に記載の材料を用いた以外は、比較例2-7と同様にして有機EL素子を作製した。

## 【0194】

## [有機EL素子の特性、寿命評価]

以上のように作製した各有機EL素子の、初期輝度5000cd/m<sup>2</sup>における半減寿命を下記表6に示す。

40

## 【0195】

【表 6】

表 6

	第1正孔輸送層	第2正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例2-13	X3	Y1-1	5000	760
実施例2-14	X3	Y1-2	5000	730
実施例2-15	X3	Y1-3	5000	640
実施例2-16	X3	Y1-4	5000	840
実施例2-17	X3	Y1-5	5000	720
実施例2-18	X3	Y1-6	5000	850
比較例2-7	X3	Z1-1	5000	280
比較例2-8	X3	Z1-2	5000	120
比較例2-9	X3	Z1-3	5000	370

## 【0196】

表4～6に示すように、本発明所定の化合物を用いて第1正孔輸送層、第2正孔輸送層を形成した実施例2-1～2-18の有機EL素子は、比較例2-1～2-9のものに比べ、素子寿命が向上する効果が得られた。

第2正孔輸送層として、Y1-3に比べY1-4、Y1-6を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

さらに第1正孔輸送層として、X2を用いた素子に比べ、X1、X3を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

## 【0197】

## [実施例3-1]

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板(旭硝子製)に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄をした後、30分間のUVオゾン洗浄を行った。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、電子受容性物質として前記透明電極を覆うようにして膜厚5nmの下記化合物C1を抵抗加熱により成膜した。

電子受容性物質の成膜に続けて、第1正孔輸送層としてこの膜上に膜厚35nmで化合物X1を抵抗加熱により成膜した。

第1正孔輸送層の成膜に続けて、第2正孔輸送層としてこの膜上に膜厚20nmで、化合物Y1-1を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第2正孔輸送層上に膜厚40nmで、ホスト材料として化合物H1、燐光発光材料として化合物D1を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物D1の濃度は7.5%であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層上に膜厚10nmで、化合物HBを、抵抗加熱により共蒸着した。この膜は正孔障壁層として機能する。

そして、この正孔障壁層成膜に続けて化合物ET1を膜厚30nmで成膜した。このET1膜は電子輸送層として機能する。

次に、LiFを電子注入性電極(陰極)として成膜速度0.1オングストレーム/minで膜厚を1nmとした。このLiF膜上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚80nm

10

20

30

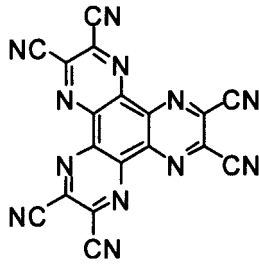
40

50

mで形成し有機EL素子を作製した。

【0198】

【化66】



C1

10

【0199】

[実施例3-2、3-3]

実施例3-1において、第1正孔輸送層として、表7に記載の材料を用いた以外は、実施例3-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0200】

[実施例3-4]

実施例3-1において、第2正孔輸送層としてY1-4を用いた以外は、実施例3-1と同様にして有機EL素子を作製した。 20

【0201】

[実施例3-5及び3-6]

実施例3-4において、第1正孔輸送層として、表7に記載の材料を用いた以外は、実施例3-4と同様にして有機EL素子を作製した。

[実施例3-7]

実施例3-1において、第2正孔輸送層としてY1-6を用いた以外は、実施例3-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0202】

[実施例3-8及び3-9]

実施例3-7において、第1正孔輸送層として、表7に記載の材料を用いた以外は、実施例3-7と同様にして有機EL素子を作製した。 30

【0203】

[比較例3-1]

実施例3-1において、第2正孔輸送層としてZ1-3を用いた以外は、実施例3-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0204】

[比較例3-2及び3-3]

比較例3-1において、第1正孔輸送層として、表7に記載の材料を用いた以外は、比較例3-1と同様にして有機EL素子を作製した。 40

【0205】

[有機EL素子の特性、寿命評価]

以上のように作製した各有機EL素子の、初期輝度20000cd/m<sup>2</sup>における半減寿命を下記表7に示す。

【0206】



【表 7】

表 7

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例 3-1	X 1	Y 1-1	20000	600
実施例 3-2	X 2	Y 1-1	20000	600
実施例 3-3	X 3	Y 1-1	20000	620
実施例 3-4	X 1	Y 1-4	20000	690
実施例 3-5	X 2	Y 1-4	20000	670
実施例 3-6	X 3	Y 1-4	20000	700
実施例 3-7	X 1	Y 1-6	20000	690
実施例 3-8	X 2	Y 1-6	20000	680
実施例 3-9	X 3	Y 1-6	20000	710
比較例 3-1	X 1	Z 1-3	20000	290
比較例 3-2	X 2	Z 1-3	20000	30
比較例 3-3	X 3	Z 1-3	20000	320

## 【 0 2 0 7 】

## [ 実施例 4 - 1 ]

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板（旭硝子製）に、イソプロピルアルコール中で 5 分間の超音波洗浄をした後、30 分間の UV オゾン洗浄を行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、電子受容性物質として前記透明電極を覆うようにして膜厚 5 nm の化合物 C 1 を抵抗加熱により成膜した。

電子受容性物質の成膜に続けて、第 1 正孔輸送層としてこの膜上に膜厚 55 nm で化合物 X 1 を抵抗加熱により成膜した。

第 1 正孔輸送層の成膜に続けて、第 2 正孔輸送層としてこの膜上に膜厚 20 nm で、化合物 Y 1 - 1 を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第 2 正孔輸送層上に膜厚 40 nm で、ホスト材料として化合物 H 2、蛍光発光材料として化合物 D 2 を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物 D 2 の濃度は 5 % であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層膜に続けて化合物 E T 1 を膜厚 20 nm で成膜した。この E T 1 膜は電子輸送層として機能する。

次に、LiF を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 0.1 オングストレーム / min で膜厚を 1 nm とした。この LiF 膜上に金属 Al を蒸着させ、金属陰極を膜厚 100 nm で形成し有機 EL 素子を作製した。

## 【 0 2 0 8 】

## [ 実施例 4 - 2 及び 4 - 3 ]

実施例 4 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、表 8 に記載の材料を用いた以外は、実施例 4 - 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

## 【 0 2 0 9 】

10

20

30

40

50

## [ 実施例 4 - 4 ]

実施例 4 - 1 において、第 2 正孔輸送層として Y 1 - 4 を用いた以外は、実施例 4 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 2 1 0 】

## [ 実施例 4 - 5 及び 4 - 6 ]

実施例 4 - 4 において、第 1 正孔輸送層として、表 8 に記載の材料を用いた以外は、実施例 4 - 4 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 2 1 1 】

## [ 実施例 4 - 7 ]

実施例 4 - 1 において、第 2 正孔輸送層として Y 1 - 4 を用いた以外は、実施例 4 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。 10

## 【 0 2 1 2 】

## [ 実施例 4 - 8 及び 4 - 9 ]

実施例 4 - 7 において、第 1 正孔輸送層として、表 8 に記載の材料を用いた以外は、実施例 4 - 7 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 2 1 3 】

## [ 比較例 4 - 1 ]

実施例 4 - 1 において、第 2 正孔輸送層として Z 1 - 3 を用いた以外は、実施例 4 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。

## 【 0 2 1 4 】

## [ 比較例 4 - 2 及び 4 - 3 ]

比較例 4 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、表 8 に記載の材料を用いた以外は、比較例 3 - 1 と同様にして有機 E L 素子を作製した。 20

## 【 0 2 1 5 】

## [ 有機 E L 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 E L 素子の、初期輝度  $5000 \text{ cd} / \text{m}^2$  における半減寿命を下記表 8 に示す。

## 【 0 2 1 6 】

【表 8】

表 8

	第 1 正孔輸送層	第 2 正孔輸送層	初期輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	半減寿命 (hr)
実施例 4-1	X 1	Y 1-1	5000	740
実施例 4-2	X 2	Y 1-1	5000	700
実施例 4-3	X 3	Y 1-1	5000	740
実施例 4-4	X 1	Y 1-4	5000	820
実施例 4-5	X 2	Y 1-4	5000	750
実施例 4-6	X 3	Y 1-4	5000	830
実施例 4-7	X 1	Y 1-6	5000	790
実施例 4-8	X 2	Y 1-6	5000	770
実施例 4-9	X 3	Y 1-6	5000	850
比較例 4-1	X 1	Z 1-3	5000	320
比較例 4-2	X 2	Z 1-3	5000	200
比較例 4-3	X 3	Z 1-3	5000	350

10

20

## 【 0 2 1 7 】

表 7、8 に示すように、本発明所定の化合物を用いて第 1 正孔輸送層、第 2 正孔輸送層を形成した実施例 3-1 ~ 4-9 の有機 EL 素子は、比較例 3-1 ~ 4-3 のものに比べ、素子寿命が向上する効果が得られた。

第 2 正孔輸送層として、Y 1-1 に比べ Y 1-4、Y 1-6 を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

30

さらに第 1 正孔輸送層として、X 2 を用いた素子に比べ、X 1、X 3 を用いた素子の方が長寿命であることがわかる。

## 【 0 2 1 8 】

## [ 実施例 5 - 1 ]

25 mm × 75 mm × 1.1 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板（旭硝子製）に、イソプロピルアルコール中で 5 分間の超音波洗浄をした後、30 分間の UV オゾン洗浄を行った。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、電子受容性物質として前記透明電極を覆うようにして膜厚 5 nm の化合物 C 1 を抵抗加熱により成膜した。

40

電子受容性物質の成膜に続けて、第 1 正孔輸送層として、この膜上に膜厚 55 nm で化合物 Y 1-7 を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第 1 正孔輸送層上に膜厚 40 nm で、ホスト材料として化合物 H 1、燐光発光材料として化合物 D 1 を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物 D 1 の濃度は 7.5 % であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層上に膜厚 10 nm で、化合物 H B を、抵抗加熱により共蒸着した。この膜は正孔障壁層として機能する。

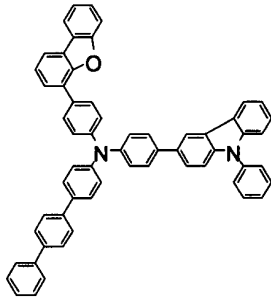
そして、この正孔障壁層成膜に続けて化合物 E T 1 を膜厚 30 nm で成膜した。この E T 1 膜は電子輸送層として機能する。

50

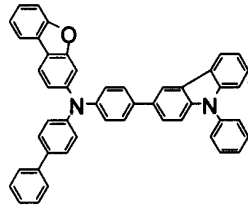
次に、LiFを電子注入性電極（陰極）として成膜速度0.1オングストレーム/minで膜厚を1nmとした。このLiF膜上に金属Alを蒸着させ、金属陰極を膜厚80nmで形成し有機EL素子を作製した。

【0219】

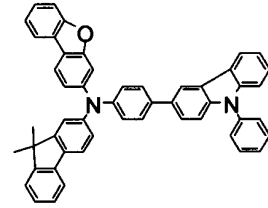
【化67】



Y1-7



Y1-8



Y1-9

10

【0220】

[実施例5-2及び5-3]

実施例5-1において、第1正孔輸送層として、表9に記載の材料を用いた以外は、実施例5-1と同様にして有機EL素子を作製した。

20

【0221】

[比較例5-1]

実施例5-1において、第1正孔輸送層として、Z1-3を用いた以外は、実施例5-1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0222】

[有機EL素子の特性、寿命評価]

以上のように作製した各有機EL素子の、10mA/cm<sup>2</sup>における駆動電圧、初期輝度20000cd/m<sup>2</sup>における半減寿命を下記表9に示す。

【0223】

【表9】

30

表9

	第1正孔輸送層	駆動電圧 (V)	半減寿命 (hr)
実施例5-1	Y1-7	4.9	650
実施例5-2	Y1-8	4.8	620
実施例5-3	Y1-9	4.7	620
比較例5-1	Z1-3	6.0	330

40

【0224】

[実施例6-1]

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板（旭硝子製）に、イソプロピルアルコール中で5分間の超音波洗浄をした後、30分間のUVオゾン洗浄を行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、電子受容性物質として前記透明電極を覆う

50

ようにして膜厚 5 nm の化合物 C 1 を抵抗加熱により成膜した。

電子受容性物質の成膜に続けて、第 1 正孔輸送層として、この膜上に膜厚 75 nm で化合物 Y 1 - 7 を抵抗加熱により成膜した。

さらに、この第 1 正孔輸送層上に膜厚 40 nm で、ホスト材料として化合物 H 2、蛍光発光材料として化合物 D 2 を、抵抗加熱により共蒸着した。化合物 D 2 の濃度は 5 % であった。この共蒸着膜は発光層として機能する。

さらに、この発光層膜に続けて化合物 E T 1 を膜厚 20 nm で成膜した。この E T 1 膜は電子輸送層として機能する。

次に、LiF を電子注入性電極（陰極）として成膜速度 0.1 オングストレーム / min で膜厚を 1 nm とした。この LiF 膜上に金属 Al を蒸着させ、金属陰極を膜厚 100 nm で形成し有機 EL 素子を作製した。

【 0 2 2 5 】

[ 実施例 6 - 2 及び 6 - 3 ]

実施例 6 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、表 10 に記載の材料を用いた以外は、実施例 6 - 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【 0 2 2 6 】

[ 比較例 6 - 1 ]

実施例 6 - 1 において、第 1 正孔輸送層として、Z 1 - 3 を用いた以外は、実施例 6 - 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【 0 2 2 7 】

[ 有機 EL 素子の特性、寿命評価 ]

以上のように作製した各有機 EL 素子の、10 mA / cm<sup>2</sup> における駆動電圧、初期輝度 5000 cd / m<sup>2</sup> における半減寿命を下記表 10 に示す。

【 0 2 2 8 】

【 表 10 】

表 10

	第 1 正孔輸送層	駆動電圧 (V)	半減寿命 (hr)
実施例 6 - 1	Y 1 - 7	4.3	700
実施例 6 - 2	Y 1 - 8	4.2	670
実施例 6 - 3	Y 1 - 9	4.0	670
比較例 6 - 1	Z 1 - 3	6.5	370

【 0 2 2 9 】

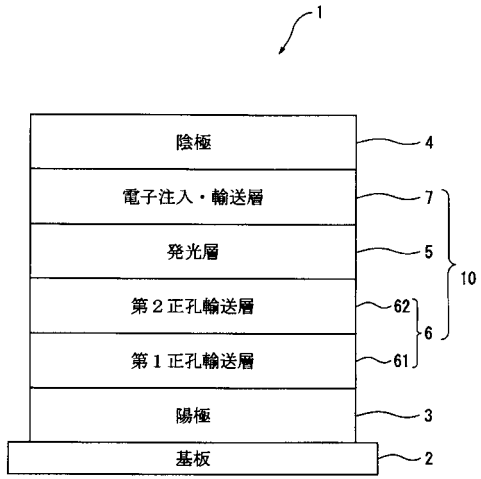
表 9、10 に示すように、本発明所定の化合物を用いて電子受容性物質含有層及び第 1 正孔輸送層を形成した実施例 5 - 1 ~ 6 - 3 の有機 EL 素子は、比較例 5 - 1 ~ 6 - 1 のものに比べ、駆動電圧が低下し、素子寿命が向上する効果が得られた。

【 産業上の利用可能性 】

【 0 2 3 0 】

以上詳細に説明したように、本発明の有機 EL 素子は、従来のもものと比較して効率が高く、寿命が長いこと、実用性の高い有機 EL 素子として極めて有用である。

【図1】



---

フロントページの続き

審査官 磯貝 香苗

- (56)参考文献 特開2005-112765(JP,A)  
国際公開第2007/125714(WO,A1)  
国際公開第2008/120626(WO,A1)  
国際公開第2009/020095(WO,A1)  
国際公開第2009/008099(WO,A1)  
国際公開第2009/011327(WO,A1)  
特開2009-016719(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H05L 51/50 - 51/56

H01L 27/

32

CAplus/REGISTRY(STN)