

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02007/069539

発行日 平成21年5月21日(2009.5.21)

(43) 国際公開日 平成19年6月21日(2007.6.21)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
H05B 33/02 (2006.01)	H05B 33/22 B	
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/02	
	C09K 11/06 660	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 59 頁)

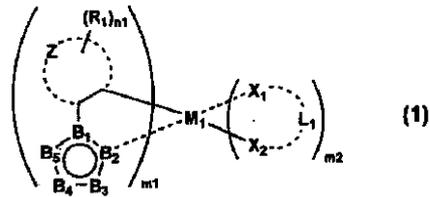
出願番号 特願2007-550155 (P2007-550155)	(71) 出願人 000001270 コニカミノルタホールディングス株式会社 東京都千代田区丸の内一丁目6番1号
(21) 国際出願番号 PCT/JP2006/324530	
(22) 国際出願日 平成18年12月8日(2006.12.8)	(72) 発明者 杉田 修一 日本国東京都日野市さくら町1番地コニカ ミノルタテクノロジーセンター株式会社内
(31) 優先権主張番号 特願2005-361627 (P2005-361627)	Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 CC02 CC04 CC05 CC06 CC09 CC12 CC22 DD18 DD64 DD67 DD76 DD78 DD84
(32) 優先日 平成17年12月15日(2005.12.15)	
(33) 優先権主張国 日本国(JP)	

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、表示装置および照明装置

(57) 【要約】

本発明は、発光輝度が高く、外部取り出し量子効率が高く、長寿命であり、さらに駆動電圧が低く、定電流駆動したときの電圧上昇の改良された有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置及び表示装置を提供する。この有機エレクトロルミネッセンス素子は、基板上に、陽極と陰極を有し、該陽極と該陰極との間に、少なくとも1層以上の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機層の少なくとも1層は、下記一般式(1)で表される燐光性化合物を含有する発光層であり、且つ、前記有機層が、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有する層を有することを特徴とする。



【特許請求の範囲】

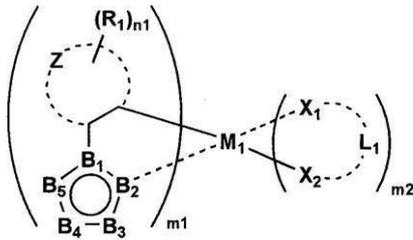
【請求項 1】

基板上に、陽極と陰極を有し、該陽極と該陰極との間に、少なくとも 1 層以上の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

該有機層の少なくとも 1 層は、下記一般式 (1) で表される燐光性化合物を含有する発光層であり、且つ、前記有機層が、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有する層を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】

一般式(1)



10

〔式中、 R_1 は置換基を表す。Zは5員～7員環を形成するのに必要な非金属原子群を表す。 n_1 は0～5の整数を表す。 $B_1 \sim B_5$ は、各々炭素原子、窒素原子、酸素原子または硫黄原子を表し、該 $B_1 \sim B_5$ より形成される環は、少なくとも一つの窒素原子を有する芳香族複素環を表す。 M_1 は元素周期表における8族～10族の金属を表す。 X_1 および X_2 は、各々炭素原子、窒素原子または酸素原子を表し、 L_1 は X_1 および X_2 とともに2座の配位子を形成する原子群を表す。 m_1 は1、2または3の整数を表し、 m_2 は0、1または2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2または3である。〕

20

【請求項 2】

前記ドナー性化合物が、アルカリ金属、アルカリ土類金属、該アルカリ金属の塩または該アルカリ土類金属の塩であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【請求項 3】

前記ドナー性化合物が、セシウムまたは該セシウムの塩であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

前記一般式(1)で表される燐光性化合物の m_2 が0であることを特徴とする請求の範囲第1項～第3項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記一般式(1)で表される燐光性化合物の前記 $B_1 \sim B_5$ より形成される環がイミダゾール環であることを特徴とする請求の範囲第1項～第4項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項 6】

前記基板上にガスバリア層を有することを特徴とする請求の範囲第1項～第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

青色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項～第6項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】

白色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項～第6項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

50

請求の範囲第1項～第8項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【請求項10】

請求の範囲第1項～第8項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

【請求項11】

請求の範囲第10項に記載の照明装置と表示手段としての液晶素子を有することを特徴とする表示装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置および照明装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ(ELD)がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子ともいう)が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

【0003】

20

一方、有機EL素子は発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、更に自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

【0004】

今後の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、更に低消費電力で、効率よく高輝度に発光する有機EL素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体またはトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術(例えば、特許文献1参照。)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子(例えば、特許文献2参照。)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーブした有機発光層を有する素子(例えば、特許文献3参照。)等が知られている。

30

【0005】

上記特許文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率(η_{ext})の限界は5%とされている。

40

【0006】

ところが、プリンストン大より、励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子の報告(例えば、非特許文献1参照。)がされて以来、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている(例えば、非特許文献2参照。)。励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。例えば、多くの化合物がイリジウム錯体系等重金属錯体を中心に合成検討がなされている(例えば、非特許文献3参照。)

【0007】

また、ドーパントとしてトリス(2-フェニルピリジン)イリジウムを用いた検討がな

50

されている（例えば、非特許文献2参照。）。その他、ドーパントとして $L_2Ir(acac)$ 、例えば、 $(ppy)_2Ir(acac)$ （例えば、非特許文献4参照。）を、またドーパントとして、トリス（2-（p-トリル）ピリジン）イリジウム（ $Ir(ptpy)_3$ ）、トリス（ベンゾ[h]キノリン）イリジウム（ $Ir(bzq)_3$ ）、 $Ir(bzq)_2ClP(Bu)_3$ を用いた検討（例えば、非特許文献5参照。）、また、フェニルピラゾールを配位子に用いたイリジウム錯体等を用いた検討（例えば、特許文献4参照。）が行われている。

【0008】

また、高い発光効率を得るためにホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている（例えば、非特許文献6参照。）。また、各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーブして用いている（例えば、非特許文献4参照。）。さらに、電子輸送層中にドナー化合物をドーブする事により、電子輸送層内のキャリア濃度を上げ、有機層の導電率を向上させる方法が提案されている（例えば、特許文献5参照。）。

10

【0009】

しかしながら、従来有機エレクトロルミネッセンス素子において、高い発光効率、特に青色発光において改良が望まれている。また、定電圧駆動したときの電圧上昇、発光輝度と寿命の両立においても更なる改良が望まれている。

【特許文献1】特許第3093796号公報

【特許文献2】特開昭63-264692号公報

20

【特許文献3】特開平3-255190号公報

【特許文献4】国際公開第04/085450号パンフレット

【特許文献5】特開2000-196140号公報

【非特許文献1】M. A. Baldo et al., nature, 395巻、151-154ページ（1998年）

【非特許文献2】M. A. Baldo et al., nature, 403巻、17号、750-753ページ（2000年）

【非特許文献3】S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ（2001年）

【非特許文献4】M. E. Tompson et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)

30

【非特許文献5】Moon-Jae Youn. Og, Tetsuo Tsutsui et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)

【非特許文献6】Ikai et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)

【発明の開示】

40

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明の目的は、発光輝度が高く、外部取り出し量子効率が高く、長寿命であり、さらに駆動電圧が低く、定電流駆動したときの電圧上昇の改良された有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置及び表示装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明の上記目的は下記の構成1~11により達成された。

【0012】

1. 基板上に、陽極と陰極を有し、該陽極と該陰極との間に、少なくとも1層以上の有

50

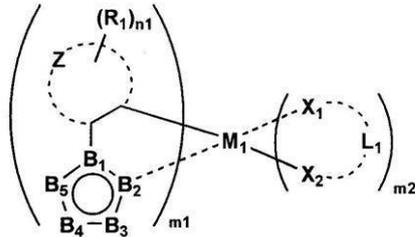
機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

該有機層の少なくとも1層は、下記一般式(1)で表される燐光性化合物を含有する発光層であり、且つ、前記有機層が、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有する層を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。

【0013】

【化1】

一般式(1)



10

【0014】

〔式中、 R_1 は置換基を表す。Zは5員～7員環を形成するのに必要な非金属原子群を表す。 n_1 は0～5の整数を表す。 $B_1 \sim B_5$ は、各々炭素原子、窒素原子、酸素原子または硫黄原子を表し、該 $B_1 \sim B_5$ より形成される環は、少なくとも一つの窒素原子を有する芳香族複素環を表す。 M_1 は元素周期表における8族～10族の金属を表す。 X_1 および X_2 は、各々炭素原子、窒素原子または酸素原子を表し、 L_1 は X_1 および X_2 とともに2座の配位子を形成する原子群を表す。 m_1 は1、2または3の整数を表し、 m_2 は0、1または2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2または3である。〕

20

2. 前記ドナー性化合物が、アルカリ金属、アルカリ土類金属、該アルカリ金属の塩または該アルカリ土類金属の塩であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0015】

3. 前記ドナー性化合物が、セシウムまたは該セシウムの塩であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

【0016】

4. 前記一般式(1)で表される燐光性化合物の m_2 が0であることを特徴とする前記1～3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0017】

5. 前記一般式(1)で表される燐光性化合物の前記 $B_1 \sim B_5$ より形成される環がイミダゾール環であることを特徴とする前記1～4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0018】

6. 前記基板上にガスバリア層を有することを特徴とする前記1～5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【0019】

7. 青色に発光することを特徴とする前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0020】

8. 白色に発光することを特徴とする前記1～6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0021】

9. 前記1～8のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする表示装置。

【0022】

50

10. 前記1～8のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を有することを特徴とする照明装置。

【0023】

11. 前記10に記載の照明装置と表示手段としての液晶素子を有することを特徴とする表示装置。

【発明の効果】

【0024】

本発明により、発光輝度が高く、外部取り出し量子効率が高く、長寿命であり、さらに駆動電圧が低く、定電流駆動したときの電圧上昇の改良された有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置及び表示装置を提供することが出来た。

10

【図面の簡単な説明】

【0025】

【図1】本発明に係る透明ガスバリアフィルムの層構成を示す模式図である。

【図2】本発明に有用な対向電極間で基材を処理する方式の大気圧プラズマ放電処理装置の一例を示す概略図である。

【図3】有機EL素子OLED1-1の吐出及び成膜工程を示す図である。

【図4】有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図5】表示部の模式図である。

【図6】照明装置の概略図である。

【図7】照明装置の断面図である。

20

【符号の説明】

【0026】

30 プラズマ放電処理室

35 ロール電極

36 電極

41、42 電源

51 ガス供給装置

55 電極冷却ユニット

100 ITO基板

111 正孔輸送層

112 発光層

113 電子輸送層

114 陰極

115 ガスバリア膜

10 インクジェット式ヘッド

D 液滴

1 ディスプレイ

3 画素

5 走査線

6 データ線

A 表示部

B 制御部

107 透明電極付きガラス基板

106 有機EL層

105 陰極

102 ガラスカバー

108 窒素ガス

109 捕水剤

30

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0027】

50

本発明の有機EL素子においては、請求の範囲第1項～第9項のいずれか1項に規定される構成により、発光輝度、外部取りだし量子効率が高く、駆動電圧が低く、定電流駆動したときの電圧上昇が抑制され、且つ、駆動寿命の長い、有機EL素子を提供することができた。また、併せて、前記有機EL素子を具備した表示装置や照明装置を提供することができた。

【0028】

以下、本発明に係る各構成要素の詳細について、順次説明する。

【0029】

《燐光性化合物（燐光発光性化合物ともいう）》

本発明に係る燐光性化合物について説明する。

10

【0030】

本発明に係る有機層は、少なくとも1層の発光層を有するが、該発光層は、前記一般式(1)で表される燐光性化合物を含有することが特徴である。

【0031】

(一般式(1)で表される燐光性化合物)

一般式(1)で表される燐光性化合物について説明する。

【0032】

一般式(1)において、 R_1 で表される置換基としては、例えば、アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、芳香族炭化水素環基（芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等）、芳香族複素環基（例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基（例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等）、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジニル基、イミダゾリジニル基、モルホリル基、オキサゾリジニル基等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、アリールオキシカルボニル基（例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等）、スルファモイル基（例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジリアミノスルホニル基等）、アシル基（例えば、

20

30

40

50

アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基またはヘテロアリールスルホニル基(例えば、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)等が挙げられる。

10

20

30

【0033】

これらの置換基のうち、好ましいものはアルキル基もしくはアリール基であり、更に好ましいものは無置換のアルキル基もしくはアリール基である。

【0034】

Zは5~7員環を形成するのに必要な非金属原子群を表す。Zにより形成される5~7員環としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、ピリジン環、ピリミジン環、ピロール環、チオフェン環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環及びチアゾール環等が挙げられる。これらのうちで好ましいものは、ベンゼン環である。

【0035】

一般式(1)において、 $B_1 \sim B_5$ は、各々炭素原子、窒素原子、酸素原子もしくは硫黄原子を表し、少なくとも一つは窒素原子であり、該 $B_1 \sim B_5$ より形成される環は、少なくとも一つの窒素原子を有する芳香族複素環を表す。

40

【0036】

前記 $B_1 \sim B_5$ より形成される、少なくとも一つの窒素原子を有する芳香族複素環としては、例えば、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、オキサジアゾール環及びチアジアゾール環等が挙げられるが、中でも、好ましいものは、ピラゾール環、イミダゾール環であり、特に好ましいのは、イミダゾール環である。

【0037】

これらの環は上記の置換基によって更に置換されていてもよい。置換基として好ましいものは無置換アルキル基および無置換アリール基である。

50

【0038】

一般式(1)において、 L_1 は X_1 、 X_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 $X_1 - L_1 - X_2$ で表される2座の配位子の具体例としては、例えば、フェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルトリアゾール、フェニルテトラゾール、ピラザポール、ピコリン酸及びアセチルアセトン等が挙げられる。また、これらの配位子は上記の置換基によって更に置換されていてもよい。

【0039】

m_1 は1、2または3の整数を表し、 m_2 は0、1または2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2または3である。中でも、 m_2 は0である場合が好ましい。

【0040】

一般式(1)において、 M_1 で表される金属(金属イオンの場合も含む)としては、元素周期表の8族~10族の遷移金属元素(単に、遷移金属ともいう)が用いられるが、中でも、イリジウム、白金が好ましく、さらに好ましくはイリジウムである。

10

【0041】

尚、本発明の一般式(1)で表される燐光性化合物は、重合性基または反応性基を有していてもいなくてもよい。

【0042】

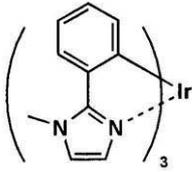
以下に、一般式(1)で表される燐光性化合物の具体的な例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

【0043】

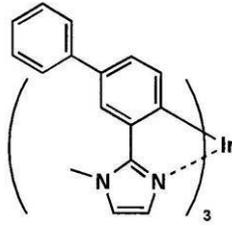
20

【化 2】

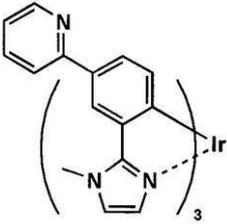
1-1



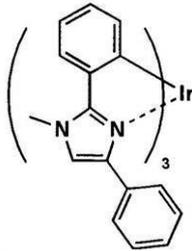
1-2



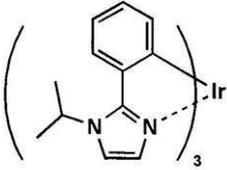
1-3



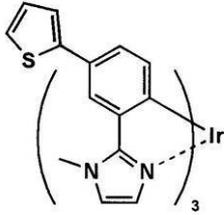
1-4



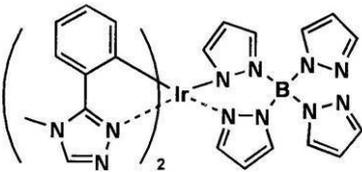
1-5



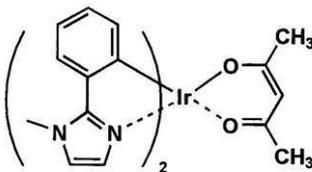
1-6



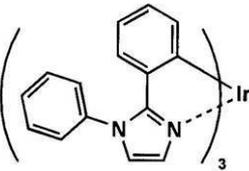
1-7



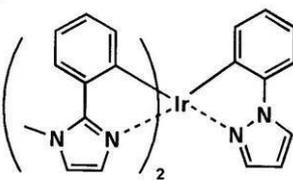
1-8



1-9



1-10



【 0 0 4 4 】

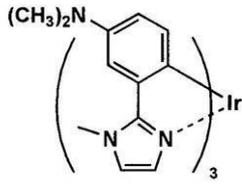
10

20

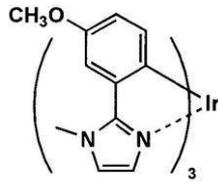
30

【化 3】

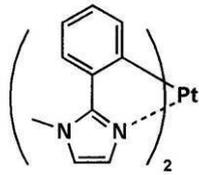
1-11



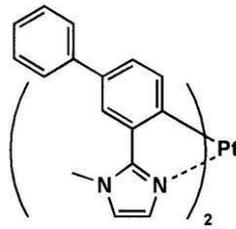
1-12



1-13

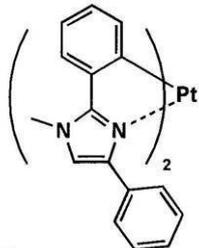


1-14

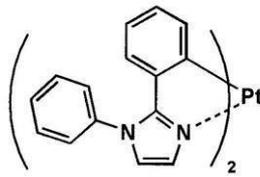


10

1-15

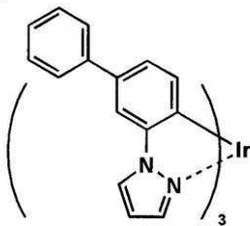


1-16

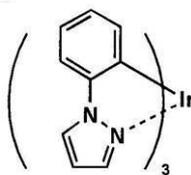


20

1-17

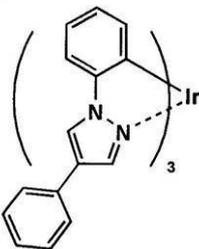


1-18

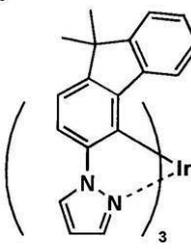


30

1-19



1-20

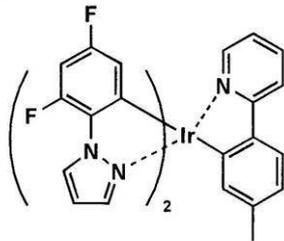


【 0 0 4 5 】

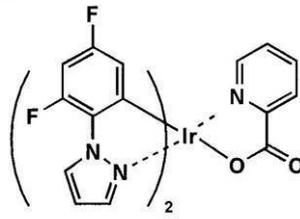
40

【化4】

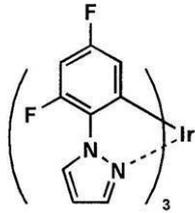
1-21



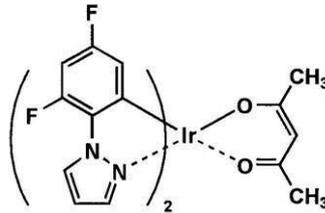
1-22



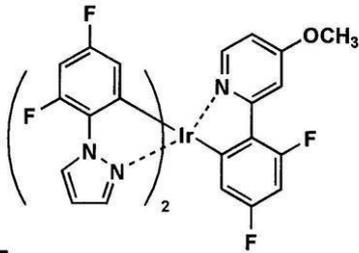
1-23



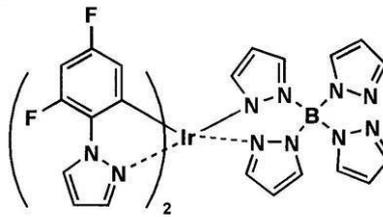
1-24



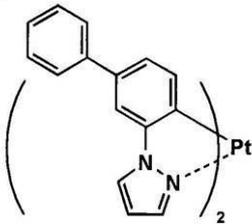
1-25



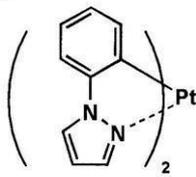
1-26



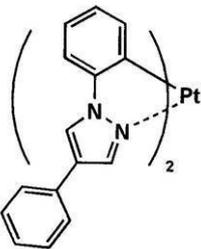
1-27



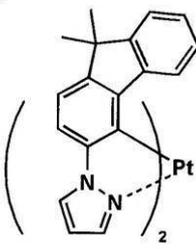
1-28



1-29



1-30



【0046】

10

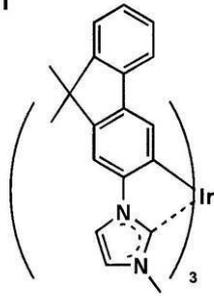
20

30

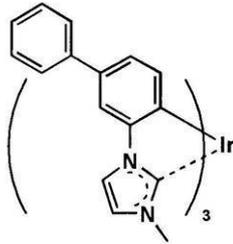
40

【化5】

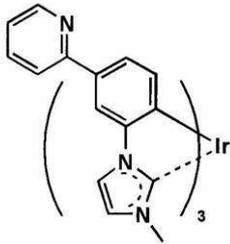
1-31



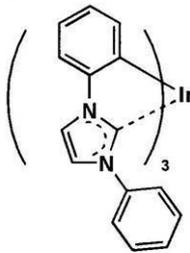
1-32



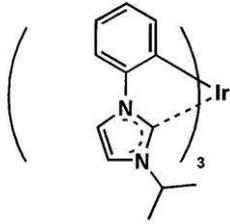
1-33



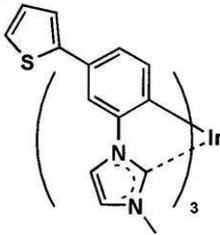
1-34



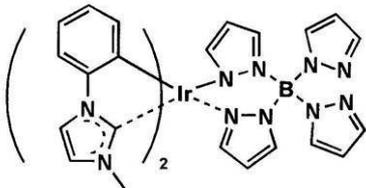
1-35



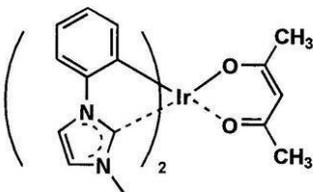
1-36



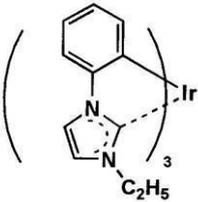
1-37



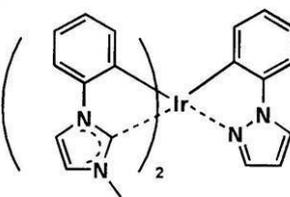
1-38



1-39



1-40



【0047】

10

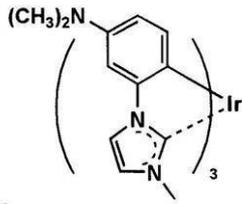
20

30

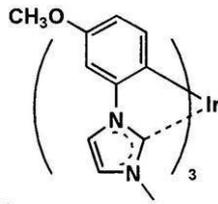
40

【化6】

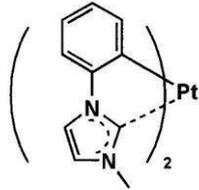
1-41



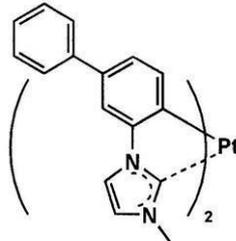
1-42



1-43

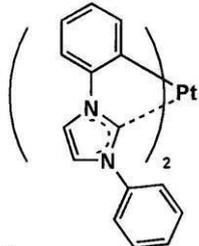


1-44

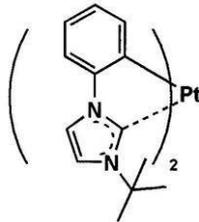


10

1-45

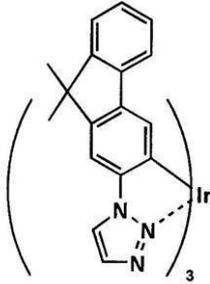


1-46

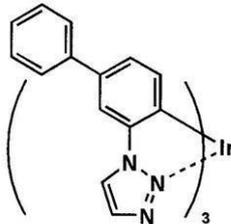


20

1-47

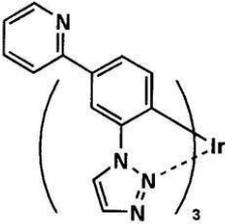


1-48

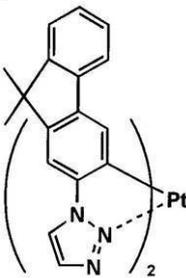


30

1-49

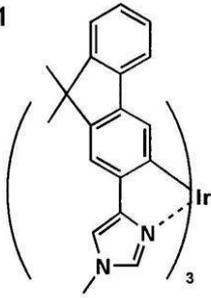


1-50

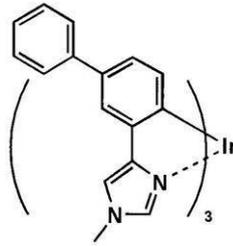


【化 7】

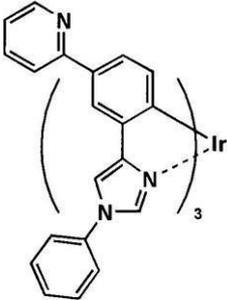
1-51



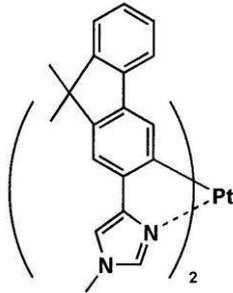
1-52



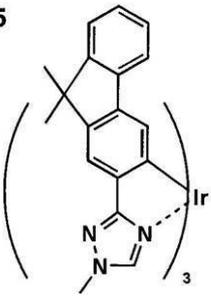
1-53



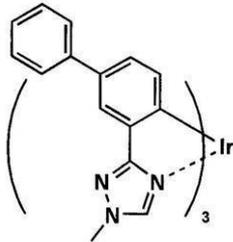
1-54



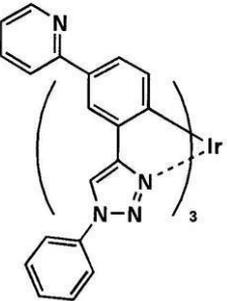
1-55



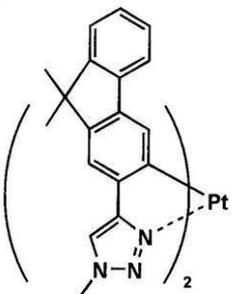
1-56



1-57



1-58



【 0 0 4 9 】

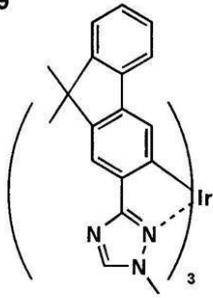
10

20

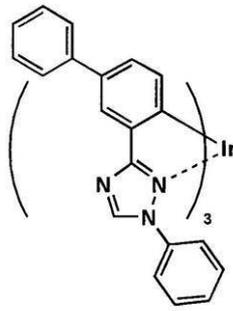
30

【化 8】

1-59

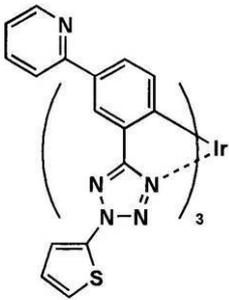


1-60

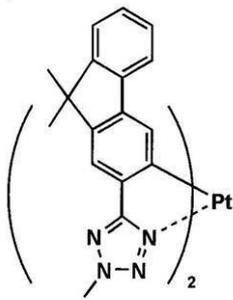


10

1-61

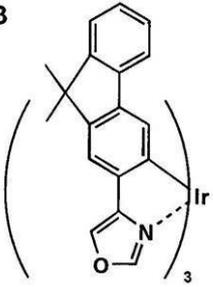


1-62

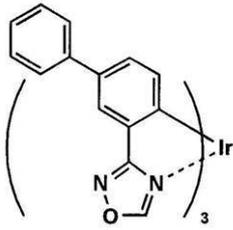


20

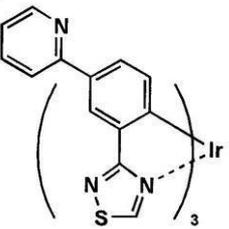
1-63



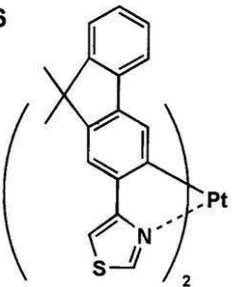
1-64



1-65



1-66

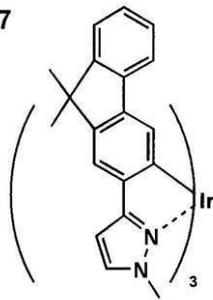


30

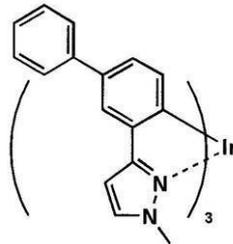
【 0 0 5 0 】

【化9】

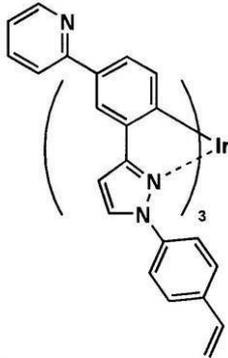
1-67



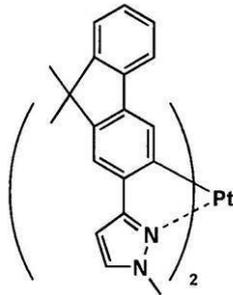
1-68



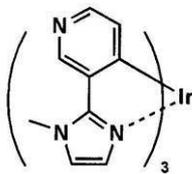
1-69



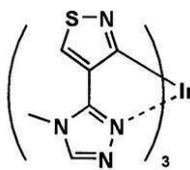
1-70



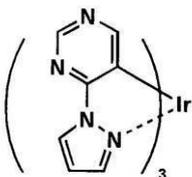
1-71



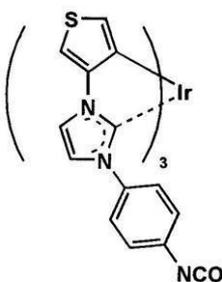
1-72



1-73



1-74



【0051】

一般式(1)で表される燐光性化合物は、化合物構造からは有機金属錯体であり、これら有機金属錯体は、例えば、Organic Letter誌、vol3、No.16、2579~2581頁(2001)、Inorganic Chemistry, 第30巻、第8号、1685~1687頁(1991年)、J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第40巻、第7号、1704~1711頁(2001年)、Inorganic Chemistry, 第41巻、第12号、3055~3066頁(2002年)、New Journal of Chemistry., 第26巻、1171頁(2002年)、European Journal of Organic Chemistry, 第4巻、695~709頁(2004年)、更にこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

10

20

30

40

50

【 0 0 5 2 】

また、本発明に係る燐光性化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、室温（25℃）にて燐光発光する化合物であり、燐光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物である。燐光量子収率は好ましくは0.1以上である。

【 0 0 5 3 】

上記燐光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられる燐光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記燐光量子収率が達成されればよい。

【 0 0 5 4 】

本発明に係る有機層（有機化合物層ともいう）は、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有することを特徴とする。前記電子輸送材料及びドナー性化合物は、有機層の中でも、後述する電子輸送材料層に好ましく含まれるが、電子輸送材料層以外の層（有機層の詳細は後述する）に含有されていてもよい。

【 0 0 5 5 】

《電子輸送材料》

本発明に係る電子輸送材料について説明する。

【 0 0 5 6 】

本発明に係る電子輸送材料としては、例えばカルバゾール誘導体、カルボリン誘導体（アザカルバゾール誘導体ともいう）、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェナントロリン誘導体、オキサゾール誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、有機金属化合物、アリアルメタン誘導体、ホウ素化合物等が挙げられる。

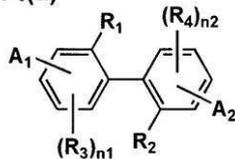
【 0 0 5 7 】

これらのうちで好ましいのは、カルボリン誘導体（アザカルバゾール誘導体ともいう）、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、有機金属化合物、ホウ素化合物であり、さらに好ましいものとしては、下記一般式（2）、（3）または（4）で表される化合物が挙げられる。

【 0 0 5 8 】

【化10】

一般式(2)



【 0 0 5 9 】

式中、 R_1 、 R_2 は、各々水素原子、置換基を表す。 R_3 、 R_4 は、各々置換基を表す。 n_1 および n_2 は0～3の整数を表す。 A_1 および A_2 は、各々複素環基または下記一般式（a）で表される基（化合物残基ともいう）を表す。

【 0 0 6 0 】

10

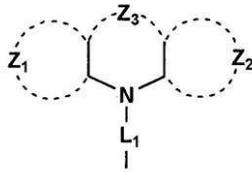
20

30

40

【化 1 1】

一般式(a)



10

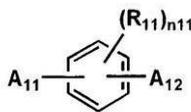
【 0 0 6 1】

式中、 Z_1 は芳香族複素環を形成する原子群を表し、 Z_2 は、芳香族複素環または芳香族炭化水素環を形成する原子群を表し、 Z_3 は2価の連結基または単なる結合手を表す。 L_1 は、2価の連結基または、単なる結合手を表す。

【 0 0 6 2】

【化 1 2】

一般式(3)



20

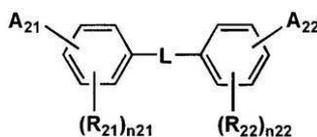
【 0 0 6 3】

式中、 R_{11} は置換基を表す。 n_{11} は0～4の整数を表す。 A_{11} 、 A_{12} は、各々複素環基または、前記一般式(a)で表される基を表す。

【 0 0 6 4】

【化 1 3】

一般式(4)



30

【 0 0 6 5】

式中、 R_{21} 、 R_{22} は、各々置換基を表す。 n_{21} 、 n_{22} は0～3の整数を表す。 A_{21} 、 A_{22} は、各々複素環基または前記一般式(a)で表される基を表す。 L は2価の連結基を表す。

【 0 0 6 6】

40

前記一般式(2)における $R_1 \sim R_4$ 、前記一般式(3)における R_{11} および、前記一般式(4)における R_{21} 、 R_{22} で各々表される置換基としては、例えば、アルキル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えば、メチル基、エチル基、*iso*-プロピル基、*tert*-ブチル基、*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。)、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であり、例えば、ビニル基、アリル基、2-ブテニル基、3-ペンテニル基等が挙げられる。)、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であり、例えば、プロパルギル基、3-ペンチニル基等が挙げられる。)、芳香族炭化水素環

50

基（芳香族炭化水素基、アリアル基ともいい、好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えば、フェニル基、p - メチルフェニル基、p - クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等）、芳香族複素環基（例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基（前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す）、フタラジニル基等）、複素環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリル基等）、アミノ基（好ましくは炭素数 0 ~ 20、より好ましくは炭素数 0 ~ 10、特に好ましくは炭素数 0 ~ 6 であり、例えば、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジベンジルアミノ基等が挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数 1 ~ 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 であり、例えば、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基等が挙げられる。）、アリアルオキシ基（好ましくは炭素数 6 ~ 20、より好ましくは炭素数 6 ~ 16、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えば、フェニルオキシ基、2 - ナフチルオキシ基等が挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、アセチル基、ベンゾイル基、ホルミル基、ピバロイル基等が挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 16、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等が挙げられる。）、アリアルオキシカルボニル基（好ましくは炭素数 7 ~ 20、より好ましくは炭素数 7 ~ 16、特に好ましくは炭素数 7 ~ 10 であり、例えば、フェニルオキシカルボニル基等が挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 16、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えば、アセトキシ基、ベンゾイルオキシ基等が挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 16、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えば、アセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基等が挙げられる。）、アルコキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 16、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えば、メトキシカルボニルアミノ基等が挙げられる。）、アリアルオキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数 7 ~ 20、より好ましくは炭素数 7 ~ 16、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えば、フェニルオキシカルボニルアミノ基等が挙げられる。）、スルホニルアミノ基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、メタンスルホニルアミノ基、ベンゼンスルホニルアミノ基等が挙げられる。）、スルファモイル基（好ましくは炭素数 0 ~ 20、より好ましくは炭素数 0 ~ 16、特に好ましくは炭素数 0 ~ 12 であり、例えば、スルファモイル基、メチルスルファモイル基、ジメチルスルファモイル基、フェニルスルファモイル基等が挙げられる。）、カルバモイル基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、カルバモイル基、メチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基等が挙げられる。）、アルキルチオ基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、メチルチオ基、エチルチオ基等が挙げられる。）、アリアルチオ基（好ましくは炭素数 6 ~ 20、より好ましくは炭素数 6 ~ 16、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えば、フェニルチオ基等が挙げられる。）、アルキルスルホニル基またはアリアルスルホニル基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、メシル基、トシル基等が挙げられる。）、スルフィニル基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、メタンスルフィニル基、ベンゼンスルフィニル基等が挙げられる。）、ウレイド基（好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好まし

くは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、ウレイド基、メチルウレイド基、フェニルウレイド基等が挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 16、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えば、ジエチルリン酸アミド基、フェニルリン酸アミド基等が挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(ヘテロ原子として、例えば、窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子等を含む、好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20 の、例えば、イミダゾリル、ピリジル、フリル基、ペペリジル基、モルホリノ基などが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

10

【0067】

中でも、これらのうち好ましいものはアルキル基およびアリール基である。

【0068】

一般式(a)および(4)において、LおよびL₁で表される2価の連結基としては、アルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、アリーレン基などの炭化水素基のほか、ヘテロ原子を含むもの(例えば、ヘテロアリーレン基等)であってもよく、また、チオフェン-2,5-ジイル基や、ピラジン-2,3-ジイル基のような、芳香族複素環を有する化合物(ヘテロ芳香族化合物ともいう)に由来する2価の連結基であってもよいし、酸素や硫黄などのカルコゲン原子であってもよい。また、アルキルイミノ基、ジアルキルシランジイル基やジアリールゲルマンジイル基のような、ヘテロ原子を介して連結する基でもよい。

20

【0069】

また、一般式(a)において、Z₁、Z₂によって各々形成される芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、オキサゾール環、ピロール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の一つが更に窒素原子で置換されている環を示す)等が挙げられる。更に、前記芳香族複素環は、上記の置換基を有してもよい。

30

【0070】

一般式(a)において、Z₂によって各々形成される芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ピフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、o-テルフェニル環、m-テルフェニル環、p-テルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセン環、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。更に、前記芳香族炭化水素環は、上記の置換基を有してもよい。

40

【0071】

一般式(3)のA₁₁、A₂₂、一般式(4)のA₂₁、A₂₂で各々表される複素環基は、一般式(2)におけるR₁~R₄、一般式(3)におけるR₁₁および、一般式(4)におけるR₂₁、R₂₂で各々表される置換基に記載の複素環基と各々同義である。

【0072】

本発明に係る電子輸送材料としては、低分子化合物、高分子化合物いずれも使用することが可能である。ここで、高分子化合物とは重合性基を少なくとも一つ有する化合物(重合性化合物)が重合したものであり、重合性基としては、例えば、ビニル基、エポキシ基、オキセタン基、イソシアネート基、チオイソシアネート基等が挙げられる。これらのうちで好ましいものはビニル基である。

【0073】

50

中でも、上記の一般式(2)~(4)で表される化合物が、これらの重合性基を分子内のいずれかの位置に有し、これらの単量体を用いて形成された重合体(ここでは、ホモポリマーでも共重合体でもよい)が好ましい。

【0074】

また、前記一般式(2)~(4)のいずれかで表される電子輸送材料はこれらの重合性基を分子内のいずれかの位置に有してもよい。

【0075】

重合性化合物の重合反応について説明する。重合が形成される時期として、予め重合した高分子を用いてもよいし、また素子作製前の溶液中でも素子作製時でも重合してよい。また素子作製後に結合を形成してもよい。重合反応を起こす場合、外部からのエネルギー(熱・光・超音波など)供給を行ってもよいし、重合開始剤、酸触媒もしくは塩基触媒を添加し反応を起こしてもよい。あるいは本発明に係る化合物を発光素子に含有したときに重合反応を起こす場合、発光素子の駆動時に供給される電流や発生する光や熱によって反応が起こってもよい。また、2つ以上の重合性化合物を重合させ、共重合体を形成してもよい。

10

【0076】

重合した高分子化合物は5000~1000000の重量平均分子量が好ましく、更に好ましくは5000~200000である。

【0077】

ラジカル重合開始剤としては、例えば、2,2 - アゾビスブチロニトリル、2,2 - アゾビスシクロヘキサンカルボニトリル、1,1 - アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2,2 - アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、2,2 - アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)、2,2 - アゾビス(4-メトキシ-2,4-ジメチルバレロニトリル)、4,4 - アゾビス(4-シアノ吉草酸)、2,2 - アゾビスイソ酪酸ジメチル、2,2 - アゾビス(2-メチルプロピオンアミドキシム)、2,2 - アゾビス(2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン)、2,2 - アゾビス(2,4,4-トリメチルペンタン)などのアゾ系開始剤、過酸化ベンゾイル、過酸化ジ-t-ブチル、t-ブチルヒドロペルオキシド、クメンヒドロペルオキシドなどの過氧化物系開始剤、ジエトキシアセトフェノン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、ベンジルジメチルケタール、ベンジル- -メトキシエチルアセタール、1-(4-イソプロピルフェニル)-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン、4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル-(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、4-フェノキシジクロロアセトフェノン、4-t-ブチルジクロロアセトフェノン、4-t-ブチルトリクロロアセトフェノン、1-(4-ドデシルフェニル)-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オンなどの芳香族カルボニル系開始剤などが挙げられる。また、テトラエチルチイラムジスルフィドなどのジスルフィド系開始剤、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-オキシシルなどのニトロキシル開始剤、4,4 - ジ-t-ブチル-2,2 - ビピリジン銅錯体-トリクロロ酢酸メチル複合体などのリピングラジカル重合開始剤を用いることもできる。

20

30

40

【0078】

酸触媒としては、活性白土、酸性白土などの白土類、硫酸、塩酸などの鉱酸類、p-トルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸などの有機酸、塩化アルミニウム、塩化第二鉄、塩化第二スズ、三塩化チタン、四塩化チタン、三フッ化硼素、フッ化水素、三臭化硼素、臭化アルミニウム、塩化ガリウム、臭化ガリウムなどのルイス酸、更に固体酸、例えば、ゼオライト、シリカ、アルミナ、シリカ・アルミナ、カチオン交換樹脂、ヘテロポリ酸(例えば、リンタングステン酸、リンモリブデン酸、ケイタングステン酸、ケイモリブデン酸)など各種のものが使用できる。

【0079】

本発明で用いられる塩基性触媒としては、 Li_2CO_3 、 Na_2CO_3 、 K_2CO_3 などのア

50

ルカリ金属炭酸塩、 $BaCO_3$ 、 $CaCO_3$ などのアルカリ土類金属炭酸塩、 Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O などのアルカリ金属酸化物、 BaO 、 CaO などのアルカリ土類金属酸化物、 Na 、 K などのアルカリ金属、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、あるいはナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム等のアルコキッド等を挙げることができる。

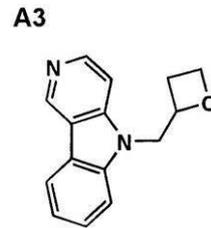
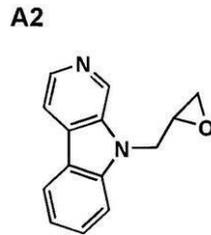
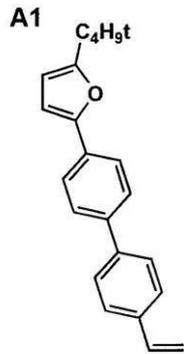
【0080】

以下に本発明に用いられる電子輸送材料および重合性化合物の具体的な例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

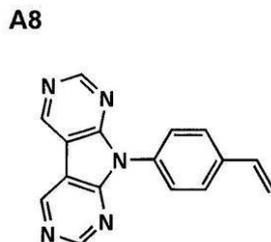
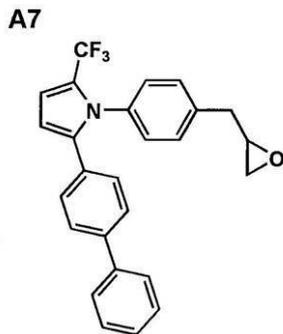
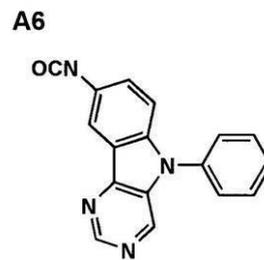
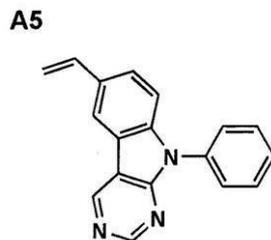
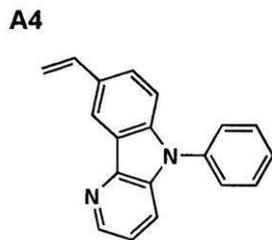
【0081】

【化14】

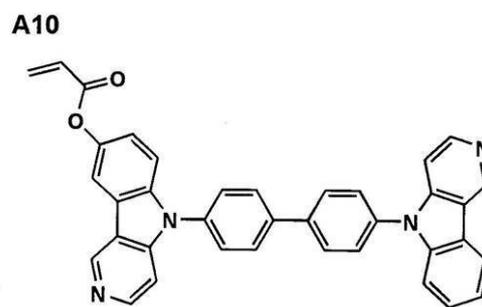
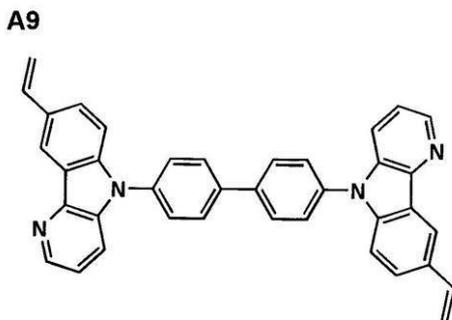
10



20



30

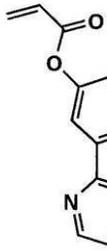


40

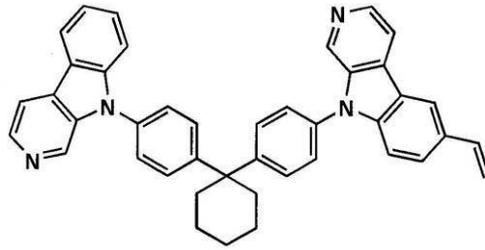
【0082】

【化 1 5】

A11

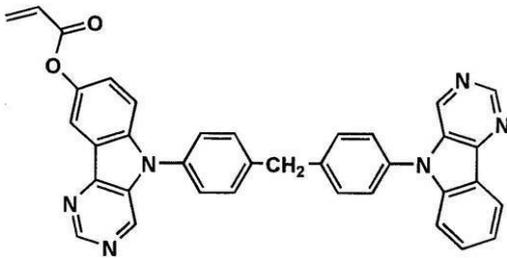


A12

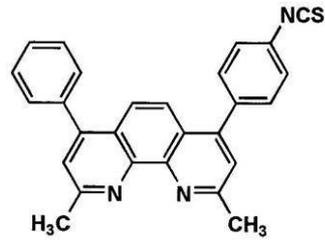


10

A13

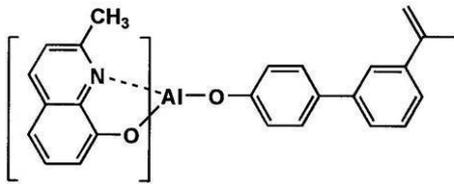


A14

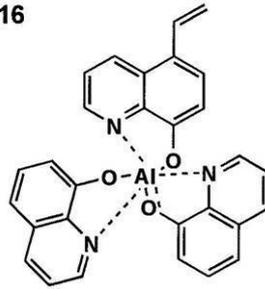


20

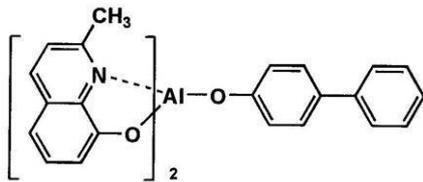
A15



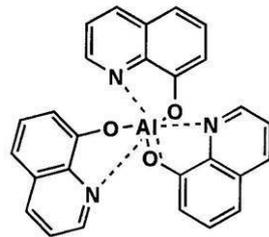
A16



A17



A18

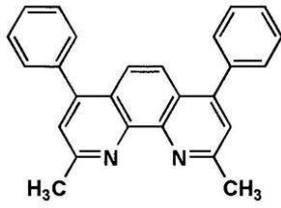


30

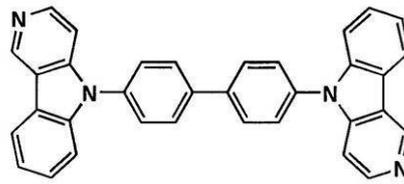
【 0 0 8 3】

【化 1 6】

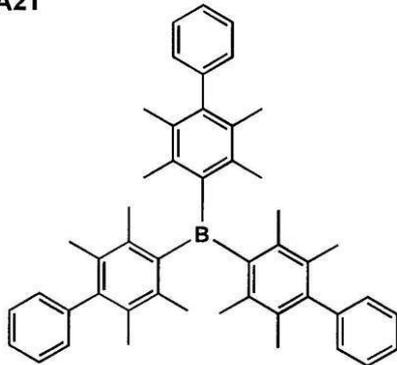
A19



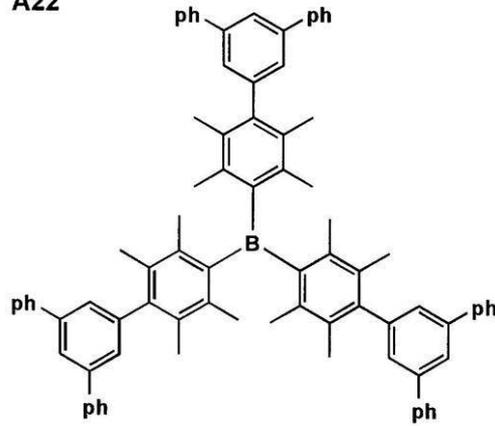
A20



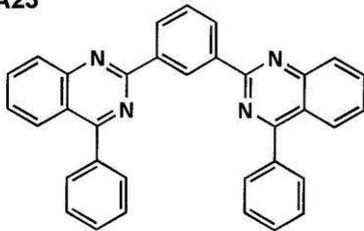
A21



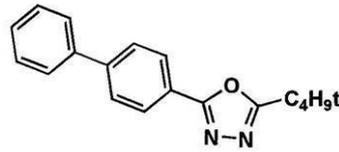
A22



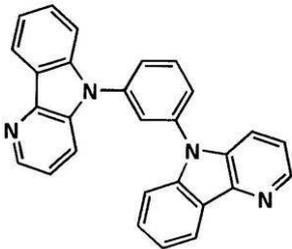
A23



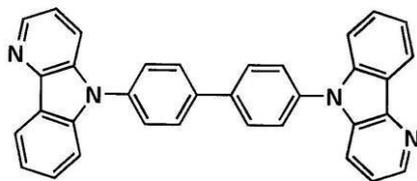
A24



A25



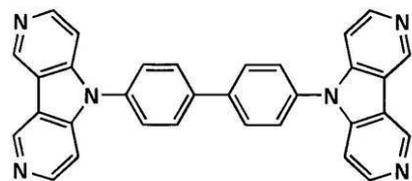
A26



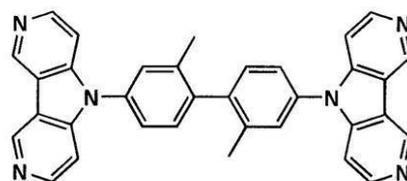
【 0 0 8 4】

【化 1 7】

A27



A28



【 0 0 8 5】

10

20

30

40

50

《ドナー性化合物》

本発明に係るドナー性化合物について説明する。

【0086】

本発明に用いられるドナー化合物としては、アルカリ金属及びアルカリ土類金属として元素周期表に記載の元素や、前記アルカリ金属の塩、前記アルカリ土類金属の塩が挙げられる。アルカリ金属の塩、アルカリ土類金属の塩としては、例えば、カルボン酸塩（酢酸塩等）、スルホン酸塩（メタンスルホン酸塩、トシル酸塩等）、ハロゲン化物（フッ化物、塩化物、臭化物及びヨウ化物等）、水酸化物、炭酸塩、硝酸塩及び硫酸塩等が挙げられる。

【0087】

上記の中でも、セシウムおよびその塩（例えば、フッ化セシウム、塩化セシウム、臭化セシウム、ヨウ化セシウム、酢酸セシウム、炭酸セシウム等）が好ましく、更に好ましくは、セシウムおよびフッ化セシウムである。

【0088】

本発明に係るドナー性化合物の電子輸送材料に対する添加割合は、1質量%～100質量%の範囲であることが好ましい。

【0089】

《有機エレクトロルミネッセンス素子の層構成》

本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）の層構成について説明する。

【0090】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、基板上に電極（陰極と陽極）と少なくとも1層以上の有機層を有し、有機層の少なくとも1層は燐光性化合物を含有する発光層である。

【0091】

本発明に係る発光層は、広義の意味では陰極と陽極からなる電極に電流を流した際に発光する層のことであり、具体的には陰極と陽極からなる電極に電流を流した際に発光する化合物を含有する層のことをさす。

【0092】

本発明に係る有機層は、発光層、正孔輸送層または電子輸送層の他に必要に応じ正孔輸送層、電子輸送層、陽極バッファ層及び陰極バッファ層等を有してもよく、陰極と陽極で挟持された構造をとる。有機EL素子を構成する、電極（陽極及び陰極）間に挟持された複数層のうち、有機層は2層以上であることが好ましく、さらに好ましくは3層以上である。

【0093】

本発明に係る有機層は蒸着法、塗布法で形成されるが、塗布法に際しては、スピコート、ディップコート、ロールコート、パーコート、フレキソ印刷、スクリーン印刷、オフセット印刷、インクジェット法であり、好ましくはインクジェット法である。

【0094】

《発光層》

本発明の有機EL素子に係る発光層について説明する。

【0095】

本発明の有機EL素子の発光層は、上記一般式(1)で表される燐光性化合物（燐光発光性化合物、有機金属錯体等ともいう）を含有するが、更に下記に記載のホスト化合物が含有されることが好ましい。これにより、より一層発光効率を高くすることができる。

【0096】

本発明に用いられるホスト化合物とは、発光層に含有される化合物のうちで室温（25）において燐光発光の燐光量子収率が、0.01未満の化合物と定義される。

【0097】

更に、ホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいるこ

10

20

30

40

50

とで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、燐光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。燐光性化合物の種類、ドーパ量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

【0098】

本発明に用いられるホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、発光の長波長化を防ぎ、且つ、高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。ホスト化合物としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、例えばカルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、フェナントロリン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、有機金属化合物、アリールメタン誘導体等が挙げられる。

10

【0099】

これらのうち、カルバゾール誘導体、カルボリン誘導体（アザカルバゾール誘導体ともいう）を用いることが好ましい。

【0100】

本発明に係る発光層には、上記一般式（1）で表される燐光性化合物（燐光発光性化合物、有機金属錯体等ともいう）と共に、従来公知の燐光性化合物を用いてもよい。

20

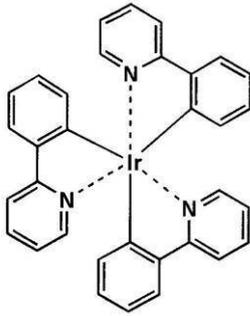
【0101】

以下に、併用可能な燐光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されない。また、これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。更に、これらの化合物は、重合性基または反応性基を有していてもいなくてもよい。

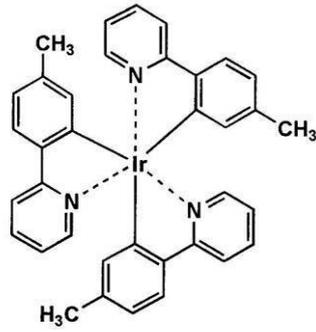
【0102】

【化 1 8】

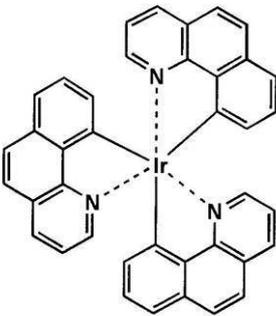
Ir-1



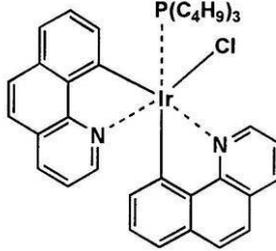
Ir-2



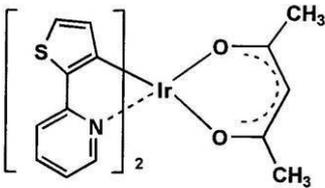
Ir-3



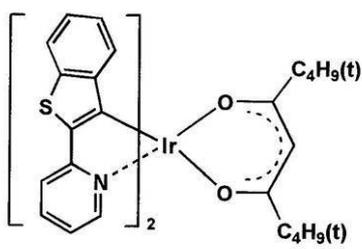
Ir-4



Ir-5



Ir-6



【 0 1 0 3】

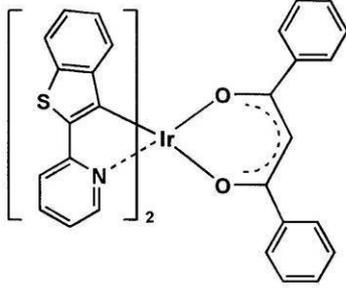
10

20

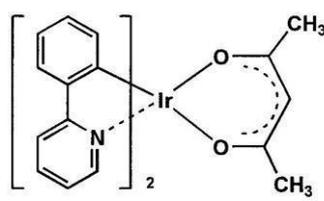
30

【化 1 9】

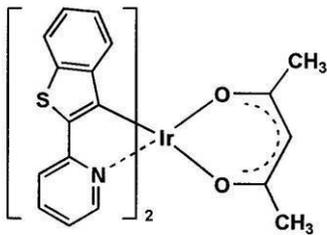
Ir-7



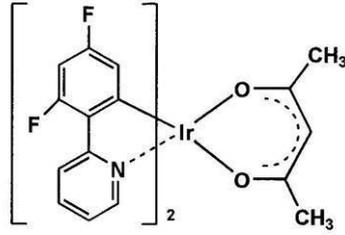
Ir-8



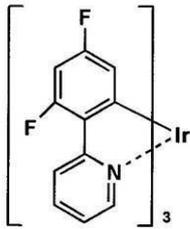
Ir-9



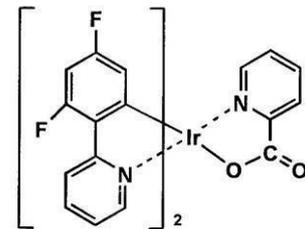
Ir-10



Ir-11



Ir-12



10

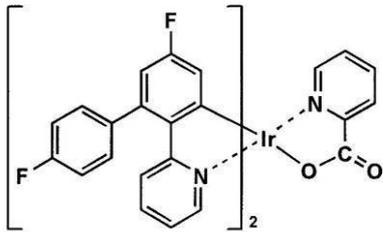
20

30

【 0 1 0 4】

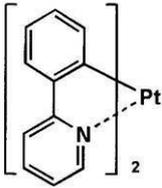
【化 2 0】

Ir-13

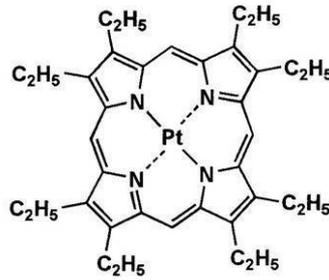


10

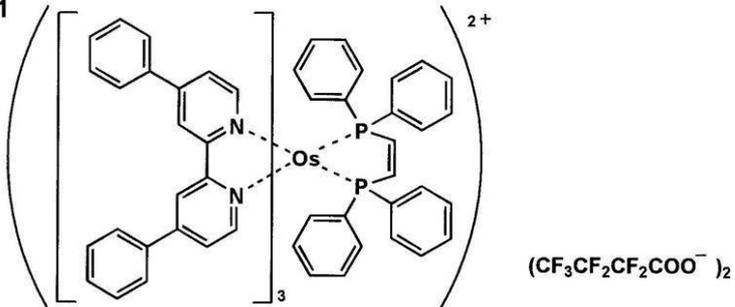
Pt-1



Pt-2



A-1



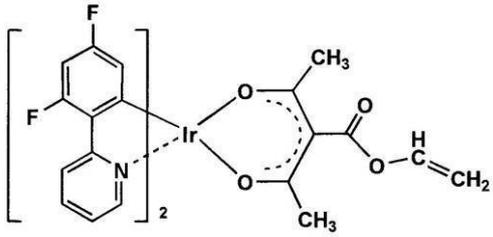
20

【 0 1 0 5】

30

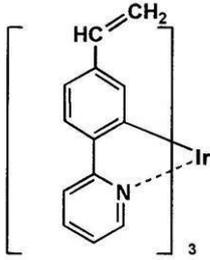
【化 2 1】

D-1

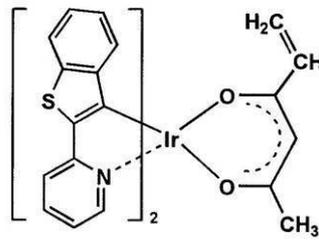


10

D-2

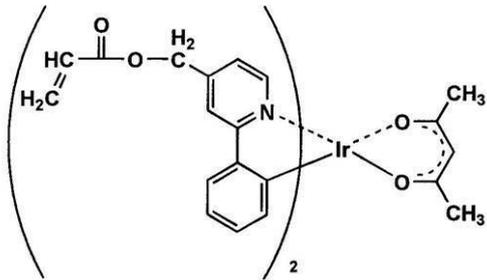


D-3



20

D-4

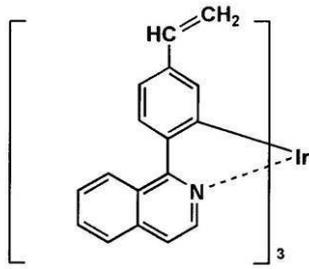


30

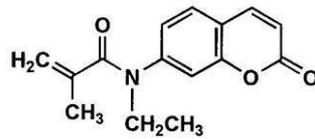
【 0 1 0 6 】

【化 2 2】

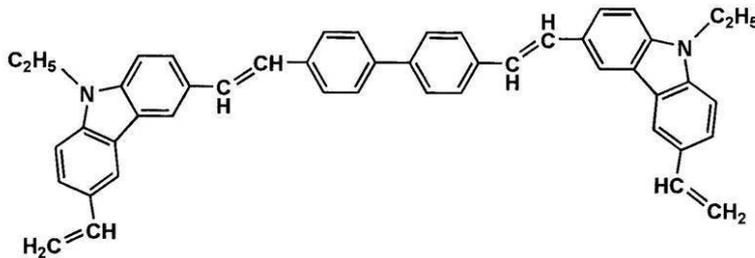
D-5



D-6



D-7



10

20

【 0 1 0 7 】

《 蛍光性化合物 》

本発明に係る燐光性化合物は、更に蛍光性化合物と併用してもよい。蛍光性化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光性化合物はクマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。ここでの蛍光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

30

本発明で用いられる燐光性化合物と併用可能な燐光性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。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704~1711に記載の方法等により合成できる。尚、含有する蛍光性化合物及び燐光性化合物は、重合性基または反応性基を有していても良く、有していなくてもよい。

【 0 1 0 8 】

ここでの蛍光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

【 0 1 0 9 】

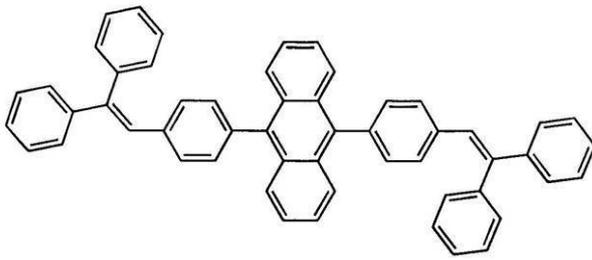
以下に、本発明に用いられる蛍光化合物の具体例を示すが本発明はこれらに限定されない。

40

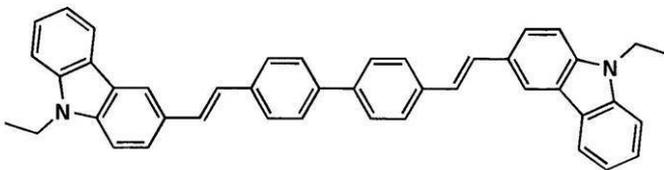
【 0 1 1 0 】

【化 2 3】

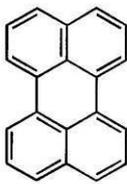
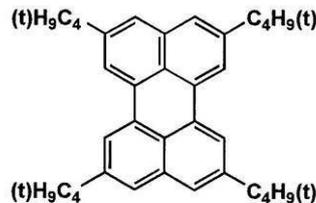
F1



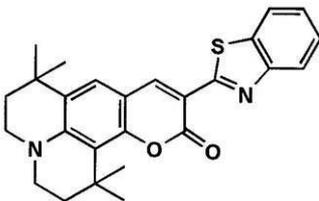
F2



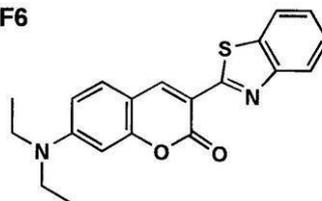
F3

F4 (t)H₉C₄ C₄H₉(t)

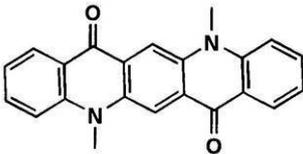
F5



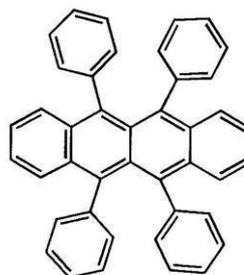
F6



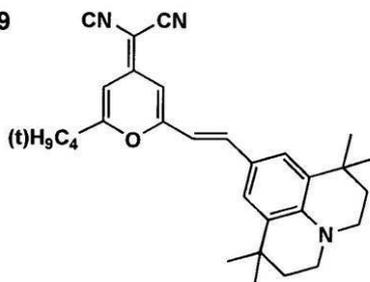
F7



F8



F9



10

20

30

40

50

【0111】

(発光層の膜厚)

このようにして形成された発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、5 nm ~ 5 μmの範囲に膜厚調整することが好ましい。

【0112】

次に正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層等、発光層と組み合わせて有機EL素子を構成するその他の層について説明する。

【0113】

《正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層》

本発明に用いられる正孔注入層、正孔輸送層は、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入層、正孔輸送層を陽極と発光層の間に介在させることに

より、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入され、その上発光層に陰極、電子注入層、または電子輸送層より注入された電子は、発光層と正孔注入層もしくは正孔輸送層の界面に存在する電子の障壁により、発光層内の界面に累積され発光効率が向上するなど発光性能の優れた素子となる。

【0114】

《正孔注入材料、正孔輸送材料》

この正孔注入層、正孔輸送層の材料（以下、正孔注入材料、正孔輸送材料という）については、前記の陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有する性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝性材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

10

【0115】

上記正孔注入材料、正孔輸送材料は正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。この正孔注入材料、正孔輸送材料としては、例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、または導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマーなどが挙げられる。

20

【0116】

正孔注入材料、正孔輸送材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0117】

上記芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N, N - テトラフェニル - 4, 4 - ジアミノフェニル; N, N - ジフェニル - N, N - ビス(3 - メチルフェニル) - [1, 1 - ビフェニル] - 4, 4 - ジアミン(TPD); 2, 2 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N, N - テトラ - p - トリル - 4, 4 - ジアミノビフェニル; 1, 1 - ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン; ビス(4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4 - ジ - p - トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N - ジフェニル - N, N - ジ(4 - メトキシフェニル) - 4, 4 - ジアミノビフェニル; N, N, N, N - テトラフェニル - 4, 4 - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4 - ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N - トリ(p - トリル)アミン; 4 - (ジ - p - トリルアミノ) - 4 - [4 - (ジ - p - トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル)ベンゼン; 3 - メトキシ - 4 - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン; N - フェニルカルバゾール、更に米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば、4, 4 - ビス[N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ]ビフェニル(-NPD)、特開平4 - 308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4, 4 - トリス[N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)などが挙げられる。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

30

40

【0118】

(アクセプター化合物)

上記正孔注入層、正孔輸送層はアクセプター化合物を添加してもよい。アクセプター化合物としては、Au、Pt、W、Ir、POCl₃、AsF₆、Br₂、I₂等の無機材料、

50

TCNQ (7, 7, 8, 8, -テトラシアノキノジメタン)、TCNQF₄ (テトラフルオロテトラシアノキノジメタン)等のキノジメタン誘導体、TCNE (テトラシアノエチレン)、HCNB (ヘキサシアノブタジエン)等のエチレン誘導体、DDQ (ジシクロジシアノベンゾキノン)等のシアノ基を有する化合物、TNF (トリニトロフルオレノン)、DNF (ジニトロフルオレノン)等のニトロ基を有する化合物、フルオラニル、クロラニル、プロマニル等の有機材料が挙げられる。この内、TCNQ、TCNQF₄、TCNE、HCNB、DDQ等のシアノ基を有する化合物がより好ましい。

なお、正孔輸送材料に対するアクセプターの添加割合は、1質量% ~ 100質量%であることが好ましい。

【0119】

またはp型-Si、p型-SiCなどの無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。この正孔注入層、正孔輸送層は上記正孔注入材料、正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法などの公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

【0120】

(正孔注入層の膜厚、正孔輸送層の膜厚)

正孔注入層、正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、5nm ~ 5μm程度の範囲に調整することが好ましい。この正孔注入層、正孔輸送層は上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよく、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

【0121】

《電子輸送層、電子輸送材料》

本発明に係る電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、上記の電子輸送材料が好ましく用いられるが、従来公知の電子輸送材料の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0122】

従来公知の電子輸送層に用いられる材料(以下、電子輸送材料という)の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレンなどの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、有機金属錯体などが挙げられる。更に上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

【0123】

または8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。

【0124】

その他、メタルフリーまたはメタルフタロシアニン、更にはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。または発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

【0125】

10

20

30

40

50

(電子輸送層の膜厚)

電子輸送層の膜厚は特に制限はないが、5 nm ~ 5 μm の範囲に調整することが好ましい。この電子輸送層は、これらの電子輸送材料一種または二種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

【0126】

更に、本発明においては、陽極と発光層または正孔注入層の間、及び陰極と発光層または電子注入層との間にはバッファ層（電極界面層）を存在させてもよい。

【0127】

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

10

【0128】

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

20

【0129】

陰極バッファ層は特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報の各公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウム、酸化リチウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

【0130】

上記バッファ層はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるがその膜厚は0.1 nm ~ 100 nm の範囲が好ましい。

【0131】

更に上記基本構成層の他に必要に応じてその他の機能を有する層を積層してもよく、例えば、特開平11-204258号公報、同11-204359号の各公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層などのような機能層を有していてもよい。

30

【0132】

《電極》

次に、有機EL素子の電極について説明する。有機EL素子の電極は陰極と陽極からなる。この有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

40

【0133】

上記陽極は蒸着やスパッタリング等の方法により、これらの電極物質の薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合（100 μm以上程度）は、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、または陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10 nm ~ 1 μm、好ましくは10 nm ~ 200 nm の範囲で選ばれる。

50

【0134】

一方、陰極としては仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物等が好適である。

10

【0135】

上記陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。または陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm ~ 1 μm、好ましくは50 nm ~ 200 nmの範囲で選ばれる。なお発光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であれば、発光効率が向上するので好都合である。

【0136】

《基材》

本発明の有機EL素子は、基材(以下、基板、基体、支持体、フィルム等ともいう)上に形成されているのが好ましい。

20

【0137】

本発明の有機EL素子に用いることのできる基材としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基材としては例えばガラス、石英、透明フィルムを挙げることができる。特に好ましい基材は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な透明樹脂フィルムである。

【0138】

具体的にはエチレン、ポリプロピレン、ブテン等の単独重合体または共重合体、または共重合体等のポリオレフィン(PO)樹脂、環状ポリオレフィン等の非晶質ポリオレフィン樹脂(APO)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレン2,6-ナフタレート(PEN)等のポリエステル系樹脂、ナイロン6、ナイロン12、共重合ナイロン等のポリアミド系(PA)樹脂、ポリビニルアルコール(PVA)樹脂、エチレン-ビニルアルコール共重合体(EVOH)等のポリビニルアルコール系樹脂、ポリイミド(PI)樹脂、ポリエーテルイミド(PEI)樹脂、ポリサルホン(PS)樹脂、ポリエーテルサルホン(PES)樹脂、ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)樹脂、ポリカーボネート(PC)樹脂、ポリビニルブチラート(PVB)樹脂、ポリアリレート(PAR)樹脂、エチレン-四フッ化エチレン共重合体(ETFE)、三フッ化塩化エチレン(PFA)、四フッ化エチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体(FEP)、フッ化ビニリデン(PVDF)、フッ化ビニル(PVF)、パーフルオロエチレン-パーフルオロプロピレン-パーフルオロビニルエーテル-共重合体(EPA)等のフッ素系樹脂等を用いることができる。

30

40

【0139】

また、上記に挙げた樹脂以外にも、ラジカル反応性不飽和化合物を有するアクリレート化合物によりなる樹脂組成物や、上記アクリレート化合物とチオール基を有するメルカプト化合物によりなる樹脂組成物、エポキシアクリレート、ウレタンアクリレート、ポリエーテルアクリレート、ポリエーテルアクリレート等のオリゴマーを多官能アクリレートモノマーに溶解せしめた樹脂組成物等の光硬化性樹脂及びこれらの混合物等を用いることも可能である。さらに、これらの樹脂の1または2種以上をラミネート、コーティング等の

50

手段によって積層させたものを基材フィルムとして用いることも可能である。

【0140】

これらの素材は単独であるいは適宜混合されて使用することもできる。中でもゼオネックスやゼオノア（日本ゼオン（株）製）、非晶質シクロポリオレフィン樹脂フィルムのARTON（ジェイエスアール（株）製）、ポリカーボネートフィルムのピュアエース（帝人（株）製）、セルローストリアセテートフィルムのコニカタックKC4UX、KC8UX（コニカミノルタオプト（株）製）等の市販品を好ましく使用することができる。

【0141】

また、上記に挙げた樹脂等を用いた本発明に係る基材は、未延伸フィルムでもよく、延伸フィルムでもよい。

10

【0142】

本発明に係る基材は、従来公知の一般的な方法により製造することが可能である。例えば、材料となる樹脂を押し出し機により溶融し、環状ダイやTダイにより押し出して急冷することにより、実質的に無定形で配向していない未延伸の基材を製造することができる。また、未延伸の基材を一軸延伸、テンター式逐次二軸延伸、テンター式同時二軸延伸、チューブラー式同時二軸延伸等の公知の方法により、基材の流れ（縦軸）方向、または基材の流れ方向と直角（横軸）方向に延伸することにより延伸基材を製造することができる。この場合の延伸倍率は、基材の原料となる樹脂に合わせて適宜選択することができるが、縦軸方向及び横軸方向にそれぞれ2～10倍が好ましい。

20

【0143】

また、本発明に係る基材においては、蒸着膜を形成する前にコロナ処理、火炎処理、プラズマ処理、グロー放電処理、粗面化処理、薬品処理等の表面処理を行ってもよい。

【0144】

さらに本発明に係る基材表面には、蒸着膜との密着性の向上を目的としてアンカーコート剤層を形成してもよい。このアンカーコート剤層に用いられるアンカーコート剤としては、ポリエステル樹脂、イソシアネート樹脂、ウレタン樹脂、アクリル樹脂、エチレンビニルアルコール樹脂、ビニル変性樹脂、エポキシ樹脂、変性スチレン樹脂、変性シリコン樹脂、及びアルキルチタネート等を、1または2種以上併せて使用することができる。これらのアンカーコート剤には、従来公知の添加剤を加えることもできる。そして、上記のアンカーコート剤はロールコート、グラビアコート、ナイフコート、ディップコート、スプレーコート等の公知の方法により基材上にコーティングし、溶剤、希釈剤等を乾燥除去することによりアンカーコーティングすることができる。上記のアンカーコート剤の塗布量としては、0.1～5 g/m²（乾燥状態）程度が好ましい。

30

【0145】

基材はロール状に巻き上げられた長尺品が便利である。基材の厚さは得られるフィルムの用途によって異なるので一概には規定できないが、フィルムを包装用途とする場合には、特に制限を受けるものではなく、包装材料としての適性から、3 μm～400 μm、中でも6 μm～30 μmの範囲内とすることが好ましい。

【0146】

また、本発明に用いられる基材は、フィルム形状のものの膜厚としては10 μm～200 μmが好ましく、より好ましくは50 μm～100 μmである。

40

【0147】

《表示装置》

本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような一種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は、単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を2種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。

【0148】

50

《光取り出し技術》

本発明の有機EL素子は、発光層から放射された光の取り出し効率を向上させるため、基板の表面にプリズムやレンズ状の加工を施す、もしくは基板の表面にプリズムシートやレンズシートを貼りつけてもよい。

【0149】

本発明の有機EL素子は、電極と基板の間に低屈折率層を有してもよい。低屈折率層としては、例えば、エアロゲル、多孔質シリカ、フッ化マグネシウム、フッ素系ポリマー等が挙げられる。

【0150】

基板の屈折率は一般に1.5~1.7程度であるので、低屈折率層は屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。またさらに1.35以下であることが好ましい。また、低屈折率媒質の厚みは媒質中の波長の2倍以上となるのが望ましい。これは低屈折率媒質の厚みが、光の波長程度になってエバネッセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む膜厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

【0151】

本発明の有機EL素子はいずれかの層間、もしくは媒質中(透明基板内や透明電極内)に回折格子を有してもよい。導入する回折格子は二次元的な周期屈折率を持っていることが望ましい。これは発光層で発光する光はあらゆる方向にランダムに発生するので、ある方向にのみ周期的な屈折率分布を持っている一般的な1次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。回折格子を導入する位置としては前述のとおり、いずれかの層間もしくは、媒質中(透明基板内や透明電極内)でもよいが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。このとき、回折格子の周期は媒質中の光の波長の約1/2~3倍程度が好ましい。回折格子の配列は、正方形のラチス状、三角形のラチス状、八ニカムラチス状等、2次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

【0152】

本発明に係る基材は、ガスバリア層を有することが好ましい。これによりダークスポット及び高温、高湿下での経時安定性のより一層の改良効果をもたらされる。

【0153】

《ガスバリア層》

本発明に係るガスバリア層とは、酸素及び水蒸気の透過を阻止する層であれば、その組成等は特に限定されるものではない。酸素の透過度が23%RHにおいて0.005ml/m²/日以下が好ましく、また、JIS K 7129B法に従って測定した水蒸気透過度が0.1g/m²/日以下が好ましい。本発明に係るガスバリア層を構成する材料として、具体的には無機酸化物が好ましく、酸化珪素、酸化アルミニウム、酸化窒化珪素、酸化窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化ズ等などを挙げることができる。

【0154】

また、本発明におけるガスバリア層の厚さは用いられる材料の種類、構成により最適条件が異なり、適宜選択されるが、5nm~2000nmの範囲内であることが好ましい。ガスバリア層の厚さが上記の範囲より薄い場合には、均一な膜が得られず、ガスに対するバリア性を得ることが困難であるからである。またガスバリア層の厚さが上記の範囲より厚い場合には、ガスバリア性フィルムにフレキシビリティを保持させることが困難であり、成膜後における折り曲げ、引っ張り等の外的要因により、ガスバリア性フィルムに亀裂が生じる等のおそれがあるからである。

【0155】

本発明に係るガスバリア層は、後述する原材料をスプレー法、スピンコート法、スパッタリング法、イオンアシスト法、後述するプラズマCVD法、後述する大気圧または大気圧近傍の圧力下でのプラズマCVD法等を適用して形成することができる。

【 0 1 5 6 】

図 1 は、本発明に係るガスバリア層を有する基材の構成を示す一例である。

【 0 1 5 7 】

本発明に係るガスバリア層を有する基材の構成とその密度について説明する。

【 0 1 5 8 】

本発明に係るガスバリア層 2 1 は、基材 2 2 上に密度の異なる層を積層しており、密着膜 2 3、セラミック膜 2 4 及び保護膜 2 5 を積層した構成をとる。図 1 においては 3 層を積層した例を示してある。各層内における密度分布は均一とし、セラミック膜の密度をその上下に位置する密着膜及び保護膜のそれぞれの密度よりも高く設定している。なお、図 1 においては各層を 1 層として示したが、必要に応じてそれぞれ 2 層以上の構成をとって

10

【 0 1 5 9 】

基材上に密着膜、セラミック膜及び保護膜を形成する方法としては、スプレー法、スピコート法、スパッタリング法、イオンアシスト法、後述するプラズマ C V D 法、後述する大気圧または大気圧近傍の圧力下でのプラズマ C V D 法等を適用して形成することができる。

【 実施例 】

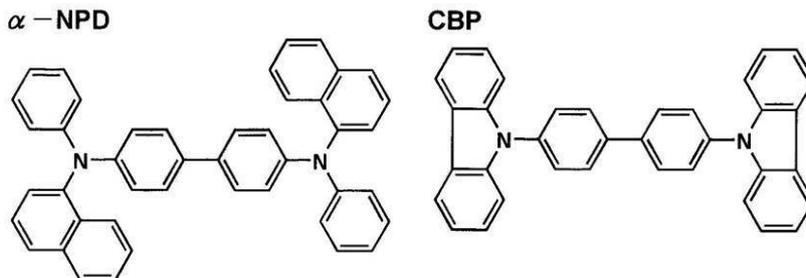
【 0 1 6 0 】

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらに限定されない。尚、特に断りない限り、実施例中の「%」は「質量%」を表す。また、実施例で用いる化合物の構造式を以下に示す。

20

【 0 1 6 1 】

【 化 2 4 】



30

【 0 1 6 2 】

実施例 1

基材として、厚さ 1 0 0 μ m のポリエチレンナフタレートフィルム（帝人・デュボン社製フィルム、以下 PEN と略記する）上に、下記の大気圧プラズマ放電処理装置及び放電条件で、図 1 に記載のプロファイル構成でバリア層を有する基材 1 を作製した。

【 0 1 6 3 】

（大気圧プラズマ放電処理装置）

40

図 2 の大気圧プラズマ放電処理装置を用い、誘電体で被覆したロール電極及び複数の角筒型電極のセットを以下のように作製した。

【 0 1 6 4 】

第 1 電極となるロール電極は、冷却水による冷却手段を有するチタン合金 T 6 4 製ジャケットロール金属質母材に対して、大気プラズマ法により高密度、高密着性のアルミナ溶射膜を被覆し、ロール径 1 0 0 0 mm となるようにした。一方、第 2 電極の角筒型電極は、中空の角筒型のチタン合金 T 6 4 に対し、上記同様の誘電体を同条件にて方肉で 1 m 被覆し、対向する角筒型固定電極群とした。

【 0 1 6 5 】

この角筒型電極をロール回転電極のまわりに、対向電極間隙を 1 mm として 1 0 本配置

50

した。角筒型固定電極群の放電総面積は、150cm(幅手方向の長さ)×4cm(搬送方向の長さ)×10本(電極の数)=6000cm²であった。なお、何れもフィルターは適切なものを設置した。

【0166】

プラズマ放電中、第1電極(ロール回転電極)は120及び第2電極(角筒型固定電極群)は80になるように調節保温し、ロール回転電極はドライブで回転させて薄膜形成を行った。上記10本の角筒型固定電極中、上流側より2本を下記第1層(密着層)の製膜用に、次の6本を下記第2層(セラミック層)の製膜用に、次の2本を第3層(保護層)の製膜用に使用し、各条件を設定して1パスで3層を積層した。

【0167】

(第1層:密着層)

下記の条件で、プラズマ放電を行って、厚さ約50nmの密着層(膜)を形成した。

【0168】

ガス条件

放電ガス:窒素ガス 94.5体積%

薄膜形成性ガス:ヘキサメチルジシロキサン(リンテック社製気化器にて窒素ガスに混合して気化) 0.5体積%

添加ガス:酸素ガス 5.0体積%

電源条件:第1電極側の電源のみを使用した

第1電極側 電源種類 応用電機社製高周波電源

周波数 80kHz

出力密度 10W/cm²

上記形成した第1層(密着層)の密度は、前述のマックサイエンス社製MXP21を用いたX線反射率法で測定した結果、1.90であった。

【0169】

(第2層:セラミック層)

下記の条件で、プラズマ放電を行って、厚さ約30nmのセラミック層(膜)を形成した。

【0170】

ガス条件

放電ガス:窒素ガス 94.9体積%

薄膜形成性ガス:ヘキサメチルジシロキサン(リンテック社製気化器にて窒素ガスに混合して気化) 0.1体積%

添加ガス:酸素ガス 5.0体積%

電源条件

第1電極側 電源種類 応用電機社製高周波電源

周波数 80kHz

出力密度 10W/cm²

第2電極側 電源種類 パール工業社製高周波電源

周波数 13.56MHz

出力密度 10W/cm²

上記形成した第2層(セラミック層)の密度は、前述のマックサイエンス社製MXP21を用いたX線反射率法で測定した結果、2.20であった。

【0171】

(第3層:保護層)

下記の条件で、プラズマ放電を行って、厚さ約200nmの保護層(膜)を形成した。

【0172】

ガス条件

放電ガス:窒素ガス 93.0体積%

薄膜形成性ガス:ヘキサメチルジシロキサン(リンテック社製気化器にて窒素ガスに混

10

20

30

40

50

合して気化) 2.0体積%
 添加ガス：酸素ガス 5.0体積%

電源条件：第1電極側の電源のみを使用した

第1電極側 電源種類 応用電機社製高周波電源
 周波数 80kHz
 出力密度 10W/cm²

上記形成した第3層(保護層)の密度は、前述のマックサイエンス社製MXP21を用いたX線反射率法で測定した結果、1.95であった。

【0173】

JIS-K-7129-1992に準拠した方法により水蒸気透過率(25±0.5、相対湿度(90±2)%RH)を測定した結果、10⁻³g/(m²・24hr)以下であった。JIS-K-7126-1987に準拠した方法により酸素透過率を測定した結果、10⁻³ml/(m²・24hr・MPa)以下であった。

10

【0174】

次いで、ガスバリア層を有する基材1上にITO(インジウムチンオキシド)を120nm成膜した基板にパターンニングを行った後、このITO透明電極を付けた基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空度4×10⁻⁴Paまで減圧し、ITO基板100を作製した。

20

【0175】

《有機EL素子OLED1-1の作製》

図3に示すようなインクジェット記録方法を用いて、本発明の有機EL素子OLED1-1の作製を行った。以下、その工程について図3を基にして説明する。

【0176】

市販のインクジェット式ヘッド10(コニカミノルタ製KM512S非水系ヘッド)を用いて、正孔輸送材料としてNPD(NPD)及びTHFを含む流動体Dを、ITO基板100上に吐出させ、100、60分の条件にて、膜厚50nmの正孔輸送層11を形成した。

【0177】

次に、インクジェット式ヘッド10を用いて、ホストとしてCBP、燐光性化合物1-1(質量比100:5)及びTHFを含む流動体D2(図示せず)を、正孔輸送層111上に吐出させ、100、60分の条件にて、膜厚50nmの発光層112を形成した。

30

【0178】

次に、例示化合物A10の重合体(合成方法を下記に示す。)、セシウム(質量比100:30)及びTHFを含む流動体D3(図示せず)を、発光層112上に吐出させ、100、60分の条件にて、膜厚50nmの電子輸送層113を形成した。次に、電子輸送層113の上に厚さ200nmのアルミニウム114(陰極)を蒸着形成した。

【0179】

更に、その上にガスバリア層115を有する基材1を貼りつけて、有機EL素子OLED1-1を作製した。

40

【0180】

(例示化合物A10の重合体の合成)

反応容器に、1.4g(2.5mmol)の例示化合物A10、0.010g(0.061mmol)の2,2'-アゾビス(イソブチロニトリル)(AIBN)、酢酸ブチル30mlを入れて窒素置換を行った後、80で10時間反応させた。反応後、アセトンに投入して再沈殿を行い、濾過によりポリマーを回収した。回収したポリマーのクロロホルム溶液をメタノール中に投入して再沈殿させることを更に2回行うことにより精製し、回収後真空乾燥して、目的とする例示化合物A10の重合体1.20gを粉末として得た。

【0181】

50

この共重合体の重量平均分子量はポリスチレン換算で15000（HFIP（ヘキサフルオロイソプロパノール）を溶離液に用い、市販のGPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）測定装置を用いて分子量測定を行った。）であった。

【0182】

《有機EL素子OLED1-2～1-10の作製》

有機EL素子OLED1-1の作製において、各層の材料を下記表1に示す材料及び/または化合物に代えた以外は、同様にして、有機EL素子OLED1-2～1-10を作製した。

【0183】

【表1】

有機EL素子No.	電子輸送層膜厚(50nm)		発光層膜厚(50nm) ドーパント(5質量%)	正孔輸送層膜厚(50nm)		備考
	電子輸送材料(※1)	ドナー化合物(※1)		正孔輸送材料(※2)	アクセプター化合物(※2)	
OLED1-1	A10	Cs	1-1	NPD	-	本発明
OLED1-2	A22	CsF	1-2	NPD	-	本発明
OLED1-3	A28	CsCO ₃	1-17	NPD	-	本発明
OLED1-4	A27	CsF	1-20	NPD	-	本発明
OLED1-5	A21	CH ₃ COOCs	1-22	NPD	-	本発明
OLED1-8	A22	CsF	1-2	NPD	TCNQ(※3)	本発明
OLED1-9	A21	CsCO ₃	Ir-12	NPD	-	比較例
OLED1-10	A21	-	Ir-12	NPD	-	比較例

(※1)：電子輸送材料：ドナー化合物=100：30(質量比)

(※2)：正孔輸送材料とアクセプター化合物=100：50(質量比)

(※3)：TCNQ(7, 7, 8, 8, -テトラシアノキノジメタン)

【0184】

《有機EL素子の評価》

以下のようにして得られた有機EL素子の評価を行い、結果を表2に示す。

【0185】

《発光輝度》

有機EL素子の温度23℃、10V直流電圧を印加した時の発光輝度(c d / m²)を測定した。発光輝度は有機エレクトロルミネッセンス素子OLED1-10を100とした時の相対値で表した。発光輝度については、CS-1000(コニカミノルタセンシング社製)を用いて測定した。

【0186】

《外部取り出し量子効率》

作製した有機EL素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm²定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。なお測定には同様に分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタセンシング社製)を用いた。なお、50時間の駆動寿命は、比較の有機エレクトロルミネッセンス素子OLED1-10を100とした時の相対値で表した。

【0187】

《駆動電圧》

駆動電圧とは、2.5mA/cm²で駆動した時の電圧で、有機エレクトロルミネッセンス素子OLED1-10を100とした時の相対値で表した。

10

20

30

40

50

【0188】

《電圧上昇率》

10 mA / cm²の一定電流で駆動したときに、初期電圧と150時間後の電圧を測定した。初期電圧に対する100時間後の電圧の相対値を電圧上昇率とした。

【0189】

《駆動寿命》

各有機EL素子を、50の一定条件で、初期輝度1000 cd / m²を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の1/2 (500 cd / m²)になる時間を求め、これを50駆動寿命の尺度とした。尚、50駆動寿命は、比較の有機エレクトロルミネッセンス素子OLED1-10を100とした時の相対値で表した。

10

【0190】

【表2】

有機EL素子No.	発光輝度	外部取りだし量子効率	駆動電圧	電圧上昇率	駆動寿命	備考
OLED1-1	120	121	77	111	280	本発明
OLED1-2	122	123	76	110	300	本発明
OLED1-3	114	113	83	114	220	本発明
OLED1-4	115	115	82	114	230	本発明
OLED1-5	112	111	84	116	205	本発明
OLED1-8	122	123	72	110	310	本発明
OLED1-9	104	105	90	119	102	比較例
OLED1-10	100	100	100	125	100	比較例

20

【0191】

表2から、比較に比べて、本発明の有機EL素子は発光輝度、外部取りだし量子効率、駆動電圧特性が良好であり、定電流駆動したときの電圧上昇が少なく、さらに駆動寿命が良好な素子であることが明らかである。

30

【0192】

実施例2

《有機EL素子OLED2-1の作製》

陽極として100 mm × 100 mm × 1.1 mmのガラス基板の上にITO (インジウムチンオキサイド) を100 nm製膜した基板 (NHテクノグラス社製NA45) にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートにNPDを200 mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物としてCBPを200 mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパントD-1を100 mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにA21とを200 mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにA18を100 mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにフッ化リチウムを100 mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートにD-1を100 mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

40

【0193】

次いで、真空槽を4 × 10⁻⁴ Paまで減圧した後、NPDの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm / 秒で透明支持基板に蒸着し正孔輸送層を設けた。更に、CBPとD-1の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、各々蒸着速度0.2 nm

50

/秒、0.010 nm/秒で前記正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。

【0194】

尚、蒸着時の基板温度は室温であった。更に、A19の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で前記発光層の上に蒸着して膜厚10 nmの正孔阻止層を設けた。

【0195】

更に、A18とフッ化リチウムの入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で正孔阻止層の上に蒸着して膜厚10 nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

【0196】

引き続きアルミニウム110 nmを蒸着して陰極を形成し、更にその上にガスバリア層を有する基材1を貼りつけて、有機EL素子OLED2-1を作製した。

【0197】

《有機EL素子OLED2-2~2-10の作製》

有機EL素子2-1の作製において、電子輸送層、発光層および正孔輸送層の構成材料を表3に示す材料(化合物ともいう)に代えた以外は同様にして有機EL素子2-2~2-10を作製した。

【0198】

【表3】

有機EL素子No.	電子輸送層 膜厚(50nm)		発光層 膜厚(50nm) ドーパント (5質量%)	正孔輸送層 膜厚(50nm)		備考
	電子輸送材料 (※1)	ドナー化合物 (※1)		正孔輸送材料 (※2)	アクセプター化合物 (※2)	
OLED2-1	A18	LiF	Ir-12	NPD	—	比較例
OLED2-2	A18	—	Ir-12	NPD	—	比較例
OLED2-3	A22	CsF	1-2	NPD	—	本発明
OLED2-4	A28	CsCO ₃	1-17	NPD	—	本発明
OLED2-5	A27	CsF	1-20	NPD	—	本発明
OLED2-6	A21	CH ₃ COOCs	1-22	NPD	—	本発明
OLED2-9	A21	LiF	1-72	NPD	—	本発明
OLED2-10	A22	CsF	1-2	NPD	DDQ(※3)	本発明

(※1)：電子輸送材料：ドナー化合物=100：30(質量比)

(※2)：正孔輸送材料とアクセプター化合物=100：50(質量比)

(※3)：DDQ(ジシクロジシアノベンゾキノン)

【0199】

《有機EL素子2-1~2-10の評価》

得られた有機EL素子2-1~2-10の評価を、実施例1に記載と同様に行った。

【0200】

尚、発光輝度、外部取りだし量子効率、駆動電圧および駆動寿命は有機エレクトロルミネッセンス素子OLED2-2を100とした時の相対値で表した。表4に有機EL素子の評価結果を示す。

【0201】

10

20

30

40

【表 4】

有機 EL素子 No.	発光輝度	外部取りだし 量子効率	駆動電圧	電圧上昇率	駆動寿命	備考
OLED2-1	103	103	91	120	102	比較例
OLED2-2	100	100	100	126	100	比較例
OLED2-3	121	121	77	111	290	本発明
OLED2-4	113	112	84	115	210	本発明
OLED2-5	114	113	83	115	215	本発明
OLED2-6	111	110	85	117	200	本発明
OLED2-9	109	108	86	117	185	本発明
OLED2-10	122	123	72	110	310	本発明

10

【0202】

20

表 4 から、比較に比べて、本発明の有機 EL 素子は発光輝度、外部取りだし量子効率、駆動電圧特性が良好であり、定電流駆動したときの電圧上昇が少なく、さらに駆動寿命が良好な素子であることがわかった。

【0203】

実施例 3

《フルカラー表示装置の作製》

実施例 2 で作製した本発明の有機 EL 素子 2 - 3 と、実施例 2 で作製した本発明の有機 EL 素子 OLED 2 - 3 の燐光性化合物を Ir - 1 に代えた以外は、同様にして作製した緑色発光有機 EL 素子と、本発明の有機 EL 素子 OLED 2 - 3 の燐光性化合物を Ir - 9 に代えた以外は、同様にして作製した赤色発光有機 EL 素子を同一基板上に並置し、図 4 に示すアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製した。図 5 には、作製したフルカラー表示装置の表示部 A の模式図のみを示した。即ち同一基板上に、複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と、並置した複数の画素 3 (発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等) とを有し、配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 はそれぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している (詳細は図示せず)。前記複数の画素 3 は、それぞれの発光色に対応した有機 EL 素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このように各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フル

30

40

【0204】

フルカラー表示装置を駆動することにより、鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

【0205】

実施例 4

《照明装置の作製》

実施例 3 で作製した青色発光、緑色発光及び赤色発光の有機 EL 素子各々の非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は発光効率が高く、発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。図 6 は照明装置の概略図で、図 7 は照明装置の断面図である。有機 EL 素子 101 をガラスカバー 102 で覆った。10

50

5は陰極で106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板である。なおガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

【0206】

実施例5

《有機EL素子OLED5-1の作製》

実施例2の有機EL素子OLED2-1の作製において、表5に示す材料(化合物)及び膜厚構成に変更した以外は同様にして、有機EL素子OLED5-1を作製した。尚、表5中の%は質量比(%)を表す。

【0207】

【表5】

有機EL素子No.	有機層	材料	膜厚(nm)
OLED5-1	正孔輸送層	NPD(75%) DDQ(25%)	40
	正孔輸送層	NPD	10
	発光層1	CBP(97%) Ir-12(3%)	15
	中間層1	CBP	5
	発光層2	CBP(92%) Ir-9(8%)	10
	中間層2	CBP	5
	発光層3	CBP(95%) 1-1(5%)	5
	電子輸送層	A17	10
	電子輸送層	A28(75%) CsF(25%)	50

10

20

30

【0208】

次いで、その上に厚さ200nmのアルミニウムを蒸着した。封止にあたっては、有機EL素子OLED1-1と同様にガスバリア層を有する基材1を貼りつけた。

【0209】

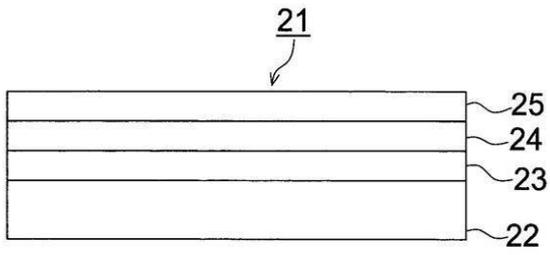
得られた有機EL素子OLED5-1を実施例4と同様に図6、図7に示すような照明装置とした。得られた照明装置は発光効率が高く、発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。

【0210】

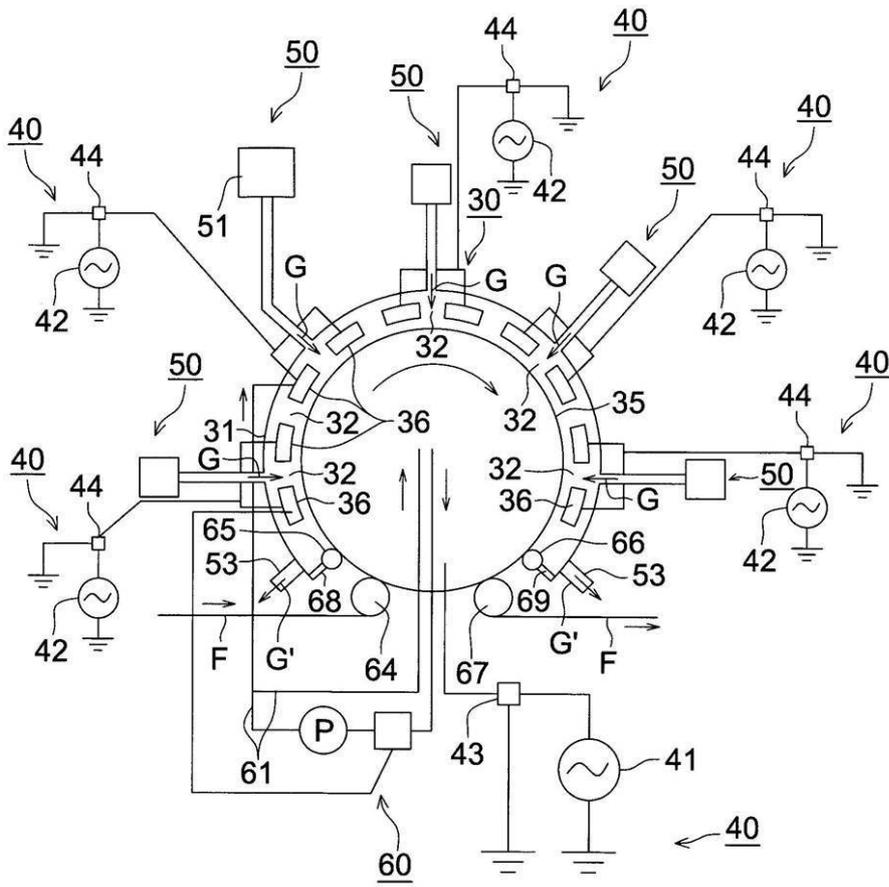
次いで、ディスプレイ用として市販されているカラーフィルターを組み合わせた際の色再現域を評価した。有機EL素子5-1とカラーフィルターの組み合わせにおいて、色再現域が広く、色再現性において優れた性能を有することが確認された。

40

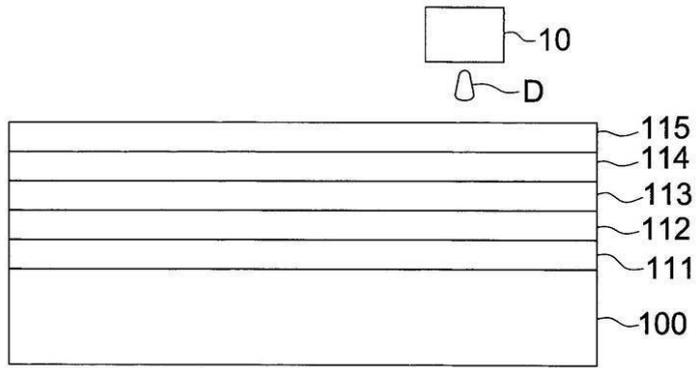
【 図 1 】



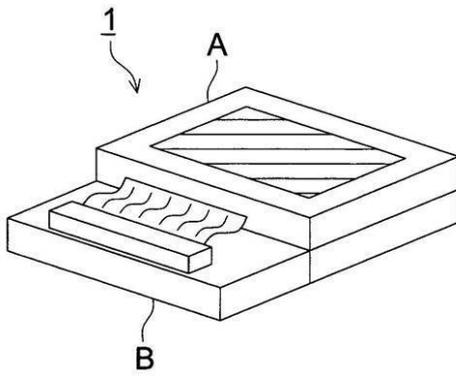
【 図 2 】



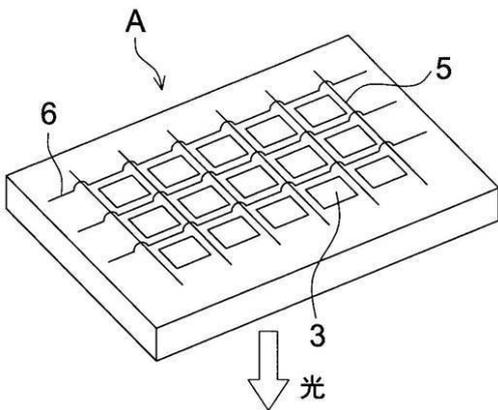
【 図 3 】



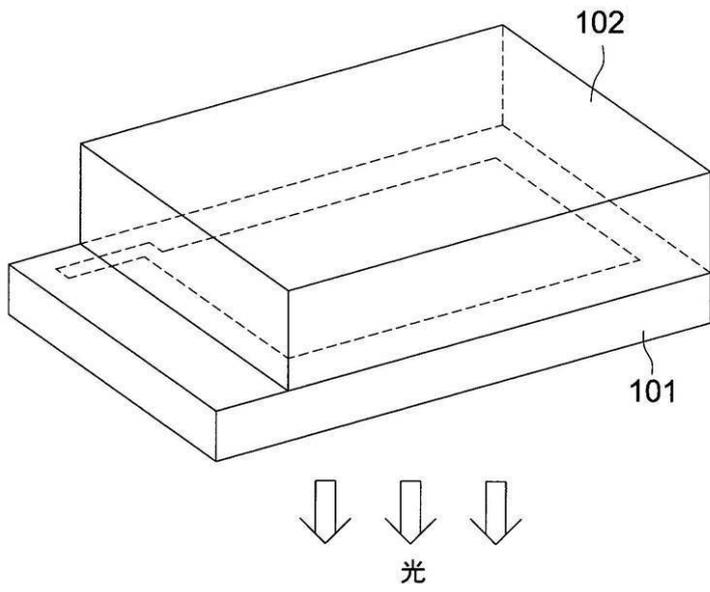
【 図 4 】



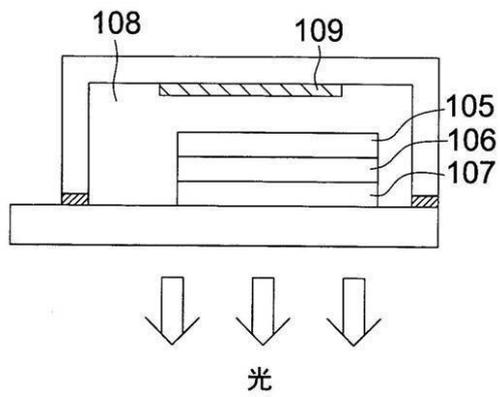
【 図 5 】



【 図 6 】



【 図 7 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2006/324530
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01) i, C09K11/06(2006.01) i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01L51/50, C09K11/06 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2007 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2007 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2007 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA), 01 December, 2005 (01.12.05), Par. Nos. [0123], [0541] to [0542] & US 2005/0260441 A1	1-2 3
X Y	WO 2004/085450 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA), 07 October, 2004 (07.10.04), Par. Nos. [0024], [0028] to [0029], [0043] to [0063]; table 3; Fig. 1 & US 2004/0253478 A1 & EP 001606296 A & JP 2006-523231 A Par. Nos. [0026], [0030] to [0031], [0045] to [0085]; tables 3A, 3B; Fig. 1	1-2 3
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 13 February, 2007 (13.02.07)		Date of mailing of the international search report 27 February, 2007 (27.02.07)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/324530

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2005/019373 A2 (BASF AG.),	1-2
Y	03 March, 2005 (03.03.05), Page 22, line 36 to page 24, line 2; page 34, line 30 to page 35, line 23; page 37, line 29 to page 38, lines 2, 9 to 21; Fig. 1 & EP 001658349 A & DE 010338550 A & US 2006/0258043 A1 Par. Nos. [0109] to [0111], [0169] to [0171], [0178], [0180]; Fig. 1	3
Y	A.G. Werner et al, 'Pyronin B as a donor	3
A	for n-type doping of organic thin films' Applied Physics Letters, vol.82, p.4495-4497(2003), page 4495, left column, lines 16 to 20	1-2
Y	M. Pfeiffer et al, 'Doped organic semiconductors:	3
A	Physics and application in light emitting diodes' Organic Electronics, vol.4, p.89-103 (2003), page 94, left column, lines 10 to 14; page 100, left column, lines 21 to 27	1-2
A	WO 2005/007767 A2 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 27 January, 2005 (27.01.05), Full text & EP 001647554 A Full text	1-3
A	JP 2005-053912 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 03 March, 2005 (03.03.05), Full text (Family: none)	1-3
A	JP 2005-068110 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 17 March, 2005 (17.03.05), Full text (Family: none)	1-3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/324530

Box No. II	Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)
<p>This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:</p> <p>1. <input type="checkbox"/> Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:</p> <p>2. <input type="checkbox"/> Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:</p> <p>3. <input type="checkbox"/> Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).</p>	
Box No. III	Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)
<p>This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows: See extra sheet</p> <p>1. <input type="checkbox"/> As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.</p> <p>2. <input type="checkbox"/> As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.</p> <p>3. <input checked="" type="checkbox"/> As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.: 1 - 3</p> <p>4. <input type="checkbox"/> No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:</p> <p>Remark on Protest</p> <p><input type="checkbox"/> The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee..</p> <p><input type="checkbox"/> The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> No protest accompanied the payment of additional search fees.</p>	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/324530

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

The technical feature common to the inventions of claims 1-2, claim 3, claim 4, claim 5, claim 6, claim 7, claim 8, claim 9 and claims 10-11 is in that "organic layers of an organic electroluminescent device include a light-emitting layer containing a phosphorescent compound represented by the general formula (1) and a layer containing an electron-transporting material and a donor compound".

"An organic light-emitting diode having an anode and a cathode arranged on a substrate and a light-emitting layer containing $\text{Ir}(1\text{-Ph-3-Me-imd})_3$ and an n-doped electron transporting layer composed of an Li-doped BPhen(4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline) arranged between the anode and cathode" is disclosed in WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 01 December, 2005 (01.12.05), paragraphs [0123], [0541]-[0542], and thus an organic electroluminescent device wherein organic layers include a light-emitting layer containing a phosphorescent compound represented by the general formula (1) and a layer containing an electron-transporting material and a donor compound is publicly known.

Consequently, there is no technical relationship among the inventions of claims 1-2, claim 3, claim 4, claim 5, claim 6, claim 7, claim 8, claim 9 and claims 10-11 involving the same or a corresponding special technical feature.

Therefore, the inventions of claims 1-2, claim 3, claim 4, claim 5, claim 6, claim 7, claim 8, claim 9 and claims 10-11 are not considered as a group of inventions so linked as to form a single general inventive concept.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2006/324530	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01L51/50, C09K11/06			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2007年 日本国実用新案登録公報 1996-2007年 日本国登録実用新案公報 1994-2007年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X Y	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSI TY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2005. 12. 01, 段落 [0123], 段落 [0541] - [0542] & US 2005/0260441 A1	1-2 3	
X Y	WO 2004/085450 A2 (THE UNIVERSI TY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2004. 10. 07, 段落 [0024], 段落 [0028] - [0029], 段落 [0043] - [0063], 表3, 第1図 & US 200	1-2 3	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。		<input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。	
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 13. 02. 2007		国際調査報告の発送日 27. 02. 2007	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 本田 博幸 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2006/324530
C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	4/0253478 A1 & EP 001606296 A & JP 2006-523231 A, 段落[0026], 段落[0030] - [0031], 段落[0045] - [0085], 表3A, 表3B, 第1図	
X	WO 2005/019373 A2 (BASF AKTIENG	1-2
Y	ESELLSCHAFT) 2005. 03. 03, 第22頁第36 行-第24頁第2行, 第34頁第30行-第35頁第23行, 第3 7頁第29行-第38頁第2行, 第38頁第9-21行, 第1図 & EP 001658349 A & DE 010338550 A & US 2006/0258043 A1, 段落[0109] - [0111], 段落[0169] - [0171], 段落[0178], 段落[0180], 第1図	3
Y	A. G. Werner et al, 'Pyronin B as a donor for n-type doping of	3
A	organic thin films' Applied Physics Letters, vol.82, p.4495-4497 (2003), 4495 頁左欄第 16-20 行	1-2
Y	M. Pfeiffer et al, 'Doped organic semiconductors: Physics and	3
A	application in light emitting diodes' Organic Electronics, vol.4, p.89-103 (2003), 94 頁左欄第 10-14 行, 100 頁左欄第 21-27 行	1-2
A	WO 2005/007767 A2 (出光興産株式会社) 200 5. 01. 27, 全文 & EP 001647554 A, 全文	1-3
A	JP 2005-053912 A (三星エスディアイ株式会社) 2005. 03. 03, 全文 (ファミリーなし)	1-3
A	JP 2005-068110 A (三菱化学株式会社) 2005. 03. 17, 全文 (ファミリーなし)	1-3

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2 0 0 6 / 3 2 4 5 3 0

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。
特別ページに示す理由による。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
請求の範囲1-3
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付を伴う異議申立てがなかった。

様式PCT/ISA/210 (第1ページの続葉(2)) (2005年4月)

第III欄

請求の範囲1-2、請求の範囲3、請求の範囲4、請求の範囲5、請求の範囲6、請求の範囲7、請求の範囲8、請求の範囲9、請求の範囲10-11に係る発明の共通事項は、「有機エレクトロルミネッセンス素子の有機層が、一般式(1)で表される燐光性化合物を含有する発光層と、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有する層を有する」ことである。

しかしながら、文献WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2005.12.01の段落[0123]、段落[0541]-[0542]には、「基板上に、陽極と陰極を有し、前記陽極と前記陰極との間に、Ir(1-Ph-3-Me-imd)を含有する発光層と、LiをドープしたBPhen(4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline)からなるnドープト電子輸送層とを有する有機発光ダイオード」が開示されており、有機層が、一般式(1)で表される燐光性化合物を含有する発光層と、電子輸送材料及びドナー性化合物を含有する層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子は公知である。

したがって、上記の請求の範囲1-2、請求の範囲3、請求の範囲4、請求の範囲5、請求の範囲6、請求の範囲7、請求の範囲8、請求の範囲9、請求の範囲10-11に係る発明は相互に同一の又は対応する特別の技術的特徴によって表現された技術的相互関連性を有しているとは認められない。

よって、請求の範囲1-2、請求の範囲3、請求の範囲4、請求の範囲5、請求の範囲6、請求の範囲7、請求の範囲8、請求の範囲9、請求の範囲10-11に係る発明は単一の一般的発明概念を形成するように関連している一群の発明とは認められない。

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。