

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02010/095564

発行日 平成24年8月23日 (2012.8.23)

(43) 国際公開日 平成22年8月26日 (2010.8.26)

| (51) Int.Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|-----------------------------|----------------|-------------|
| H05B 33/12 (2006.01) | H05B 33/12 C | 3K107 |
| H05B 33/10 (2006.01) | H05B 33/10 | 4H050 |
| H01L 51/50 (2006.01) | H05B 33/14 B | |
| C09K 11/06 (2006.01) | C09K 11/06 660 | |
| C07F 15/00 (2006.01) | C07F 15/00 E | |

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 79 頁)

出願番号 特願2011-500580 (P2011-500580)
 (21) 国際出願番号 PCT/JP2010/052043
 (22) 国際出願日 平成22年2月12日 (2010.2.12)
 (31) 優先権主張番号 特願2009-35105 (P2009-35105)
 (32) 優先日 平成21年2月18日 (2009.2.18)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(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
 (72) 発明者 片倉 利恵
 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
 (72) 発明者 ▲高▼ 秀雄
 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
 (72) 発明者 加藤 栄作
 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
 Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC05 CC09
 CC12 CC21 DD51 DD53 DD58
 DD64 DD67 DD68 DD69 DD70
 最終頁に続く

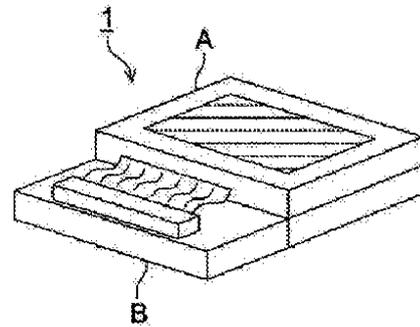
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置

(57) 【要約】

本発明は、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置を提供するものである。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置は、陽極と陰極の間に2層以上の発光層を含む複数の構成層が挟持されてなり、該発光層の少なくとも2層がウェットプロセスで作製する工程を経て作製されている。

【図1】



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と陰極の間に 2 層以上の発光層を含む複数の構成層が狭持されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、
該発光層の少なくとも 2 層がウェットプロセスで作製する工程を経て作製されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】

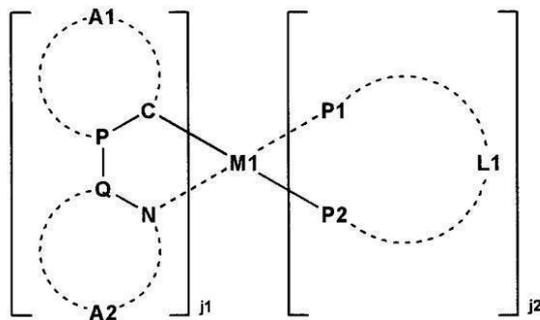
前記発光層の少なくとも 1 層がリン光発光性の有機金属錯体を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】

前記リン光発光性の有機金属錯体の少なくとも 1 種が下記一般式 (1) で表される化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】

一般式(1)



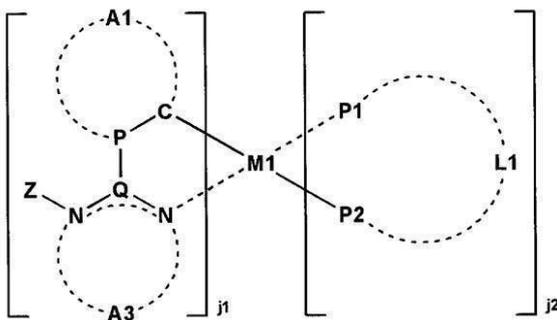
〔式中、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP-Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A2はQ-Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。〕

【請求項 4】

前記一般式 (1) で表される化合物が、下記一般式 (2) で表される化合物であることを特徴とする請求項 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 2】

一般式(2)



10

20

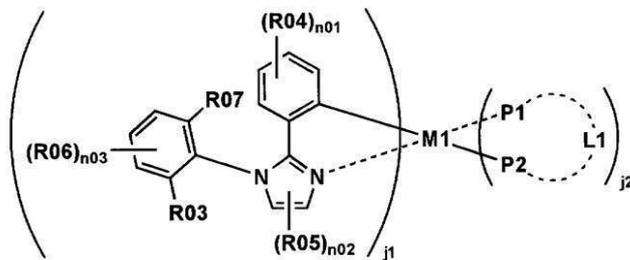
30

40

50

【化 4】

一般式(4)



10

〔式中、R03は置換基を表し、R04は水素原子または置換基を表し、複数のR04は互いに結合して環を形成してもよい。n01は1～4の整数を表す。R05は水素原子または置換基を表し、複数のR05は互いに結合して環を形成してもよい。n02は1～2の整数を表す。R06は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。n03は1～3の整数を表す。R07は置換基または単結合手を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。〕

20

【請求項7】

前記リン光発光性の有機金属錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする請求項2～6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。

【請求項8】

前記複数の構成層がウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする請求項1～7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】

前記発光層の少なくとも1層に接する構成層がウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする請求項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。

30

【請求項10】

前記構成層が、発光層と陰極との間に設けられた層であることを特徴とする請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】

前記発光層に接する構成層が、いずれもウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする請求項1～10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12】

白色に発光することを特徴とする請求項1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】

請求項1～12のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする照明装置。

【請求項14】

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

【発明の詳細な説明】

50

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置に関する。

【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が挙げられる。向き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。

10

【0003】

一方、有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)は、蛍光性もしくはリン光性の有機化合物を含む薄膜を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、前記薄膜に電子および正孔を注入して再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・リン光)を利用して発光する素子であり、数V~数十V程度の低電圧で発光が可能であり、自己発光型であるために視野角依存性に富み、視認性が高く、更には薄膜型の完全固体素子であるために省スペース等の観点から注目され、実用化研究への展開が開始されている。

【0004】

20

実用化に向けた有機EL素子の開発としては、M. A. Baldo et al., Nature, 395巻、151~154頁(1998年)により、プリンストン大より、励起三重項からのリン光発光を用いる有機EL素子の報告がされて以来、M. A. Baldo et al., Nature, 403巻、17号、750~753頁(2000年)、米国特許第6,097,147号明細書により、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってきている。

【0005】

更に、最近発見されたリン光発光を利用する有機EL素子では、以前の蛍光発光を利用する素子に比べ原理的に約4倍の発光効率を実現可能であることから、その材料開発を初めとし、発光素子の層構成や電極の研究開発が世界中で行われている。例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304頁(2001年)には、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。

30

【0006】

通常、有機EL素子は 10^{-4} Pa以下というような高真空を用いた真空蒸着法で有機層を形成している(ドライプロセス)が、今後、有機EL素子の大型化や大量生産される可能性を考えると、真空蒸着法による有機層の形成は生産効率及び製造コストの面で好ましくない。

【0007】

また、ドーパントを真空蒸着法により発光層に含有させる場合には、蒸着の際に基板上でドーパントのムラが生じてしまい、これが発色光のムラの原因となり品質を低下させてしまう問題がある。これは有機EL素子を大型化する場合にはより顕著な問題となる。さらに、複数のドーパントを含有させる場合には、技術的にも困難となる。

40

【0008】

有機EL素子の有機層の形成においては、現在の真空蒸着法に代わる方法として、溶液の塗布・成膜(ウェットプロセス)による有機層の形成が注目されている(例えば、特許文献1及び2参照。)

【0009】

しかしながら、ウェットプロセスでの有機層の形成においては、有機化合物の種類によっては層の形成時に結晶化してしまうなどの現象が生じることがあり、この場合には外部

50

取り出し効率や視感度効率等を劣化させてしまい、有機EL素子の品質を低下させてしまう。

【0010】

また2種以上の材料の混合溶液を用いた場合には、各材料の溶剤に対する溶解性や結晶性、成膜時の乾燥条件等が原因で、均質な膜の形成が困難であるという問題がある。

【0011】

特に、リン光発光性の有機EL素子では、発光層中にホストとドーパントという2種以上の材料が含有される必要があるため、前記の問題の解決は極めて重要であり、その解決が待たれている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】特開2008-244053号公報

【特許文献2】国際公開第08/108430号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

本発明の目的は、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた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】

【0014】

本発明の上記目的は下記の構成により達成された。

【0015】

1. 陽極と陰極の間に2層以上の発光層を含む複数の構成層が挟持されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層の少なくとも2層がウェットプロセスで作製する工程を経て作製されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0016】

2. 前記発光層の少なくとも1層がリン光発光性の有機金属錯体を含む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。

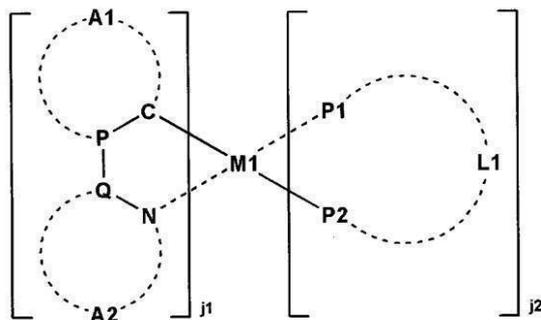
【0017】

3. 前記リン光発光性の有機金属錯体の少なくとも1種が下記一般式(1)で表される化合物であることを特徴とする前記2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0018】

【化1】

一般式(1)



【0019】

〔式中、P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP - Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A2はQ - Nと共に芳香族複素環を形成する原子群を表す。P1 - L1 - P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1 + j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。〕

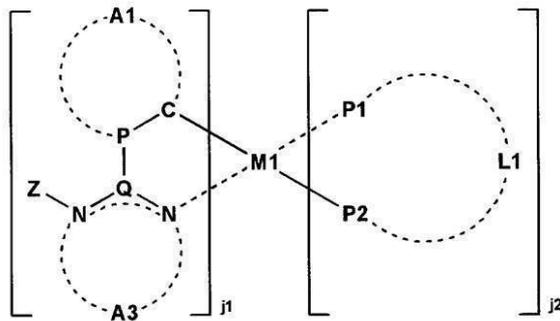
4. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(2)で表される化合物であることを特徴とする前記3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0020】

10

【化2】

一般式(2)



20

【0021】

〔式中、Zは、置換基を表す。P、Qは、各々炭素原子または窒素原子を表し、A1はP - Cと共に芳香族炭化水素環または芳香族複素環を形成する原子群を表す。A3は - C(R01) = C(R02) - 、 - N = C(R02) - 、 - C(R01) = N - または - N = N - を表し、R01、R02は、各々水素原子または置換基を表す。P1 - L1 - P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1 + j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。〕

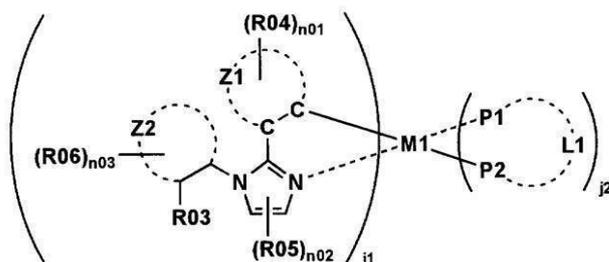
30

5. 前記一般式(2)で表される化合物が、下記一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする前記4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0022】

【化3】

一般式(3)



40

50

【0023】

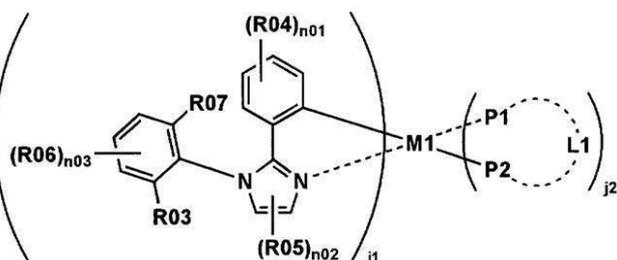
〔式中、R03は置換基を表し、R04は水素原子または置換基を表し、複数のR04は互いに結合して環を形成してもよい。n01は1～4の整数を表す。R05は水素原子または置換基を表し、複数のR04または複数のR05は、各々互いに結合して環を形成してもよい。n02は1～2の整数を表す。R06は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。n03は1～4の整数を表す。Z1はC-Cと共に6員の芳香族炭化水素環もしくは、5員または6員の芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。Z2は炭化水素環または複素環を形成するのに必要な原子群を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。R04とR06及びR05とR06は互いに結合して環を形成していてもよい。〕

6. 前記一般式(3)で表される化合物が、下記一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする前記5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0024】

【化4】

一般式(4)



【0025】

〔式中、R03は置換基を表し、R04は水素原子または置換基を表し、複数のR04は互いに結合して環を形成してもよい。n01は1～4の整数を表す。R05は水素原子または置換基を表し、複数のR05は互いに結合して環を形成してもよい。n02は1～2の整数を表す。R06は水素原子または置換基を表し、互いに結合して環を形成してもよい。n03は1～3の整数を表す。R07は置換基または単結合手を表す。P1-L1-P2は2座の配位子を表し、P1、P2は各々独立に炭素原子、窒素原子または酸素原子を表す。L1はP1、P2と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。j1は1～3の整数を表し、j2は0～2の整数を表すが、j1+j2は2または3である。M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表す。〕

7. 前記リン光発光性の有機金属錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする前記2～6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。

【0026】

8. 前記複数の構成層がウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする前記1～7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。

【0027】

9. 前記発光層の少なくとも1層に接する構成層がウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする前記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。

【0028】

50

10．前記構成層が、発光層と陰極との間に設けられた層であることを特徴とする前記9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0029】

11．前記発光層に接する構成層が、いずれもウェットプロセスで形成される工程を経て作製されたことを特徴とする前記1～10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。

【0030】

12．白色に発光することを特徴とする前記1～11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0031】

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

【0032】

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

【発明の効果】

【0033】

本発明により、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置を提供することができた。

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【図2】表示部Aの模式図である。

【図3】画素の模式図である。

【図4】パッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

【図5】照明装置の概略図である。

【図6】照明装置の模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0035】

本発明の有機EL素子においては、請求項1～10のいずれか1項に記載の構成を有することにより、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができた。併せて、該有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた表示装置及び照明装置を提供することができた。

【0036】

以下、本発明の有機EL素子の各構成要素の詳細について、順次説明する。

【0037】

本発明者等は、上記の課題について鋭意検討したところ、特に膜の厚さを厚くした場合に前述のような不均一な膜が形成されやすく、膜厚が薄い場合には形成されにくいことが判明した。

【0038】

単純に発光層の膜厚を厚くし、ドーパント（発光ドーパントともいう）が不均一に存在する場合には、発光層内でのキャリア移動が阻害され、外部取り出し効率の低下や電圧の上昇が引き起こされるのに対し、少なくとも2層の薄い膜を積層して形成された発光層を有する有機EL素子を作製した場合には、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命の有機EL素子を提供することが可能となった。

【0039】

本発明の有機EL素子は、素子の構成層である発光層の少なくとも2層がウェットプロセスで作製される工程を経て作製されることが特徴であるが、該発光層の形成に用いられるドーパント（発光ドーパント）として好ましく用いられるのは、リン光発光性化合物（

10

20

30

40

50

リン光発光性金属錯体等ともいう)が好ましく、中でも好ましいのは、上記一般式(1)で表される化合物(有機金属錯体、金属錯体化合物等ともいう)である。

【0040】

《一般式(1)で表される化合物》

本発明の有機EL素子に含有されるリン光発光性の金属錯体としては、上記一般式(1)で表される化合物が好ましい。

【0041】

以下、一般式(1)で表される化合物について説明する。尚、一般式(1)で表されるリン光発光性の金属錯体は、本発明の有機EL素子の発光層に発光ドーパントとして含有されることが好ましい態様であるが、発光層以外の構成層(本発明の有機EL素子の構成層については後に詳細に説明する。)に含有されていても良い。

10

【0042】

一般式(1)において、A1がP-Cと共に形成す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。

【0043】

これらの環は更に、後述する置換基を有してもよい。

20

【0044】

一般式(1)において、A1が、P-Cと共に形成す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、アザカルバゾール環等が挙げられる。

【0045】

ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

30

【0046】

これらの環は更に、後述する置換基を有してもよい。

【0047】

一般式(1)において、A2が、Q-Nと共に形成する芳香族複素環としては、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、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、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

【0048】

これらの環は更に、後述する置換基を有してもよい。

40

【0049】

(置換基)

上記の置換基の例としては、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)、芳香族炭化水素基(芳香族炭化水素環基、芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピ

50

レニル基、ピフェニル基等)、芳香族複素環基(例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等)、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)、アリーロキシ基(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)、アリーロキシカルボニル基(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-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、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

10

20

30

40

50

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)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、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)、ホスホノ基等が挙げられる。

【0050】

一般式(1)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子としては、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triaゾール、フェニルテトラゾール、ピラザポール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

10

【0051】

一般式(1)において、j1は1~3の整数を表し、j2は0~2の整数を表すが、j1+j2は2または3を表す、中でも、j2は0である場合が好ましい。

【0052】

一般式(1)において、M1は元素周期表における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、イリジウムが好ましい。

【0053】

《一般式(2)で表される化合物》

本発明に係る一般式(1)で表される化合物の中でも、一般式(2)で表される化合物が好ましい。

20

【0054】

一般式(2)において、Zで表される置換基としては、一般式(1)の説明に記載した置換基と同義であり、好ましくは、芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である。

【0055】

一般式(2)において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族炭化水素環としては、例えば、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。

30

【0056】

これらの環は更に、Zで表される置換基を有してもよい。

【0057】

一般式(2)において、A1が、P-Cと共に形成する芳香族複素環としては、例えば、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、アザカルバゾール環等が挙げられる。

40

【0058】

ここで、アザカルバゾール環とは、前記カルバゾール環を構成するベンゼン環の炭素原子が1つ以上窒素原子で置き換わったものを示す。

【0059】

これらの環は更に、Zで表される置換基を有してもよい。

【0060】

一般式(2)のA3で表される、-C(R01)=C(R02)-、-N=C(R02)-、-C(R01)=N-において、R01、R02で各々表される置換基は、Zで表される置換基と同義である。

50

【0061】

一般式(2)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子の具体例としては、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、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

【0062】

また、j1は1~3の整数を表し、j2は0~2の整数を表すが、j1+j2は2または3を表す、中でも、j2は0である場合が好ましい。

【0063】

一般式(2)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素(単に遷移金属ともいう)は、一般式(1)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素と同義である。

10

【0064】

《一般式(3)で表される化合物》

上記一般式(2)で表される化合物の好ましい態様の一つとして、上記一般式(3)で表される化合物が挙げられる。

【0065】

一般式(3)において、R03、R04、R05、R06で各々表される置換基は、一般式(2)において、Zで表される置換基と同義である。

【0066】

一般式(3)において、Z1がC-Cと共に形成する6員の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環等が挙げられる。

20

【0067】

これらの環は更に、一般式(2)において、Zで表される置換基を有してもよい。

【0068】

一般式(3)において、Z1がC-Cと共に形成する5員または6員の芳香族複素環としては、例えば、オキサゾール環、オキサジアゾール環、オキサトリアゾール環、イソオキサゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、チアトリアゾール環、イソチアゾール環、チオフエン環、フラン環、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、イミダゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環等が挙げられる。

30

【0069】

これらの環は更に、一般式(2)において、Zで表される置換基を有してもよい。

【0070】

一般式(3)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子は、一般式(1)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子と同義である。

【0071】

一般式(3)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素は、一般式(1)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素と同義である。

40

【0072】

《一般式(4)で表される化合物》

更に、一般式(3)で表される化合物の中でも、上記一般式(4)で表される化合物が好ましい。

【0073】

一般式(4)において、R03、R04、R05、R06、R07で各々表される置換基は、一般式(2)において、Zで表される置換基と同義である。

【0074】

一般式(4)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子は、一般式(1)において、P1-L1-P2で表される2座の配位子と同義である。

50

【 0 0 7 5 】

一般式(4)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素は、一般式(1)において、M1で表される元素周期表における8族~10族の遷移金属元素と同義である。

【 0 0 7 6 】

本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物は、Eur. J. Chem. 2005, 1637-1643頁等に記載の方法で、含窒素環化合物またはイミダゾール化合物に対応するハロゲン化合物を反応させるか、SYNTHESIS 2003, 17, 2661-2666等に記載の対応するアミンとグリオキザール、及びアルデヒドと塩化アンモニウムとの反応等を参照して合成可能である。

10

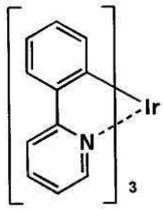
【 0 0 7 7 】

以下、本発明に係る一般式(1)、(2)、(3)または(4)のいずれかで表される化合物(金属錯体化合物、有機金属錯体等ともいう)の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

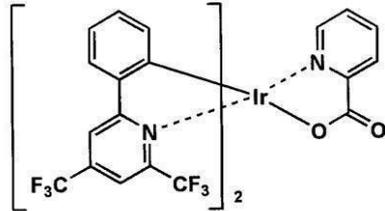
【 0 0 7 8 】

【化5】

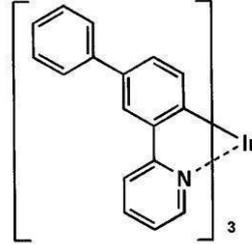
D-1



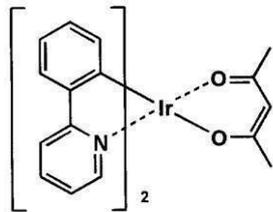
D-2



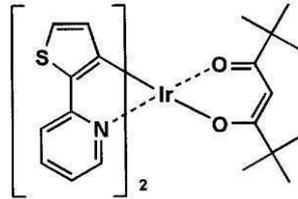
D-3



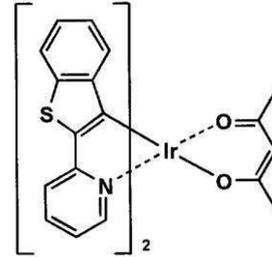
D-4



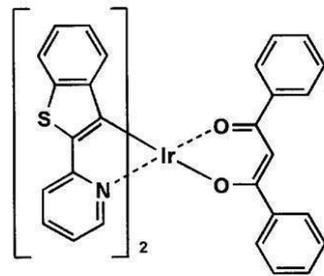
D-5



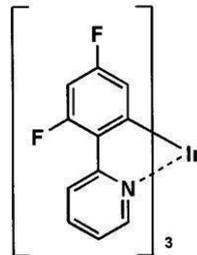
D-6



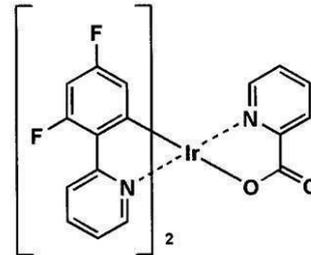
D-7



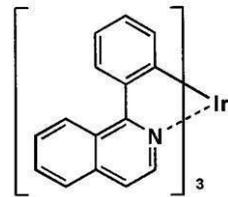
D-8



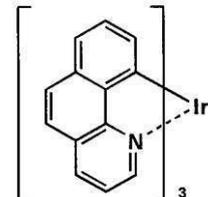
D-9



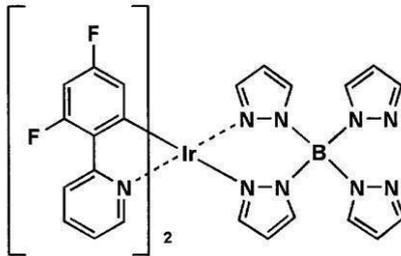
D-10



D-11



D-12



10

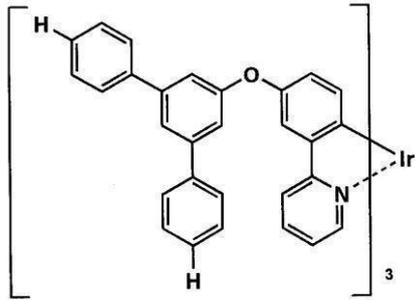
20

30

【0079】

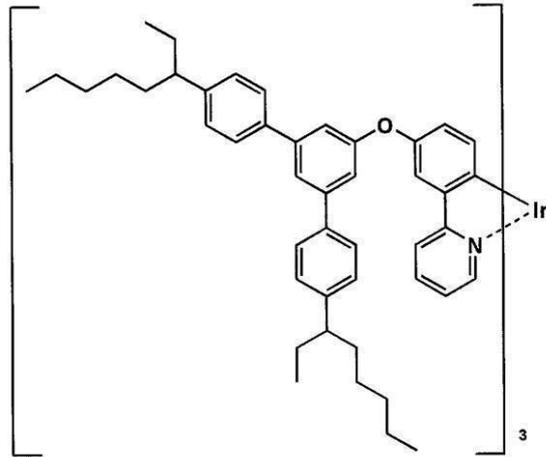
【化 6】

D-13



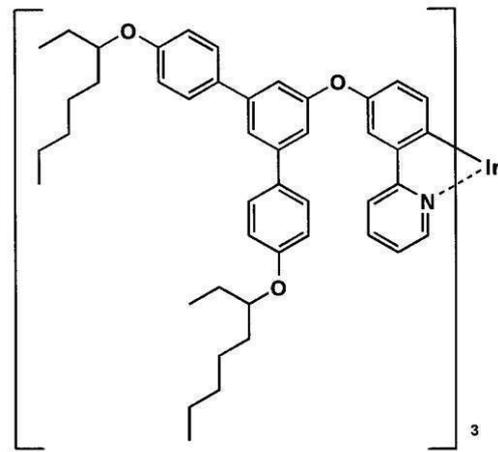
10

D-14



20

D-15

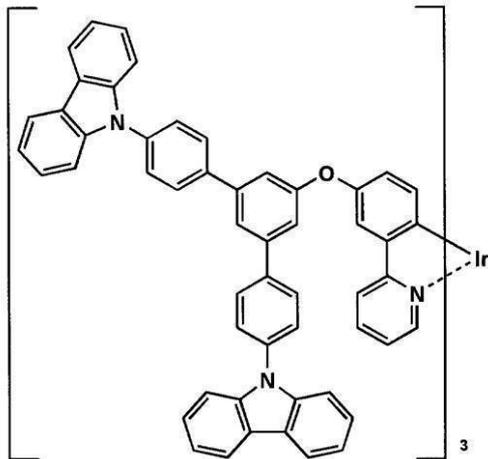


30

【 0 0 8 0 】

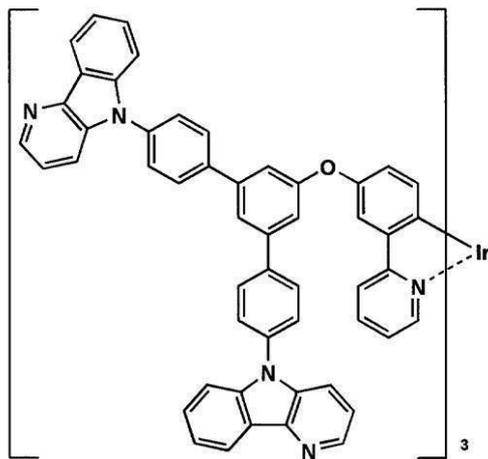
【化7】

D-16



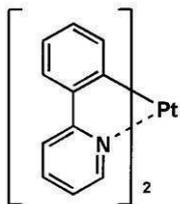
10

D-17

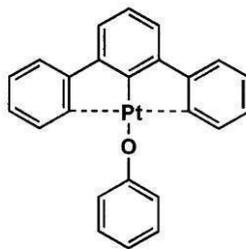


20

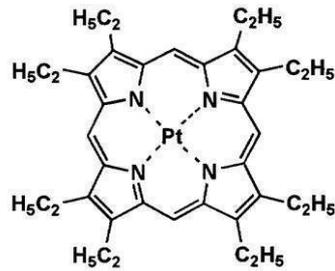
D-18



D-19



D-20

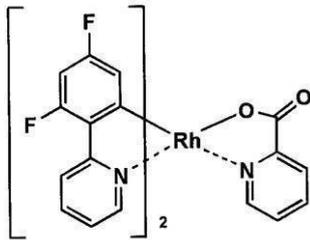


30

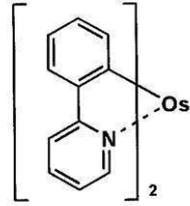
【0081】

【化 8】

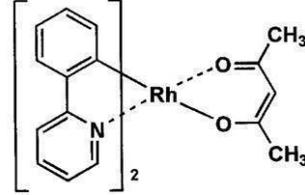
D-21



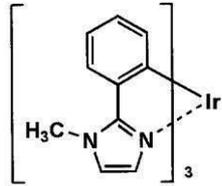
D-22



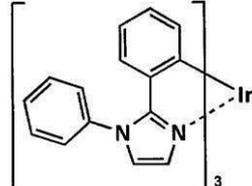
D-23



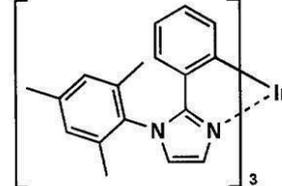
D-24



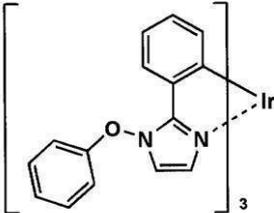
D-25



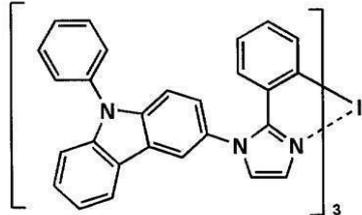
D-26



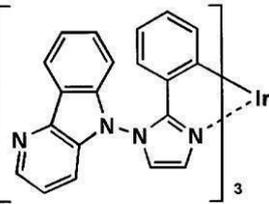
D-27



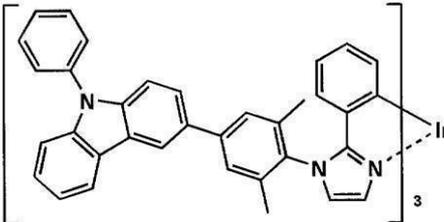
D-28



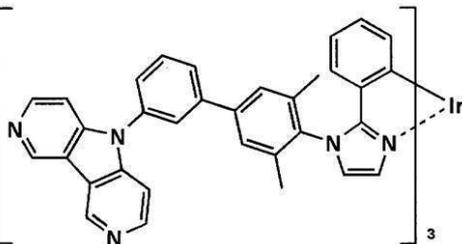
D-29



D-30



D-31



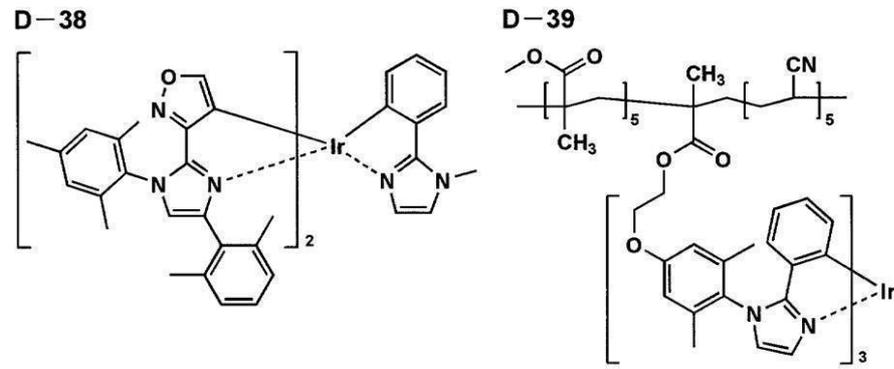
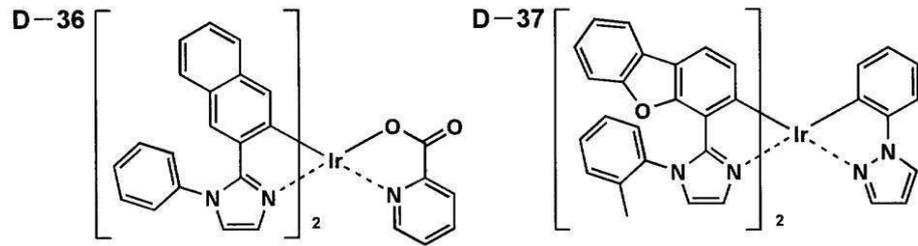
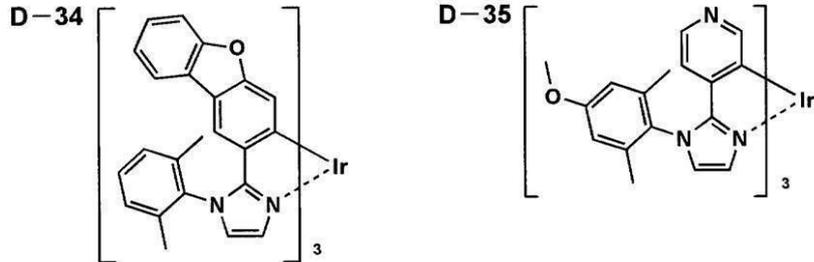
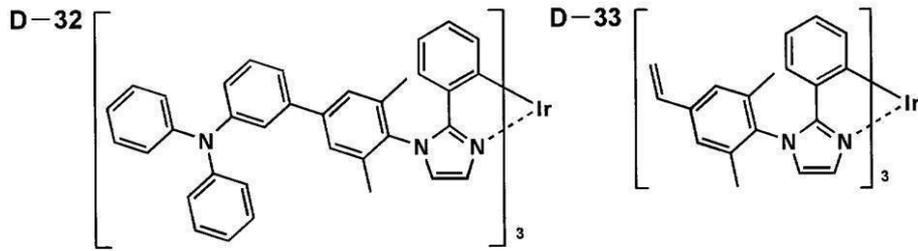
10

20

30

【 0 0 8 2 】

【化9】



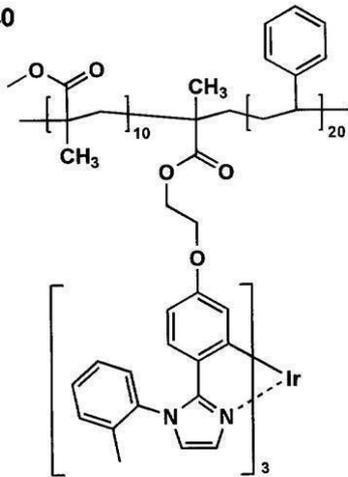
10

20

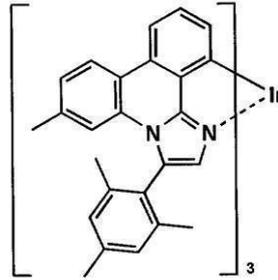
30

【化10】

D-40

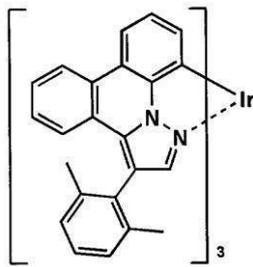


D-41

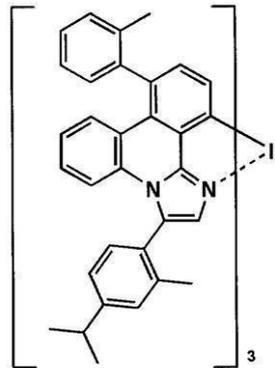


10

D-42

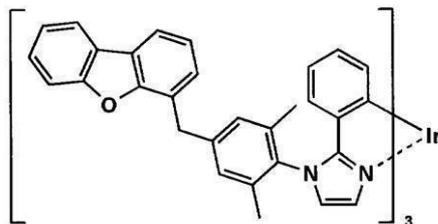


D-43

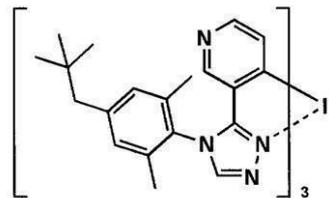


20

D-44



D-45



30

【0084】

これらの金属錯体は、例えば、Organic Letter 誌、vol 3、No. 1 6、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。

40

【0085】

50

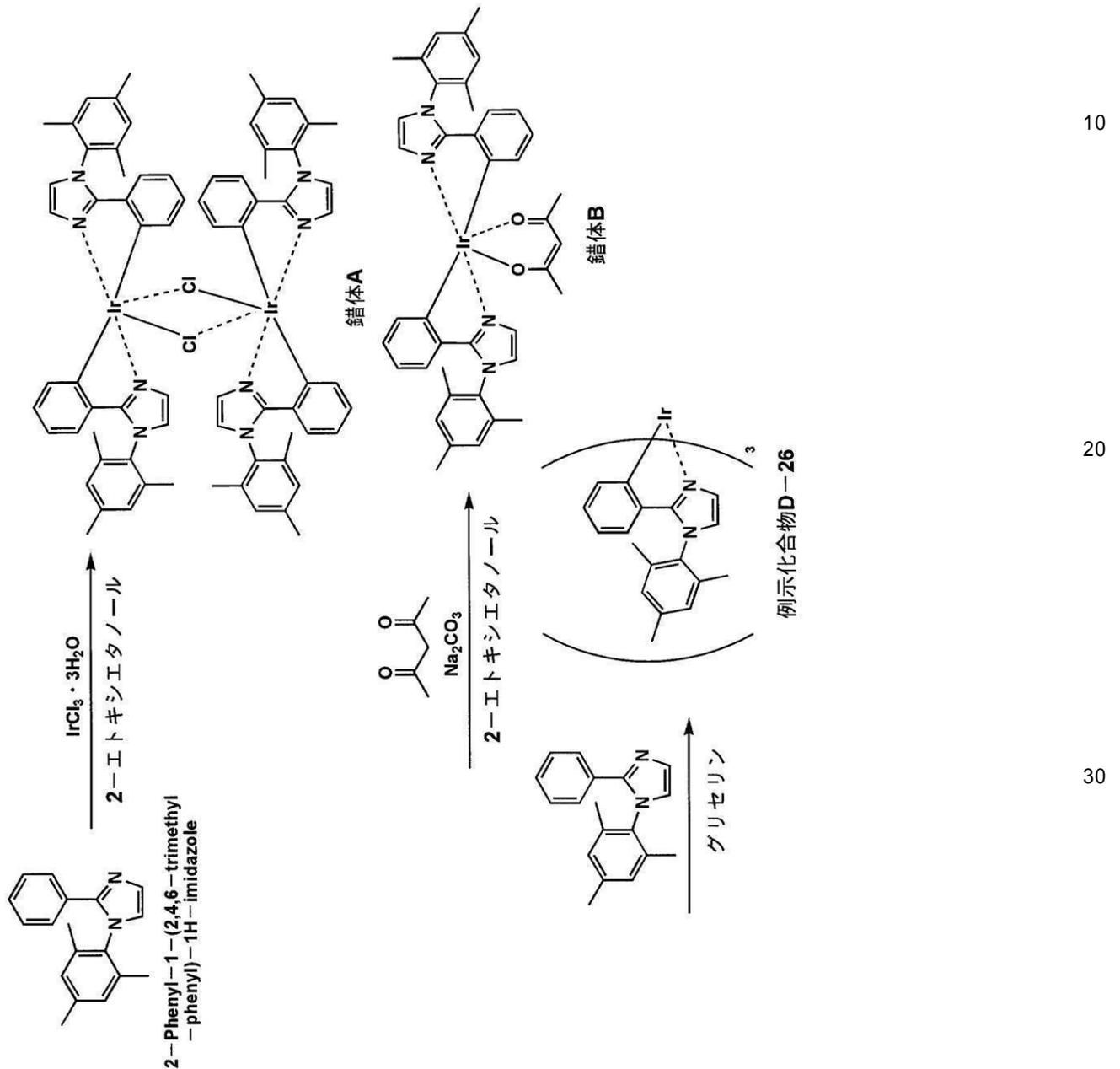
以下に、代表的な化合物の合成例を示す。

【0086】

《例示化合物D-26の合成》

【0087】

【化11】



【0088】

窒素雰囲気下で2-フェニル-(2,4,6-トリメチルフェニル)-1H-イミダゾール、18g(0.06861mol)を2-エトキシエタノール350mlに溶解した溶液に、塩化イリジウム3水和物、8.1g(0.02297mol)及び100mlの水を加え、窒素雰囲気下で5時間還流した。

【0089】

反応液を冷却し、メタノール500mlを加え、析出した結晶を濾取した。得られた結晶を更にメタノールで洗浄し、乾燥後15.2g(収率88.4%)の錯体Aを得た。

10

20

30

40

50

【0090】

窒素雰囲気下で錯体 A、14.5 g (0.009662 モル) 及び炭酸ナトリウム、14.5 g を 2 - エトキシエタノール 350 ml に懸濁させた。この懸濁液にアセチルアセトン 3.9 g (0.03895 モル) を加え、窒素雰囲気下で 2 時間還流した。

【0091】

反応液を冷却後、減圧濾過によって炭酸ナトリウム及び無機塩を除去した。溶媒を減圧濃縮した後に得られた固体に水 1 L を加えて懸濁後、固体を濾取した。

【0092】

得られた結晶を更にメタノール/水 = 1 / 1 混合溶液で洗浄し、乾燥後 14.7 g (収率 93.6%) の錯体 B を得た。

【0093】

窒素雰囲気下で錯体 B、7.5 g (0.009214 モル) 及び 2 - フェニル - (2, 4, 6 - トリメチルフェニル) - 1H - イミダゾール、6.0 g (0.02287 モル) をグリセリン 400 ml に懸濁させた。窒素雰囲気下で反応温度 150 ~ 160 の間で 2 時間反応させ、錯体 B の消失を確認したところで反応終了とした。

【0094】

反応液を冷却し、メタノール 500 ml を加え、析出した結晶を濾取した。

【0095】

得られた結晶を更にメタノールで洗浄し、乾燥後収量 7.1 g (収率 78.9%) の粗生成物を得た。この粗生成物を少量の塩化メチレンに溶解し、シカゲルカラムクロマトグラフィーによって精製し (塩化メチレン) 6.5 g (収率 72.2%) の例示化合物 D - 26 を得た。

【0096】

日立製作所製 F - 4500 を用いて測定した例示化合物 D - 26 の溶液におけるリン光発光波長は、466 nm であった (2 - メチルテトラヒドロフラン中)。

【0097】

《有機 EL 素子の構成層》

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

【0098】

- (i) 陽極 / 発光層ユニット / 電子輸送層 / 陰極
- (ii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 電子輸送層 / 陰極
- (iii) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極
- (iv) 陽極 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 / 陰極
- (v) 陽極 / 陽極バッファ層 / 正孔輸送層 / 発光層ユニット / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 / 陰極

更に、発光層ユニットは、少なくとも 2 層の発光層を有するが、該発光層間には非発光性の中層を有していてもよい。本発明の有機 EL 素子としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

【0099】

本発明の有機 EL 素子を構成する各層について説明する。

【0100】

《電子輸送層》

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

【0101】

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、電子輸送層の構成材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択し併用すること

10

20

30

40

50

も可能である。

【0102】

電子輸送層に用いられる従来公知の材料（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等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、カルボリン誘導体、または、該カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくとも一つが窒素原子で置換されている環構造を有する誘導体等が挙げられる。

【0103】

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、電子吸引性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。

【0104】

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。

【0105】

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

【0106】

その他、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも電子輸送材料として用いることができる。

【0107】

また、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

【0108】

電子輸送層は電子輸送材料を、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいい、例えば、スピコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト（Langmuir-Blodgett法）等を挙げることができる。））等により、薄膜化することにより形成することが好ましい。

【0109】

有機EL素子の構成層の形成法については、有機EL素子の作製方法のところで詳細に説明する。

【0110】

電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm～5000nm程度、好ましくは5nm～200nmである。この電子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い。

【0111】

以下、本発明の白色有機EL素子の電子輸送層の形成に好ましく併用される従来公知の化合物（電子輸送材料）の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

【0112】

10

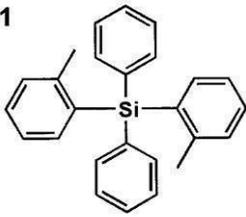
20

30

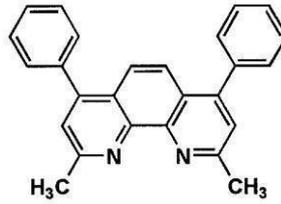
40

【化 1 2】

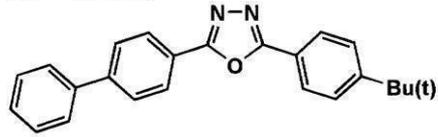
ET-1



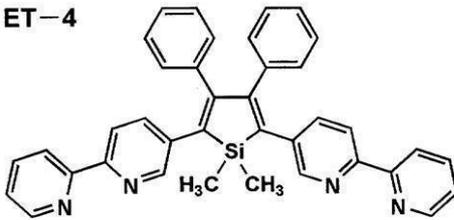
ET-2 (BCP)



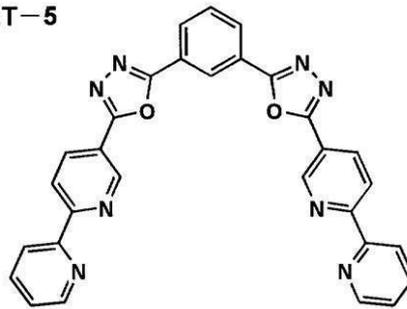
ET-3(PBD)



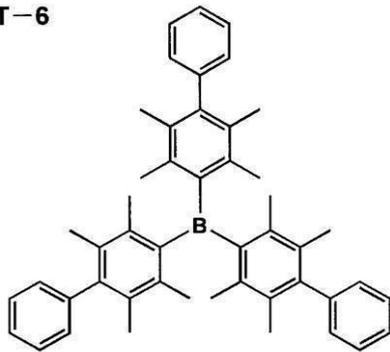
ET-4



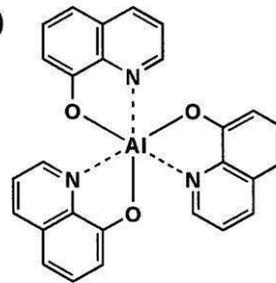
ET-5



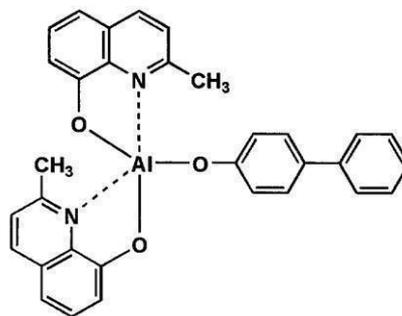
ET-6



ET-7 (Alq3)



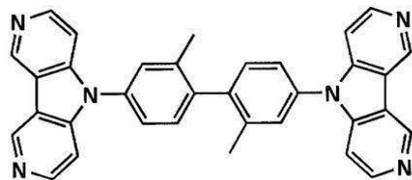
ET-8 (BAIq)



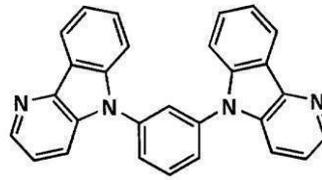
【 0 1 1 3 】

【化 1 3】

ET-9



ET-10



10

20

30

40

50

【0114】

《発光層》

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

【0115】

本発明の有機EL素子においては、発光層を2層以上有し、2層以上であれば何層であってもよい。

【0116】

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2 nm ~ 5 μmの範囲に調整することが好ましく、更に好ましくは2 nm ~ 200 nmの範囲に調整され、特に好ましくは、5 nm ~ 100 nmの範囲である。

10

【0117】

発光層の作製には、後述する発光ドーパントやホスト化合物を、例えば、真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいい、例えば、スピンコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア・プロジェクト（Langmuir-Blodgett法））等を挙げることができる。）等により成膜して形成することができる。（本発明の化合物を発光層に用いる場合、ウェットプロセスで作製することが好ましい。）。

20

【0118】

本発明の有機EL素子の発光層には、発光ドーパント（リン光発光性ドーパント（リン光ドーパント、リン光発光性ドーパント基ともいう）や蛍光ドーパント等）化合物と、発光ホスト化合物とを含有することが好ましい。

【0119】

（発光性ドーパント化合物）

発光性ドーパント化合物（発光ドーパントともいう）について説明する。

【0120】

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

30

【0121】

（リン光ドーパント（リン光発光ドーパントともいう））

本発明に係るリン光ドーパントについて説明する。

【0122】

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

40

【0123】

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

【0124】

リン光ドーパントの発光は原理としては2種挙げられ、1つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こって発光性ホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう1つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン

50

光ドーパント上でキャリアの再結合が起こり、リン光ドーパント化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

【 0 1 2 5 】

本発明の有機EL素子は、発光層の少なくともひとつがリン光発光性の有機金属錯体（リン光発光ドーパント、リン光ドーパント等ともいう）を含有するが、該リン光発光性の有機金属錯体としては、本発明に係る一般式（１）、（２）、（３）または（４）のいずれかで表される化合物を含有することが好ましい。

【 0 1 2 6 】

更に、本発明に係る一般式（１）、（２）、（３）または（４）のいずれかで表される化合物において、M1は元素周期表における8族～10族の遷移金属元素を表すが、中でもイリジウムが好ましい。

【 0 1 2 7 】

また、本発明に係る発光層には、以下の特許公報に記載されている化合物等を併用してもよい。

【 0 1 2 8 】

例えば、国際公開第00/70655号、特開2002-280178号公報、特開2001-181616号公報、特開2002-280179号公報、特開2001-181617号公報、特開2002-280180号公報、特開2001-247859号公報、特開2002-299060号公報、特開2001-313178号公報、特開2002-302671号公報、特開2001-345183号公報、特開2002-324679号公報、国際公開第02/15645号、特開2002-332291号公報、特開2002-50484号公報、特開2002-332292号公報、特開2002-83684号公報、特表2002-540572号公報、特開2002-117978号公報、特開2002-338588号公報、特開2002-170684号公報、特開2002-352960号公報、国際公開第01/93642号、特開2002-50483号公報、特開2002-100476号公報、特開2002-173674号公報、特開2002-359082号公報、特開2002-175884号公報、特開2002-363552号公報、特開2002-184582号公報、特開2003-7469号公報、特表2002-525808号公報、特開2003-7471号公報、特表2002-525833号公報、特開2003-31366号公報、特開2002-226495号公報、特開2002-234894号公報、特開2002-235076号公報、特開2002-241751号公報、特開2001-319779号公報、特開2001-319780号公報、特開2002-62824号公報、特開2002-100474号公報、特開2002-203679号公報、特開2002-343572号公報、特開2002-203678号公報等である。

【 0 1 2 9 】

（蛍光ドーパント（蛍光性化合物ともいう））

蛍光ドーパントとしては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、または希土類錯体系蛍光体等や、レーザー色素に代表される蛍光量子収率が高い化合物が挙げられる。

【 0 1 3 0 】

また本発明に係る発光ドーパントは、複数種の化合物を併用して用いてもよく、構造の異なるリン光ドーパント同士の組み合わせや、リン光ドーパントと蛍光ドーパントを組み合わせ用いてもよい。

【 0 1 3 1 】

（発光ホスト化合物（発光ホスト等ともいう））

10

20

30

40

50

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

【0132】

本発明に用いることができる発光ホストとしては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。代表的にはカルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、芳香族誘導体、含窒素複素環化合物、チオフェン誘導体、フラン誘導体、オリゴアリーレン化合物等の基本骨格を有するもの、または、カルボリン誘導体やジアザカルバゾール誘導体(ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の少なくとも1つの炭素原子が窒素原子で置換されているものを表す。)等が挙げられる。

10

【0133】

本発明に用いることができる公知の発光ホストとしては正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

【0134】

また、本発明においては、(本発明の発光ホスト及び/または公知の発光ホスト)を単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。

20

【0135】

発光ホストを複数種用いることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。

【0136】

また、前記リン光ドーパントとして用いられる公知の化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。

【0137】

また、本発明に用いられる発光ホストとしては、低分子化合物でも、繰り返し単位をもつ高分子化合物でもよく、ビニル基やエポキシ基のような重合性基を有する低分子化合物(重合性発光ホスト)でもよく、このような化合物を一種または複数種用いても良い。

30

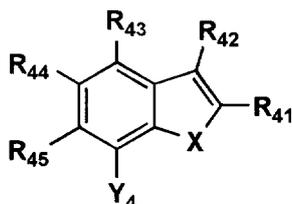
【0138】

本発明においては、下記一般式(5)で表される発光ホストをいずれかの発光層に含有することが好ましい。

【0139】

【化14】

一般式(5)



40

【0140】

一般式(5)において、XはO、SまたはNR₄₆を表す。Y₄はアルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、アリールオキシ基、アラルキル基、アルケニル基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基、アルキルシリル基、アリールシリル基またはハロゲン化アルキル基を表す。

50

【 0 1 4 1 】

上記の中でも、アリアル基またはヘテロアリアル基が更に好ましい。

【 0 1 4 2 】

一般式(5)において、R41～R46は、各々水素原子、ハロゲン原子または置換基を表す。R41～R46で表される置換基としては、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)、芳香族炭化水素基(芳香族炭化水素環基、芳香族炭素環基、アリアル基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等)、芳香族複素環基(例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリル基、オキサゾリジル基等)、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)、アリアルオキシ基(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)、アリアルチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アリア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-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、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

10

20

30

40

50

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)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、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)、ホスホノ基等が挙げられる。

10

20

30

40

50

【0143】

またこれらの置換基及びY4は上記の置換基によって更に置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

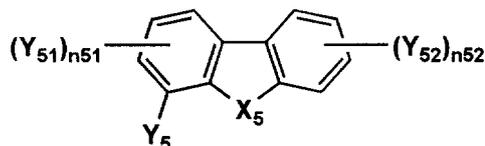
【0144】

一般式(5)で表される化合物の中でも、更に好ましいのは下記一般式(6)で表される化合物である。

【0145】

【化15】

一般式(6)



【0146】

一般式(6)において、XはOまたはSを表す。Y5、Y51、Y52は、各々アルキル基、アルコキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、アリールオキシ基、アラルキル基、アルケニル基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基、アルキルシリル基、アリールシリル基またはハロゲン化アルキル基を表す。

【0147】

上記の中でも、アリール基またはヘテロアリール基が更に好ましい。

【0148】

n51及びn52は0または1~2の整数を表し、n51+n52は0~3である。

【0149】

また、Y5、Y51及びY52は前述の置換基によって置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

【0150】

また、前記一般式(4)または(5)で表される化合物は、キャリア輸送性の点から、少なくとも1つのカルバゾリル基を含有することが好ましい。

【0151】

公知の発光ホストの具体例としては、以下の文献に記載の化合物が挙げられる。

【0152】

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

10

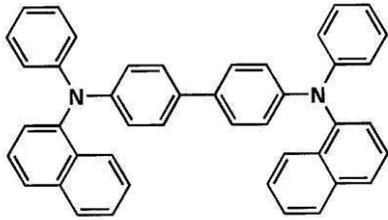
【0153】

以下、本発明の有機EL素子の発光層の発光ホストとして用いられる具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

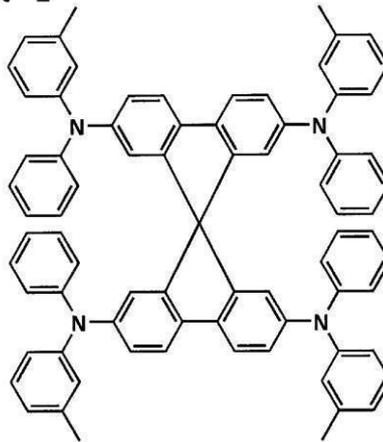
【0154】

【化 1 6】

Host-1

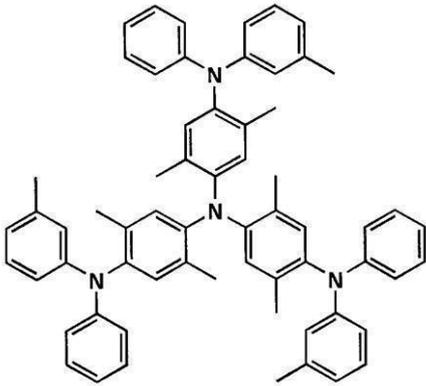


Host-2

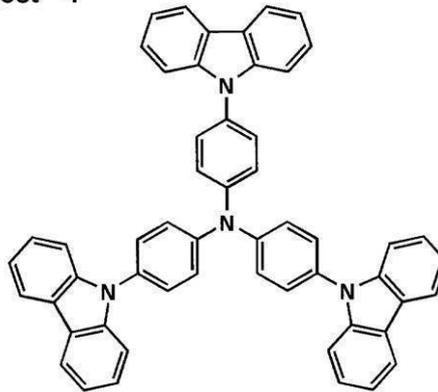


10

Host-3

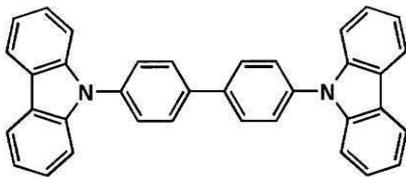


Host-4

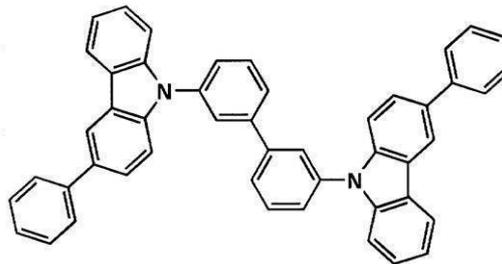


20

Host-5



Host-6

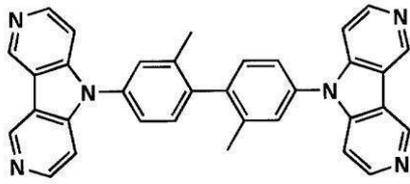


30

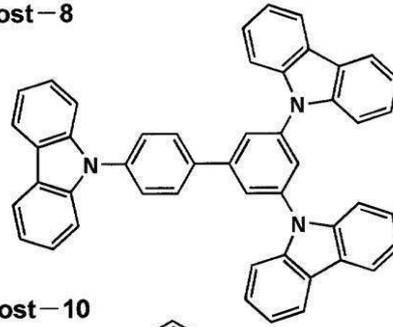
【 0 1 5 5 】

【化 1 7】

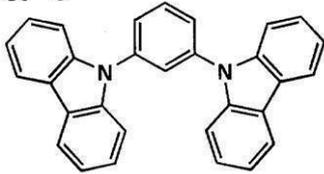
Host-7



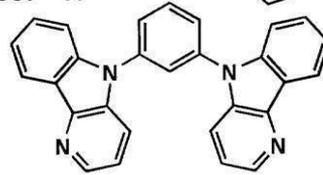
Host-8



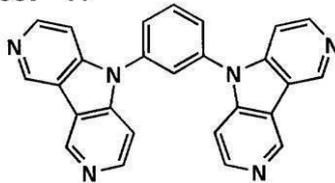
Host-9



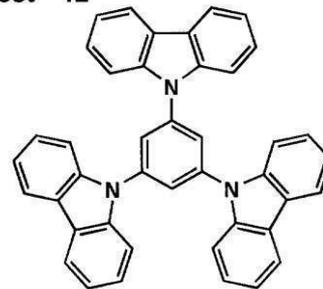
Host-10



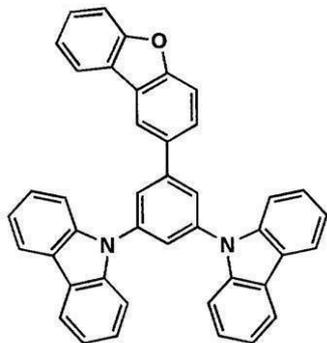
Host-11



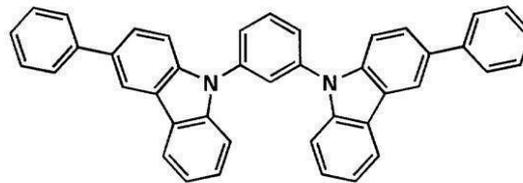
Host-12



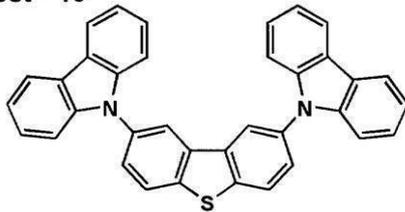
Host-13



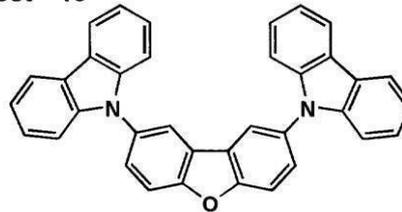
Host-14



Host-15



Host-16



10

20

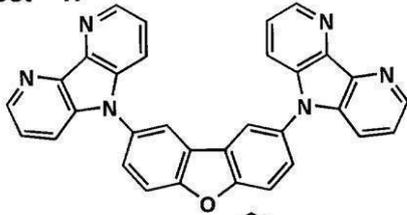
30

40

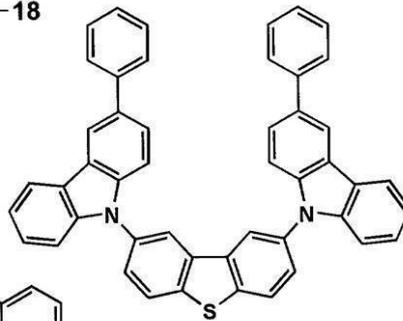
【 0 1 5 6 】

【化 1 8】

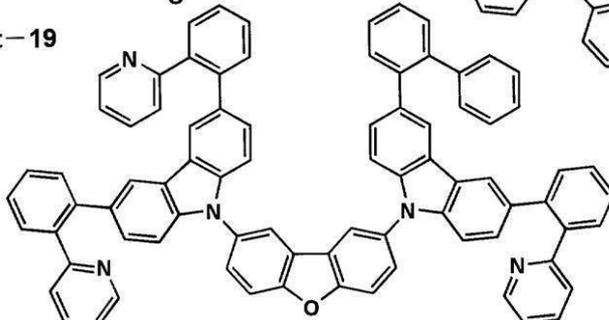
Host-17



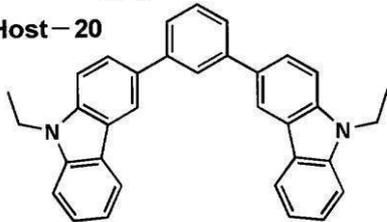
Host-18



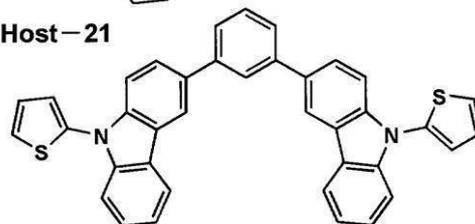
Host-19



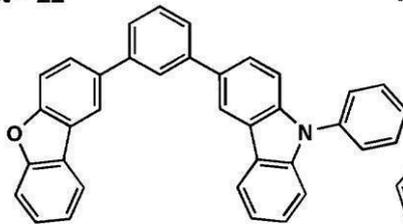
Host-20



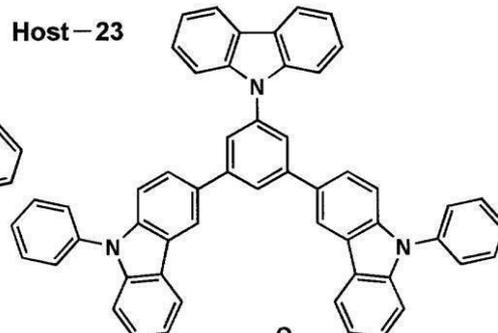
Host-21



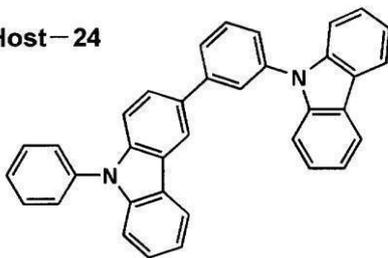
Host-22



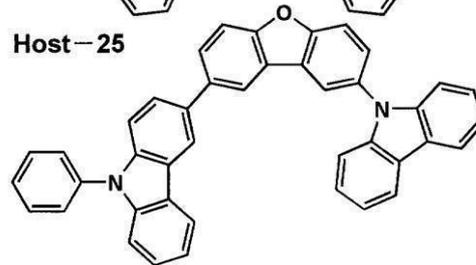
Host-23



Host-24



Host-25



10

20

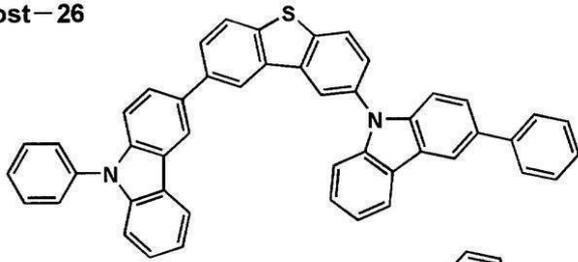
30

40

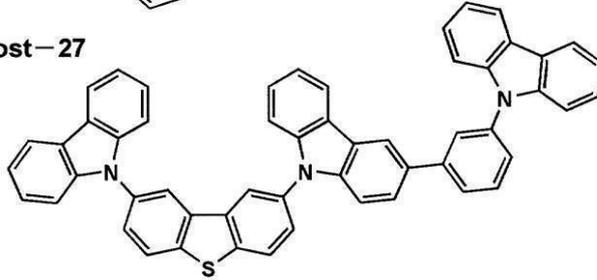
【 0 1 5 7 】

【化 1 9】

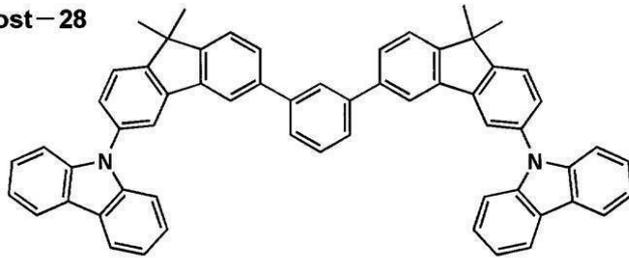
Host-26



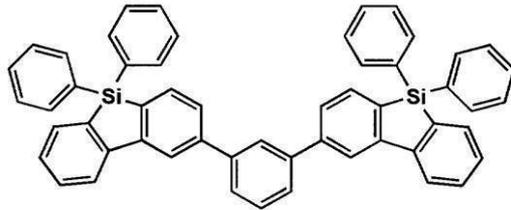
Host-27



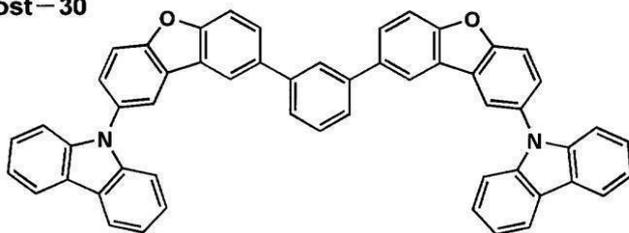
Host-28



Host-29



Host-30



10

20

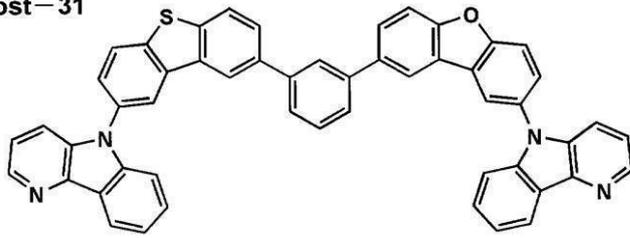
30

40

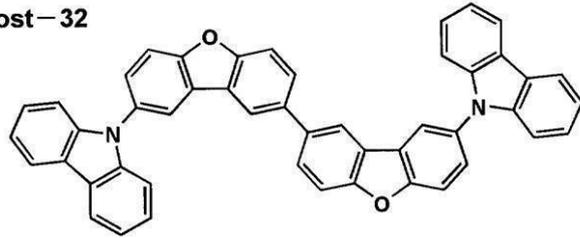
【 0 1 5 8】

【化 2 0】

Host-31

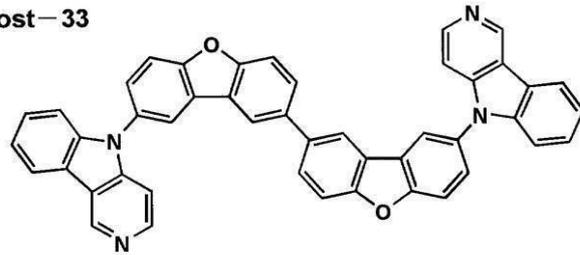


Host-32



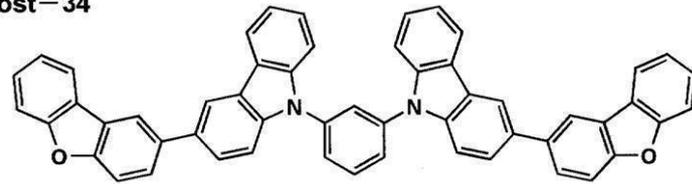
10

Host-33

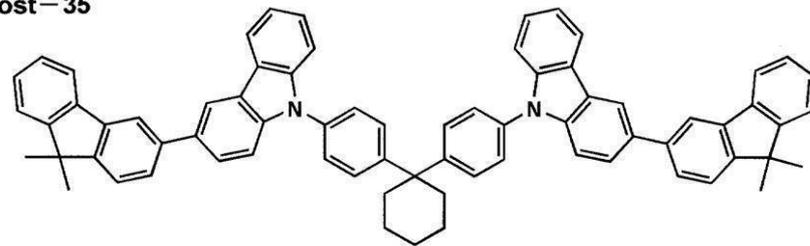


20

Host-34



Host-35



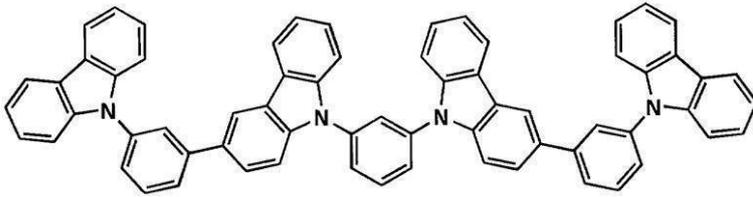
30

【 0 1 5 9】

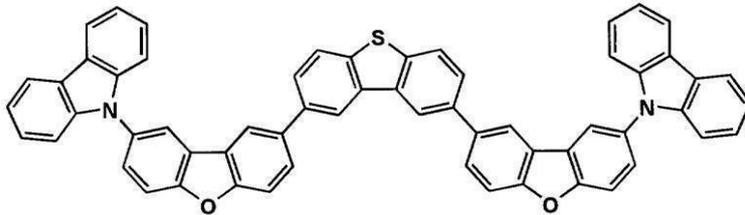
40

【化 2 1】

Host-36

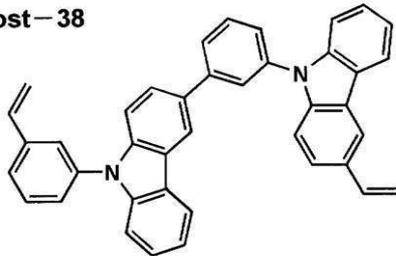


Host-37



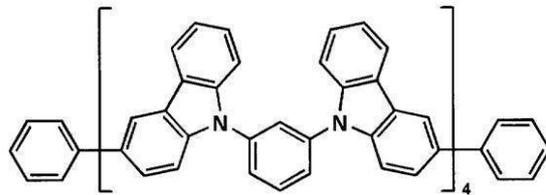
10

Host-38



20

Host-39

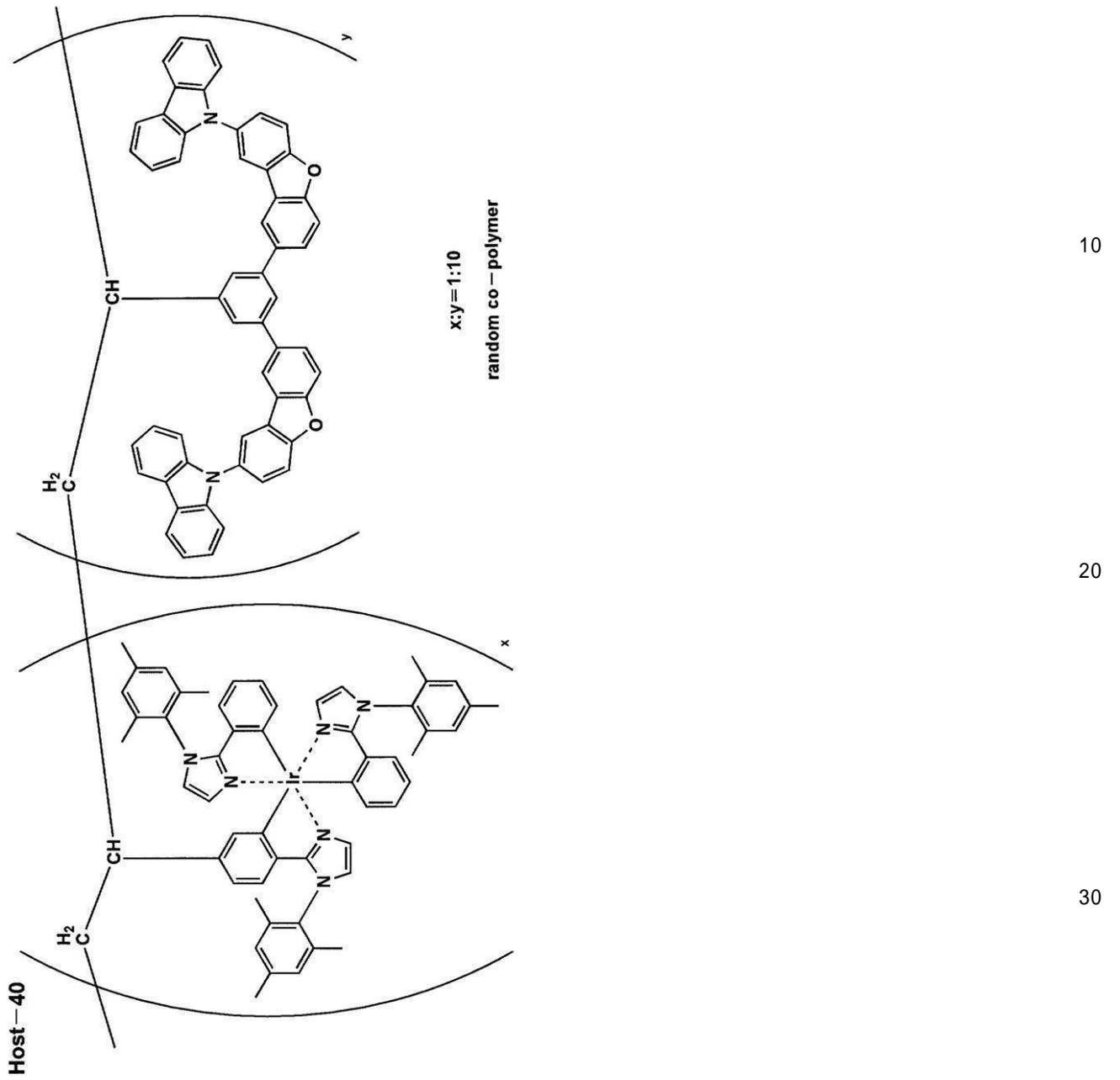


30

【 0 1 6 0 】

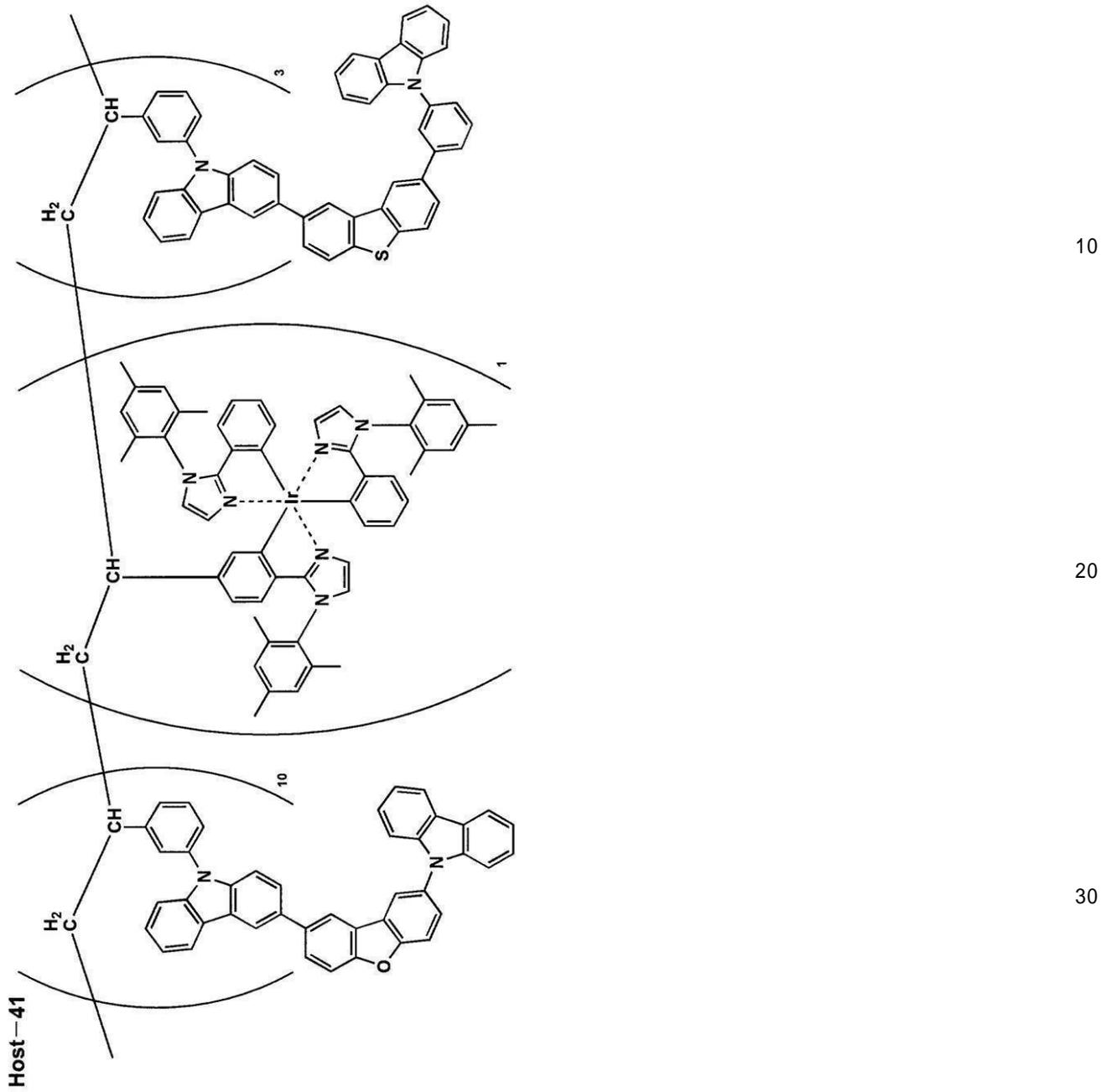
40

【化 2 2】



【 0 1 6 1】

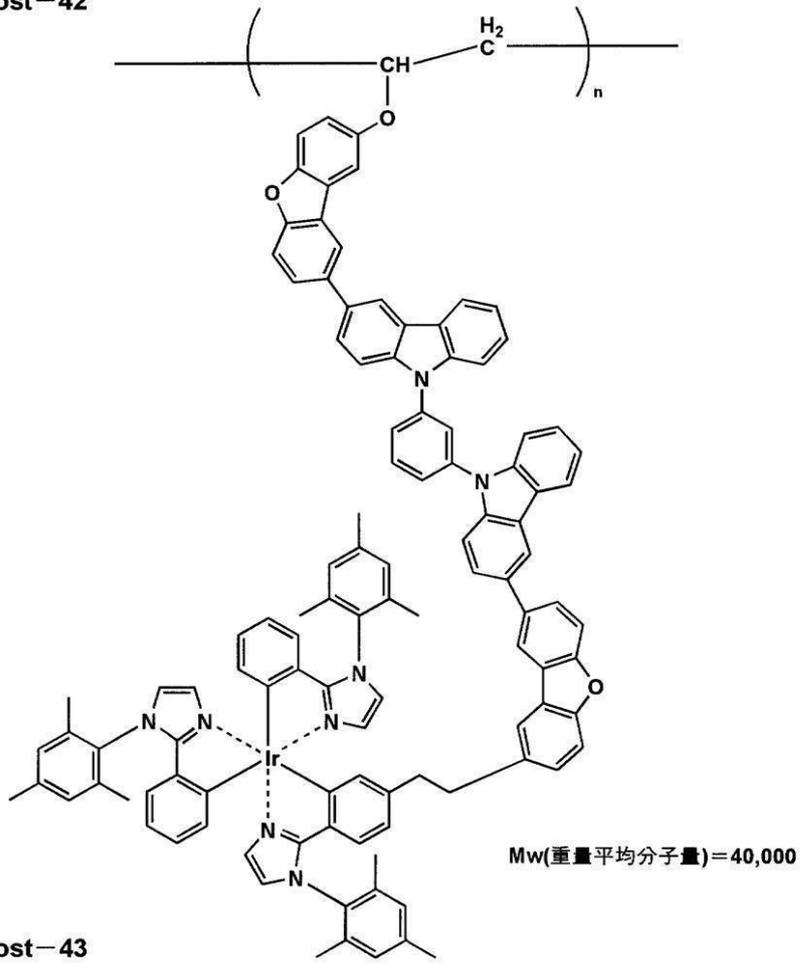
【化 2 3】



【 0 1 6 2 】

【化 2 4】

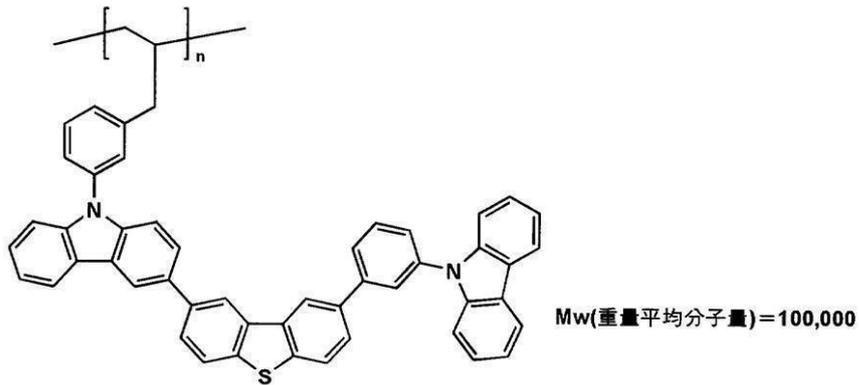
Host-42



10

20

Host-43



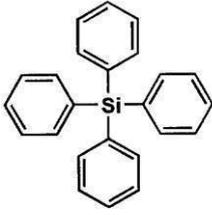
30

【 0 1 6 3】

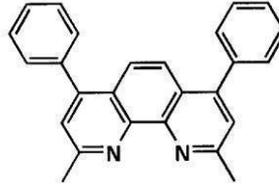
40

【化 2 5】

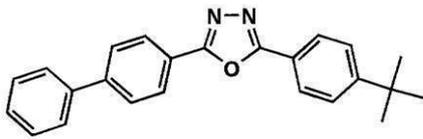
Host-44



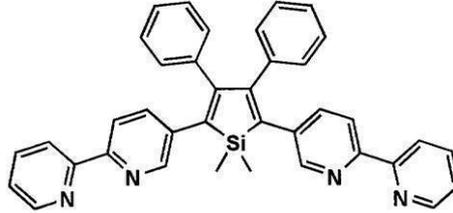
Host-45



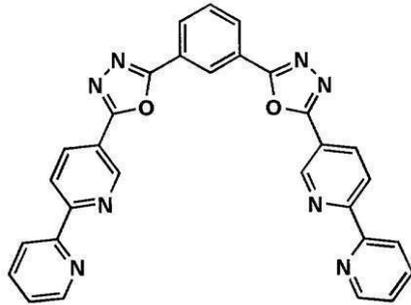
Host-46



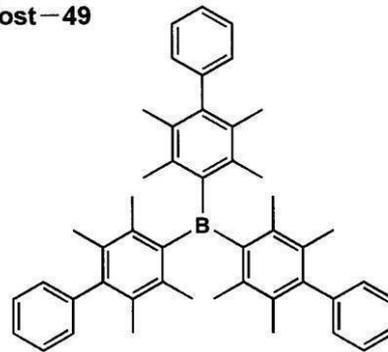
Host-47



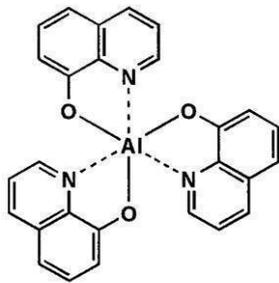
Host-48



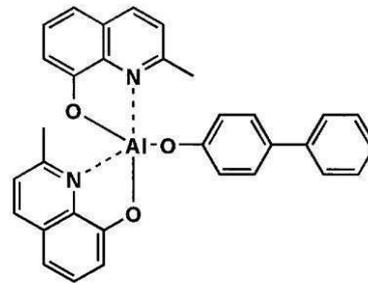
Host-49



Host-50



Host-51



10

20

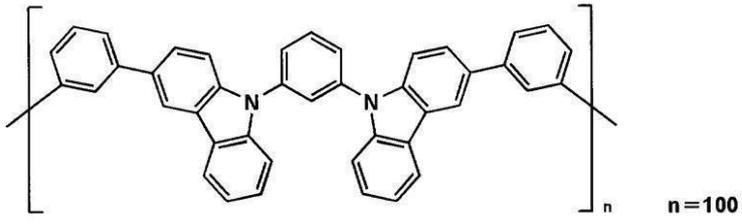
30

【 0 1 6 4】

40

【化 2 6】

Host-52



10

Host-53

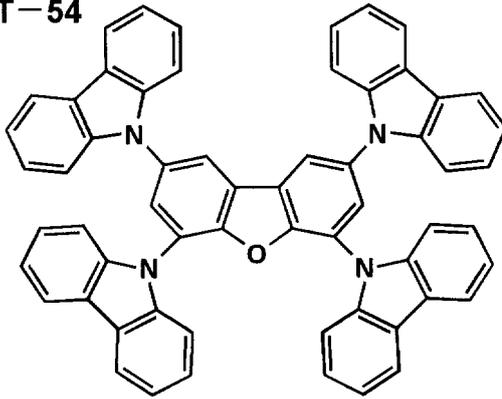


20

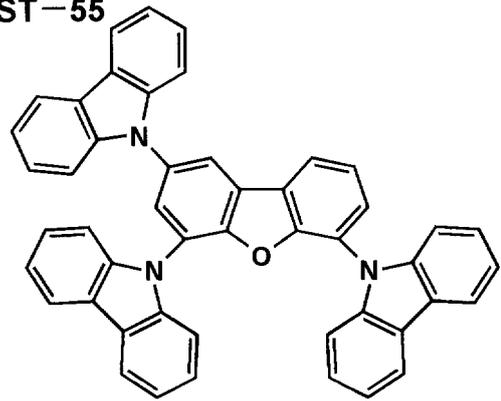
【 0 1 6 5 】

【化 2 7】

HOST-54

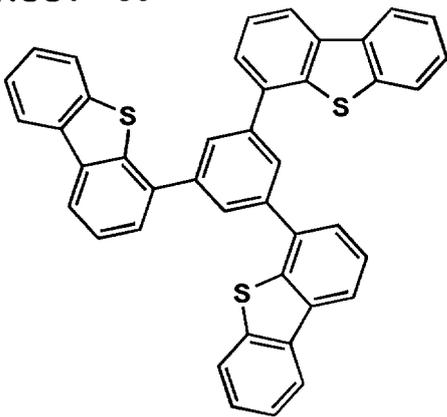


HOST-55

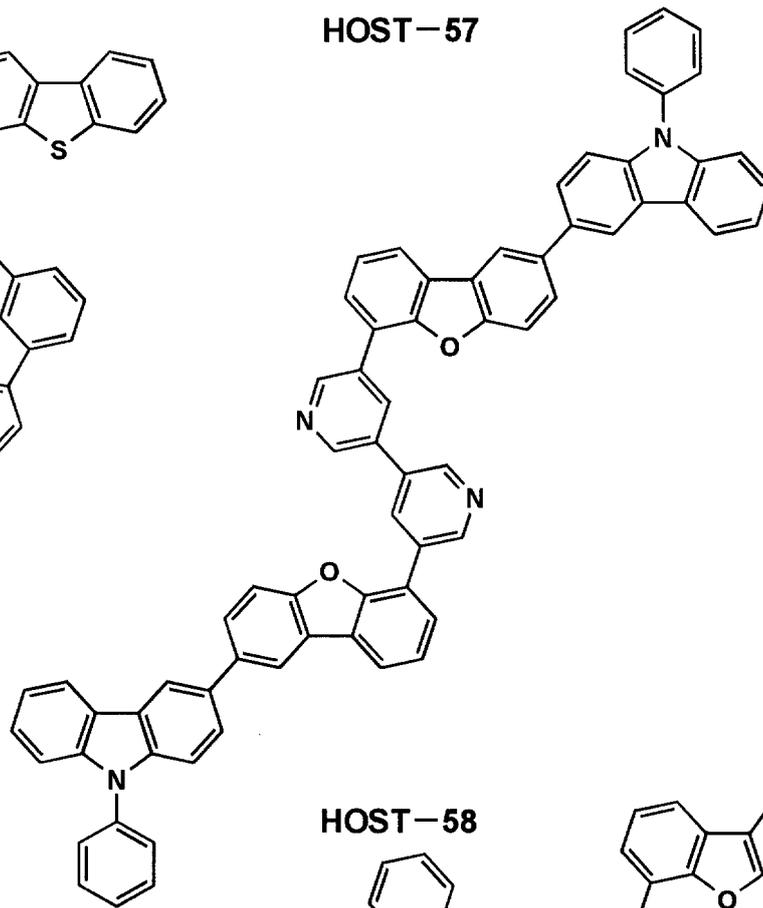


10

HOST-56



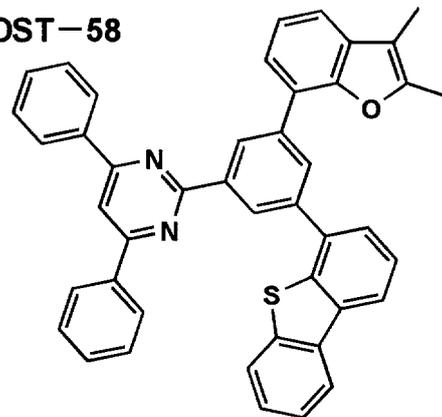
HOST-57



20

30

HOST-58

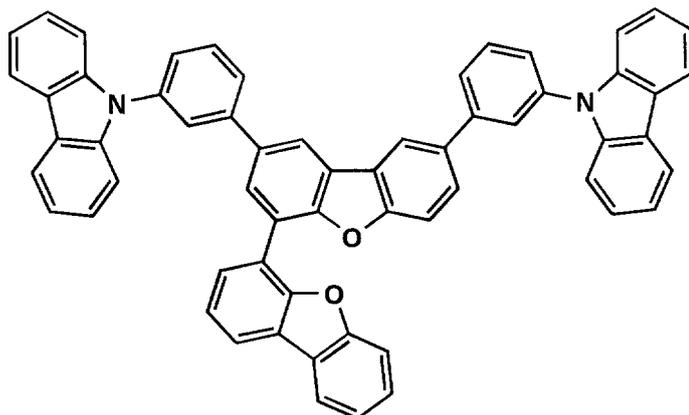


40

【 0 1 6 6 】

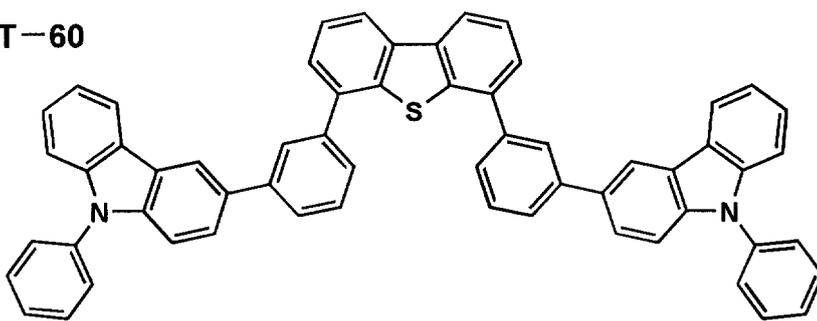
【化 2 8】

HOST-59



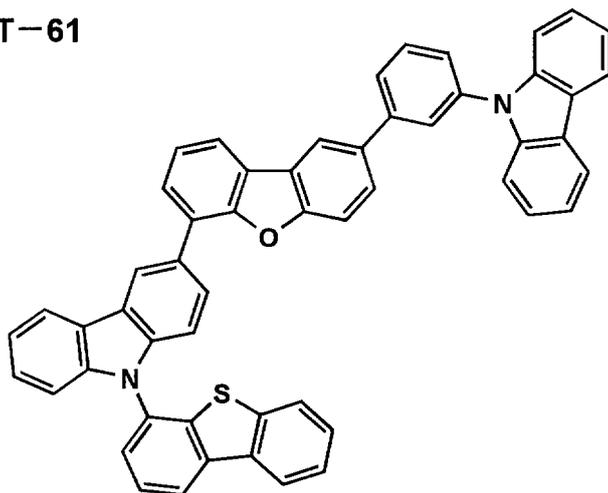
10

HOST-60



20

HOST-61



30

40

【0167】

《陰極》

一方、陰極としては仕事関数の小さい(4 eV以下)金属(電子注入性金属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(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

50

られる。

【0168】

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、アルミニウム等が好適である。

【0169】

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

10

【0170】

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

【0171】

《注入層：電子注入層（陰極バッファ層）、正孔注入層》

20

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

【0172】

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

【0173】

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

30

【0174】

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

40

【0175】

本発明の有機EL素子においては、上記の陰極または陰極に接する構成層（例えば、電子注入層（陰極バッファ層））中に、周期表の第1族または第2族に属する元素であり、該元素の金属イオン (M^{n+}) / 金属 (M) 系の標準電極電位が -3 V vs. SHE よりも大きい元素の金属または金属化合物を含有することが特徴である。

【0176】

ここで、本発明に係る M^{n+} / M 系の標準電極電位 E° は、温度 25°C 、溶質の活量がすべて1の水溶液中における、標準水素電極に対する電極電位であり、例えば「改定第3版 化学便覧 基礎編II」（日本化学会編）のII-474ページ、表12・46の値を参

50

考にできる。

【0177】

本発明に係る、周期表の第1族または第2族に属する元素であり、該元素の金属イオン (M^{n+}) / 金属 (M) 系の標準電極電位が -3 V vs. SHE よりも大きい元素の金属または金属化合物を構成する元素としては、具体的には、K (-2.925 (V))、Ca (-2.840 (V))、Na (-2.714 (V))、Mg (-2.356 (V)) 等を挙げることができる。

【0178】

《阻止層：正孔阻止層、電子阻止層》

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

10

【0179】

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層の機能を有し、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0180】

また、後述する電子輸送層の構成を必要に応じて、本発明に係わる正孔阻止層として用いることができる。

20

【0181】

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

【0182】

正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げた、カルバゾール誘導体、カルボリン誘導体、ジアザカルバゾール誘導体(ここで、ジアザカルバゾール誘導体とは、カルボリン環を構成する炭素原子のいずれかひとつが窒素原子で置き換わったものを示す)を含有することが好ましい。

【0183】

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

30

【0184】

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

【0185】

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

40

【0186】

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

50

【0187】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層の機能を有し、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0188】

また、後述する正孔輸送層の構成を必要に応じて電子阻止層として用いることができる。本発明に係る正孔阻止層、電子輸送層の膜厚としては、好ましくは3 nm ~ 100 nmであり、更に好ましくは5 nm ~ 30 nmである。

【0189】

《正孔輸送層》

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

【0190】

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えば、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、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、また導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

【0191】

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

【0192】

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

【0193】

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。

【0194】

10

20

30

40

50

また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

【0195】

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

【0196】

正孔輸送層は上記正孔輸送材料を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。

10

【0197】

正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5nm~200nmである。この正孔輸送層は上記材料の一種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0198】

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

20

【0199】

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

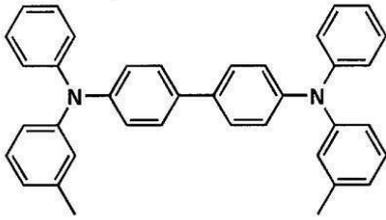
【0200】

以下、本発明の有機EL素子の正孔輸送層の形成に好ましく用いられる化合物の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

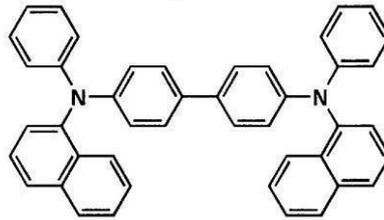
【0201】

【化 2 9】

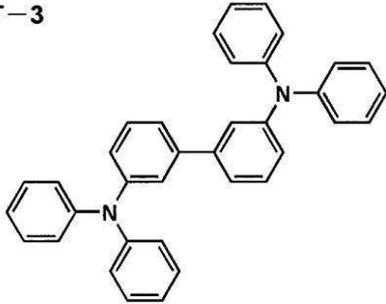
HT-1 (TPD)



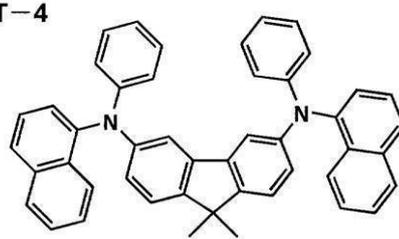
HT-2 (α -NPD)



HT-3

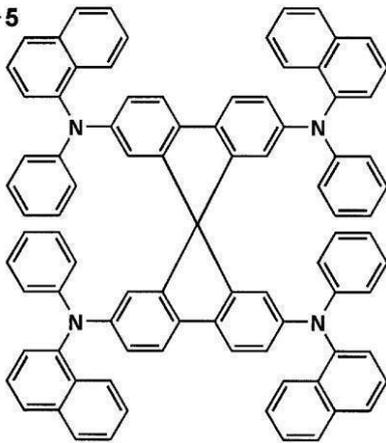


HT-4



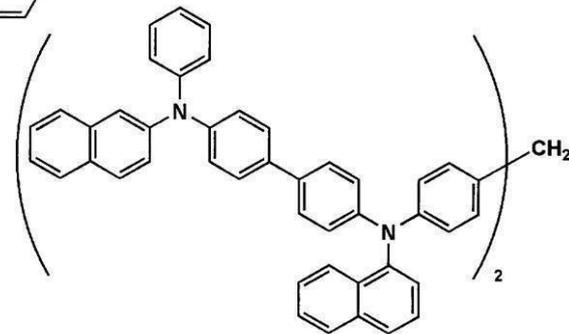
10

HT-5



20

HT-6

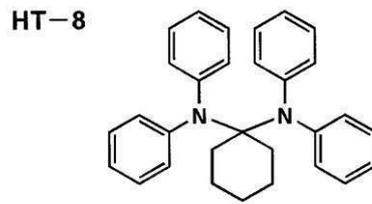
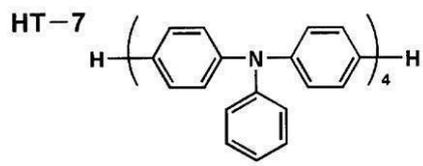


30

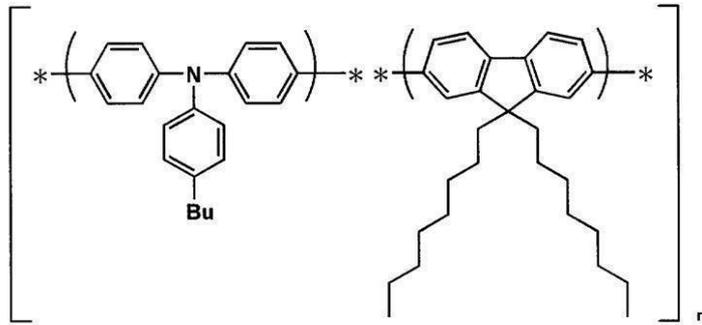
【 0 2 0 2 】

40

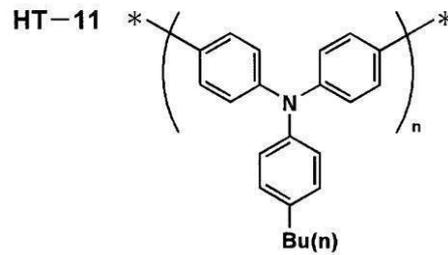
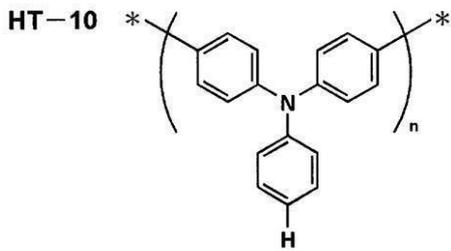
【化 3 0】



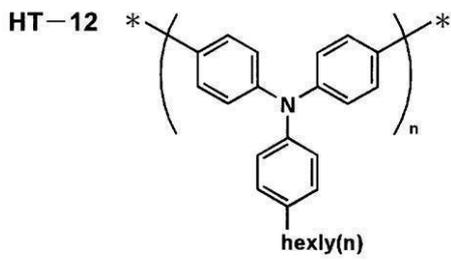
HT-9 (F8-TFB)



10



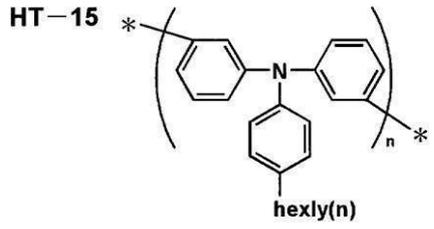
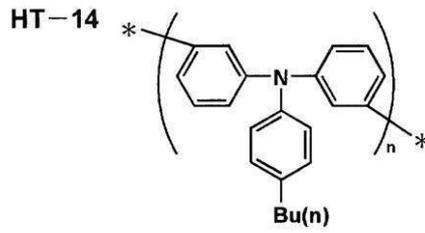
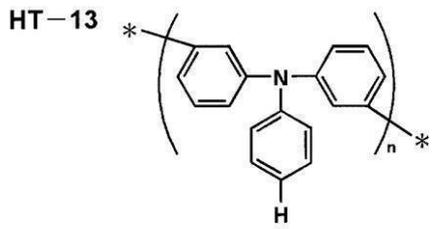
20



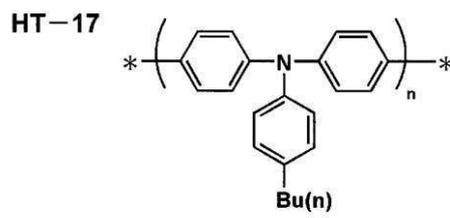
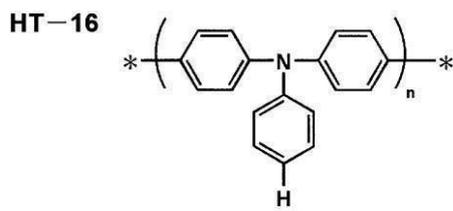
30

【 0 2 0 3 】

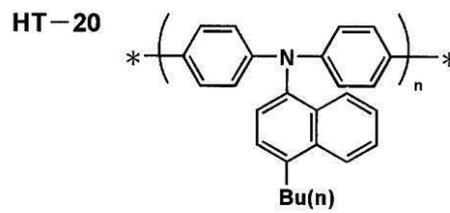
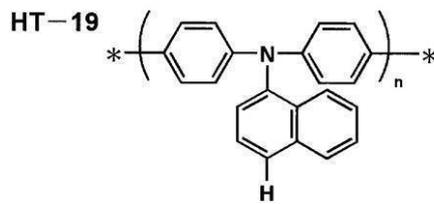
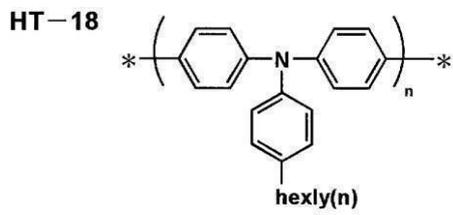
【化 3 1】



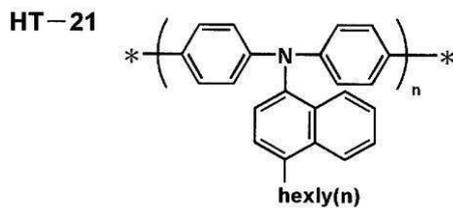
10



20

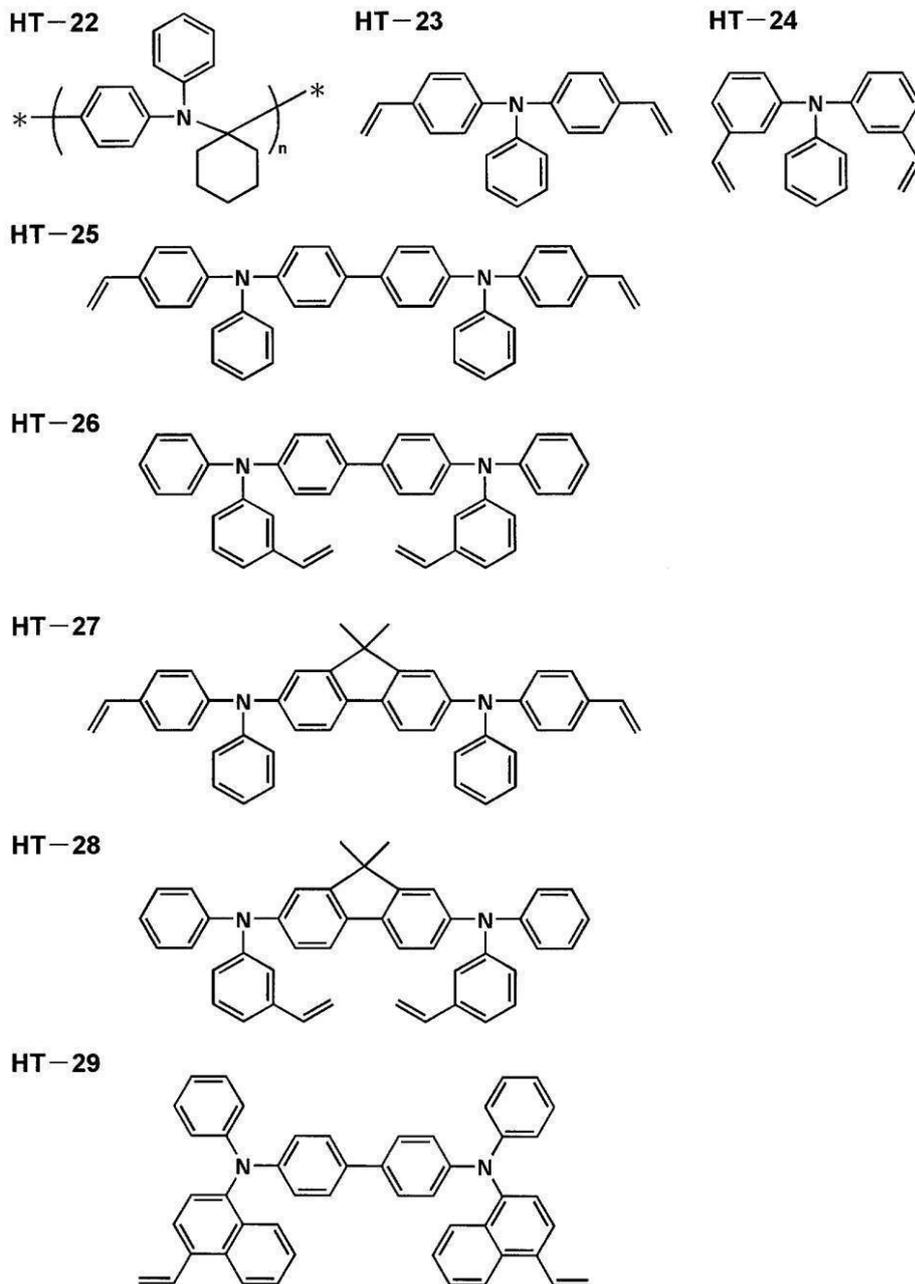


30



【 0 2 0 4 】

【化 3 2】



【 0 2 0 5 】

《 陽 極 》

有機 EL 素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV 以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au 等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、 SnO_2 、ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。

【 0 2 0 6 】

また、IDIXO ($\text{In}_2\text{O}_3 - \text{ZnO}$) 等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（100 μm 以上程度）、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。

40

50

【0207】

あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百Ω以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1000nm、好ましくは10nm~200nmの範囲で選ばれる。

【0208】

《支持基板》

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

10

【0209】

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、セロファン、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）、セルロースアセテートフタレート（TAC）、セルロースナイトレート等のセルロースエステル類またはそれらの誘導体、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンビニルアルコール、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリルあるいはポリアリレート類、アトロン（商品名JSR社製）あるいはアペル（商品名三井化学社製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

20

【0210】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよく、JIS K 7129-1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度（ 25 ± 0.5 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%RH）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126-1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が、 $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

30

【0211】

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

40

【0212】

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

【0213】

不透明な支持基板としては、例えば、アルミ、ステンレス等の金属板、フィルムや不透

50

明樹脂基板、セラミック製の基板等が挙げられる。

【0214】

本発明の有機EL素子の発光の室温における外部取り出し効率は、1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。

【0215】

ここに、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 × 100である。

【0216】

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

10

【0217】

《有機EL素子の製造方法》

有機EL素子の製造方法の一例として、陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極バッファ層 (電子注入層) / 陰極からなる素子の製造方法について説明する。

【0218】

まず、適当な基体上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10nm~200nmの膜厚になるように形成させ、陽極を作製する。

20

【0219】

次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極バッファ層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

【0220】

本発明のリン光発光性の有機EL素子においては、少なくとも2層の発光層は、湿式法 (ウェットプロセス) により塗布・成膜される。

【0221】

湿式法としては、スピンコート法、キャスト法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、インクジェット法、印刷法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法等があるが、精密な薄膜が形成可能で、且つ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法、スプレーコート法などのロール・ツー・ロール方式適性の高い方法が好ましい。また、層ごとに異なる成膜法を適用してもよい。

30

【0222】

本発明に係る有機EL材料を溶解または分散する液媒体としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、酢酸エチル等の脂肪酸エステル類、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素類、シクロヘキサン、デカリン、ドデカン等の脂肪族炭化水素類、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができる。

【0223】

また、分散方法としては、超音波、高切断力分散やメディア分散等の分散方法により分散することができる。

40

【0224】

これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を1μm以下、好ましくは50~200nmの範囲の膜厚になるように形成させ、陰極を設けることにより所望の有機EL素子が得られる。

【0225】

また、順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、正孔阻止層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

【0226】

このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には陽極を+、陰

50

極を - 0 2 1 0 の極性として電圧 2 V ~ 4 0 V 程度を印加すると発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。尚、印加する交流の波形は任意でよい。

【 0 2 2 7 】

《 封 止 》

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

【 0 2 2 8 】

封止部材としては、有機 E L 素子の表示領域を覆うように配置されておればよく、凹板状でも平板状でもよい。また透明性、電気絶縁性は特に問わない。

【 0 2 2 9 】

具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。

【 0 2 3 0 】

また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等から形成されたものを挙げることができる。

【 0 2 3 1 】

金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれ一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

【 0 2 3 2 】

本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。

【 0 2 3 3 】

更には、ポリマーフィルムは、J I S K 7 1 2 6 - 1 9 8 7 に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、J I S K 7 1 2 9 - 1 9 9 2 に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度 (25 ± 0.5 、相対湿度 (90 ± 2) % R H) が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

【 0 2 3 4 】

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

【 0 2 3 5 】

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

【 0 2 3 6 】

なお、有機 E L 素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から 8 0 までに接着硬化できるものが好ましい。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。封止部分への接着剤の塗布は市販のディスペンサーを使ってもよいし、スクリーン印刷のように印刷してもよい。

【 0 2 3 7 】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑

10

20

30

40

50

制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。

【0238】

更に、該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシー法、クラスタ・イオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、大気圧プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

【0239】

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

【0240】

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

【0241】

《保護膜、保護板》

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

【0242】

《光取り出し》

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

【0243】

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

【0244】

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

【0245】

本発明はこれらの手段を組み合わせることにより、更に高輝度あるいは耐久性に優れた素子を得ることができる。

【0246】

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

【0247】

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

【0248】

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。

【0249】

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

【0250】

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。

【0251】

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。

【0252】

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

【0253】

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。

【0254】

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

【0255】

《集光シート》

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

【0256】

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が30μmでその頂角

10

20

30

40

50

が90度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は10 μ m~100 μ mが好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚みが厚くなり好ましくない。

【0257】

集光シートとしては、例えば、液晶表示装置のLEDバックライトで実用化されているものを用いることが可能である。このようなシートとして、例えば、住友スリーエム社製輝度上昇フィルム(BEF)等を用いることができる。

【0258】

プリズムシートの形状としては、例えば、基材に頂角90度、ピッチ50 μ mの状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

10

【0259】

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

【0260】

《用途》

本発明の有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。発光光源として、例えば、照明装置(家庭用照明、車内照明)、時計や液晶用バックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信

20

【0261】

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

【0262】

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

30

【0263】

また、本発明の有機EL素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、1000cd/m²でのCIE1931表色系における色度がX=0.33 \pm 0.07、Y=0.33 \pm 0.1の領域内にあることを言う。

【0264】

《表示装置》

本発明の表示装置について説明する。本発明の表示装置は、本発明の有機EL素子を具備したものである。

40

【0265】

本発明の表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは多色表示装置について説明する。多色表示装置の場合は発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

【0266】

発光層のみパターンングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、スピンコート法、印刷法である。

【0267】

表示装置に具備される有機EL素子の構成は、必要に応じて上記の有機EL素子の構成例の中から選択される。

50

【0268】

また、有機EL素子の製造方法は、上記の本発明の有機EL素子の製造の一態様に示したとおりである。

【0269】

得られた多色表示装置に直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧2V~40V程度を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。更に交流電圧を印加する場合には、陽極が+、陰極が-の状態になったときのみ発光する。尚、印加する交流の波形は任意でよい。

【0270】

多色表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることによりフルカラーの表示が可能となる。

10

【0271】

表示デバイス、ディスプレイとしては、テレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、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。

【0272】

発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

20

【0273】

以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

【0274】

図1は有機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。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

【0275】

ディスプレイ1は複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

30

【0276】

制御部Bは表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

【0277】

図2は表示部Aの模式図である。

【0278】

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。

40

【0279】

図においては、画素3の発光した光が白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。

【0280】

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(詳細は図示していない)。

【0281】

画素3は走査線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。

50

【 0 2 8 2 】

発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を適宜同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

【 0 2 8 3 】

次に、画素の発光プロセスを説明する。

【 0 2 8 4 】

図 3 は画素の模式図である。

【 0 2 8 5 】

画素は有機 EL 素子 1 0、スイッチングトランジスタ 1 1、駆動トランジスタ 1 2、コンデンサ 1 3 等を備えている。複数の画素に有機 EL 素子 1 0 として、赤色、緑色、青色発光の有機 EL 素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

10

【 0 2 8 6 】

図 3 において、制御部 B からデータ線 6 を介してスイッチングトランジスタ 1 1 のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部 B から走査線 5 を介してスイッチングトランジスタ 1 1 のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ 1 1 の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ 1 3 と駆動トランジスタ 1 2 のゲートに伝達される。

【 0 2 8 7 】

画像データ信号の伝達により、コンデンサ 1 3 が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ 1 2 の駆動がオンする。駆動トランジスタ 1 2 は、ドレインが電源ライン 7 に接続され、ソースが有機 EL 素子 1 0 の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン 7 から有機 EL 素子 1 0 に電流が供給される。

20

【 0 2 8 8 】

制御部 B の順次走査により走査信号が次の走査線 5 に移ると、スイッチングトランジスタ 1 1 の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ 1 1 の駆動がオフしてもコンデンサ 1 3 は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ 1 2 の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機 EL 素子 1 0 の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ 1 2 が駆動して有機 EL 素子 1 0 が発光する。

30

【 0 2 8 9 】

即ち、有機 EL 素子 1 0 の発光は、複数の画素それぞれの有機 EL 素子 1 0 に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ 1 1 と駆動トランジスタ 1 2 を設けて、複数の画素 3 それぞれの有機 EL 素子 1 0 の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

【 0 2 9 0 】

ここで、有機 EL 素子 1 0 の発光は複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2 値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。また、コンデンサ 1 3 の電位の保持は次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

40

【 0 2 9 1 】

本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機 EL 素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

【 0 2 9 2 】

図 4 はパッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図 4 において、複数の走査線 5 と複数の画像データ線 6 が画素 3 を挟んで対向して格子状に設けられている。

【 0 2 9 3 】

50

順次走査により走査線 5 の走査信号が印加されたとき、印加された走査線 5 に接続している画素 3 が画像データ信号に応じて発光する。

【0294】

パッシブマトリクス方式では画素 3 にアクティブ素子が無く、製造コストの低減が計れる。

【0295】

《照明装置》

本発明の照明装置について説明する。本発明の照明装置は上記有機 EL 素子を有する。

【0296】

本発明の有機 EL 素子に共振器構造を持たせた有機 EL 素子として用いてもよく、このような共振器構造を有した有機 EL 素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより上記用途に使用してもよい。

10

【0297】

また、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。

【0298】

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。

20

【0299】

また、本発明の有機 EL 材料は照明装置として、実質白色の発光を生じる有機 EL 素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の 3 原色の 3 つの発光極大波長を含有させたものでもよいし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した 2 つの発光極大波長を含有したものでもよい。

【0300】

また複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光または蛍光で発光する材料を複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料との組み合わせたものいずれでもよいが、本発明に係る白色有機 EL 素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合するだけでよい。

30

【0301】

発光層、正孔輸送層あるいは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分ける等単純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターンニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。

【0302】

この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機 EL 装置と異なり、素子自体が発光白色である。

40

【0303】

発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF（カラーフィルター）特性に対応した波長範囲に適合するように、本発明に係る金属錯体、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせで白色化すればよい。

【0304】

《本発明の照明装置の一態様》

本発明の有機 EL 素子を具備した、本発明の照明装置の一態様について説明する。

50

【0305】

本発明の有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成することができる。

【0306】

図5は、照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（尚、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

10

【0307】

図6は、照明装置の断面図を示し、図6において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。尚、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。

【実施例】

【0308】

以下、実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0309】

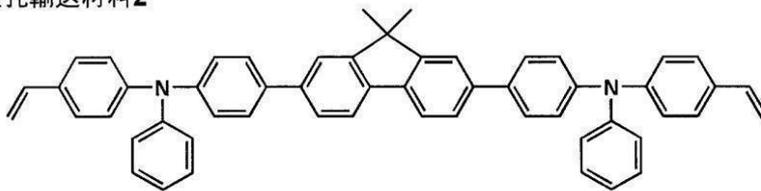
また、実施例に用いられる化合物の構造を以下に示す。

20

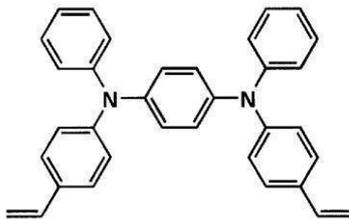
【0310】

【化33】

正孔輸送材料2

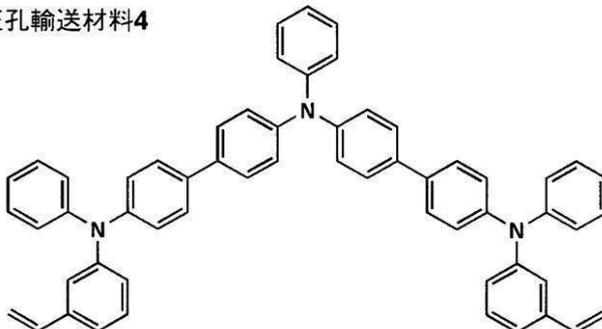


正孔輸送材料3



30

正孔輸送材料4



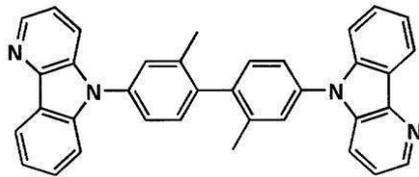
40

【0311】

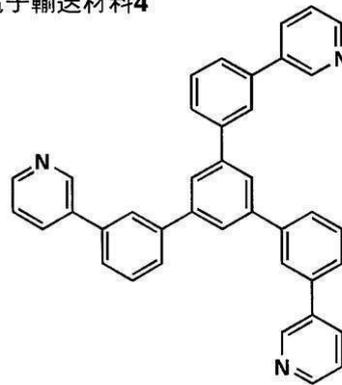
50

【化 3 4】

電子輸送材料3



電子輸送材料4



10

【0312】

実施例 1

《有機 EL 素子 1 - 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シド) を 100 nm 成膜した基板 (NH テクノグラス社製 NA - 45) にパターニングを行った後、この ITO 透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥室素ガスで乾燥し、UV オゾン洗浄を 5 分間行った。

20

【0313】

この透明支持基板の上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフエン) - ポリスチレンスルホネート (PEDOT/PSS、Bayer 社製、Baytron P AL 4083) を純水で 70% に希釈した溶液を用い、3000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200 °C にて 1 時間乾燥し、膜厚 20 nm の正孔輸送層を設けた。

【0314】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50 mg の HT - 26 を 10 ml のトルエンに溶解した溶液を 1000 rpm、30 秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。

30

【0315】

更に 180 秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約 25 nm の第二正孔輸送層とした。

【0316】

この第二正孔輸送層上に、100 mg の Host - 38 と 5 mg の D - 1 と 5 mg の D - 24 を 10 ml のトルエンに溶解した溶液を用い、1000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により成膜した。

40

【0317】

更に 100 °C で加熱しながら 15 秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、更に真空中 150 °C で 30 分間加熱を行って、膜厚約 50 nm の発光層とした。

【0318】

次にこの発光層上に、50 mg の ET - 3 を 10 ml のヘキサフルオロイソプロパノール (HFIP) に溶解した溶液を用いて、1000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。更に 60 °C で 1 時間真空乾燥し、膜厚約 30 nm の電子輸送層とした。

【0319】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Pa

50

まで減圧した後、陰極バッファ層としてフッ化リチウムを0.4 nm、更に陰極としてアルミニウムを110 nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

【0320】

《有機EL素子1-2の作製》

有機EL素子1-1の作製と同様に第二正孔輸送層までを作製した。次にこの第二正孔輸送層上に、100 mgのHost-38と10 mgのD-1を20 mlのトルエンに溶解した溶液を用い、2000 rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜した。

【0321】

更に100 で加熱しながら15秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、次いで、真空中150 で1時間加熱を行って、膜厚約20 nmの第一発光層とした。

10

【0322】

更に、この第一発光層上に、100 mgのHost-38と10 mgのD-24を10 mlのトルエンに溶解した溶液を用い、2500 rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜した。

【0323】

更に100 で加熱しながら15秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、真空中150 で1時間加熱を行って、膜厚約30 nmの第二発光層とした。

【0324】

続いて、有機EL素子1-1と同様に電子輸送層、陰極バッファ層、陰極を形成し、有機EL素子1-2を作製した。

20

【0325】

《有機EL素子1-3の作製》

有機EL素子1-2において、表1のように材料を変更した以外は同様にして有機EL素子1-3を作製した。

【0326】

《有機EL素子1-1～1-3の評価》

得られた有機EL素子1-1～1-3を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の比発光面をガラスカバーで覆い、ガラスカバーと有機EL素子が作製されたガラス基板とが接触するガラスカバー側の周囲にシール剤としてエポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラクストラックLC0629B）を適用し、これを上記陰極側に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させ、封止して、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

30

【0327】

以下のように有機EL素子の評価を行った。

【0328】

（外部取り出し量子効率）

有機EL素子を室温（約23～25）下、2.5 mA/cm²の定電流条件下で発光させ、発光開始直後の発光輝度（L）[cd/m²]を測定することにより外部取り出し量子効率（）を算出した。

【0329】

ここで、発光輝度の測定はCS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。外部取り出し量子効率は有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

40

【0330】

（電圧）

2.5 mA/cm²の定電流条件下で発光させ、発光開始直後の電圧を測定した。電圧は有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

【0331】

得られた結果を表1に示す。

【0332】

【表 1】

| 有機EL素子 No. | 発光層 | | 外部取り出し 量子効率 | 電圧 | 備 考 |
|---------------|------------------------|-----------------|----------------|-----|-----|
| | 第一発光層 | 第二発光層 | | | |
| 1-1 | HOST-38 D-1 D-24 | - - - | 100 | 100 | 比較例 |
| 1-2 | HOST-38 D-1 | HOST-38 D-24 | 110 | 86 | 本発明 |
| 1-3 | HOST-38 D-1 | HOST-38 D-26 | 119 | 79 | 本発明 |

10

【0333】

表1から、比較の素子に比べて、本発明の素子は、外部取り出し量子効率が高く、且つ、低駆動電圧であることが明らかである。

【0334】

実施例2

《有機EL素子2-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキド）を100nm成膜した基板（NHテクノグラス社製NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板を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。

20

【0335】

この透明支持基板の上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083）を純水で70%に希釈した溶液を用い、3000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

【0336】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に正孔輸送材料3を5mgと正孔輸送材料4を45mgとを10mlのトルエンに溶解した混合溶液を用い、1000rpm、30秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。

30

【0337】

更に180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約25nmの第二正孔輸送層とした。

【0338】

この第二正孔輸送層上に、100mgのHost-52と0.1mgのD-6と、10mgのD-25を10mlのジクロロベンゼンに溶解した溶液を用い、1500rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜した。更に真空中150℃で1時間加熱を行って、膜厚約50nmの第一発光層とした。

40

【0339】

この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、第一発光層上に、ET-8を20nm蒸着して第一電子輸送層を形成した。

【0340】

続いて第一電子輸送層上にET-7を10nm蒸着して第二電子輸送層とした。

【0341】

更に、陰極バッファ層としてフッ化リチウムを0.5nm、陰極としてアルミニウムを110nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。

【0342】

50

《有機EL素子2-2の作製》：本発明

有機EL素子2-1と同様に第二正孔輸送層までを作製した。

【0343】

次にこの第二正孔輸送層上に、100mgのHost-52と5mgのD-6を20mlのジクロロベンゼンに溶解した溶液を用い、2500rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜した。

【0344】

更に真空中150で1時間加熱を行って、膜厚約20nmの第一発光層とした。

【0345】

更にこの第一発光層上に、100mgのHost-14と10mgのD-25を10mlの酢酸エチルに溶解した溶液を用い、2500rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜し、第二発光層を形成した。

【0346】

続いて、有機EL素子2-1と同様に電子輸送層、陰極バッファ層、陰極を形成し、有機EL素子2-2を作製した。

【0347】

《有機EL素子2-3の作製》

有機EL素子2-2の作製において、表2に記載のように材料の組み合わせを変更した以外は同様にして有機EL素子2-3を作製した。

【0348】

《有機EL素子2-1～2-3の評価》

得られた有機EL素子2-1～2-3を評価するに際しては、実施例1と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して、外部取り出し量子効率、電圧、寿命について評価した。

【0349】

尚、発光寿命の評価は下記のように行った。

【0350】

《発光寿命》

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

【0351】

得られた結果を表2に示す。

【0352】

【表2】

| 有機EL素子 No. | 発光層 | | 外部取り出し 量子効率 | 電圧 | 寿命 | 備考 |
|---------------|------------------------|-----------------|----------------|-----|-----|-----|
| | 第一発光層 | 第二発光層 | | | | |
| 2-1 | HOST-52 D-6 D-25 | — — — | 100 | 100 | 100 | 比較例 |
| 2-2 | HOST-52 D-6 | HOST-14 D-25 | 132 | 81 | 470 | 本発明 |
| 2-3 | HOST-52 D-6 | HOST-55 D-25 | 141 | 73 | 650 | 本発明 |

【0353】

表 2 から、比較の素子に比べて、本発明の素子は、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命であることが明らかである。

【0354】

実施例 3

《有機 EL 素子 3 - 1 の作製》

陽極として 100 mm × 100 mm × 1.1 mm のガラス基板上に ITO (インジウムチンオキsid) を 100 nm 成膜した基板 (NH テクノグラス社製 NA - 45) にパターニングを行った後、この ITO 透明電極を設けた透明支持基板を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。

【0355】

この透明支持基板上に、ポリ (3, 4 - エチレンジオキシチオフエン) - ポリスチレンスルホネート (PEDOT / PSS, Bayer 社製, Baytron PA1 4083) を純水で 70% に希釈した溶液を用い、3000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200 °C にて 1 時間乾燥し、膜厚 20 nm の正孔輸送層を設けた。

【0356】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50 mg の ADS 254 BE (American Dye Source 社製) を 10 ml のトルエンに溶解した溶液を 1000 rpm、30 秒の条件で正孔輸送層上にスピコート法により形成し、更に真空中 60 °C で 1 時間加熱を行って、膜厚約 25 nm の第二正孔輸送層とした。

【0357】

この第二正孔輸送層上に、100 mg の Host - 25 と 5 mg の D - 9 と 5 mg の D - 25 を 10 ml のトルエンに溶解した溶液を用い、1000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により成膜し、更に真空中 100 °C で 1 時間加熱を行って、膜厚約 50 nm の発光層とした。

【0358】

この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、発光層上に、電子輸送材料 3 を 30 nm、続いて陰極バッファ層としてフッ化リチウムを 0.5 nm、更に陰極としてアルミニウムを 110 nm 蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 3 - 1 を作製した。

【0359】

《有機 EL 素子 3 - 2 の作製》

有機 EL 素子 3 - 1 と同様に第二正孔輸送層までを作製した。

【0360】

次にこの第二正孔輸送層上に、100 mg の Host - 25 と 5 mg の D - 9 を 10 ml のトルエンに溶解した溶液を用い、2000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により成膜し、更に真空中 150 °C で 1 時間加熱を行って、第一発光層とした。

【0361】

得られた第一発光層上に、100 mg の Host - 16 と 10 mg の D - 25 を 40 ml のヘキサフルオロイソプロパノール (HFIP) に溶解した溶液を用い、1000 rpm、30 秒の条件でスピコート法により成膜し、60 °C で 1 時間真空乾燥して第二発光層を形成した。

【0362】

続いて、有機 EL 素子 3 - 1 と同様に電子輸送層、陰極バッファ層、陰極を形成し、有機 EL 素子 3 - 2 を作製した。

【0363】

《有機 EL 素子 3 - 3 及び 3 - 4 の作製》

有機 EL 素子 3 - 2 において、表 3 に記載のように材料の組み合わせを変更した以外は同様にして有機 EL 素子 3 - 3 及び 3 - 4 を各々作製した。

【0364】

10

20

30

40

50

《有機EL素子3-1～3-4の評価》

得られた有機EL素子3-1～3-4を評価するに際しては、実施例1と同様に封止し、図5、図6に示すような照明装置を形成して、実施例2と同様に、外部取り出し量子効率、電圧、寿命について評価した。

【0365】

得られた結果を表3に示す。

【0366】

【表3】

| 有機EL素子 No. | 発光層 | | 外部取り出し 量子効率 | 電圧 | 寿命 | 備考 |
|---------------|------------------------|-----------------|----------------|-----|------|-----|
| | 第一発光層 | 第二発光層 | | | | |
| 3-1 | HOST-25 D-9 D-25 | — — — | 100 | 100 | 100 | 比較例 |
| 3-2 | HOST-25 D-9 | HOST-16 D-25 | 109 | 84 | 240 | 本発明 |
| 3-3 | HOST-25 D-25 | HOST-16 D-26 | 112 | 80 | 520 | 本発明 |
| 3-4 | HOST-25 D-26 | HOST-16 D-26 | 114 | 78 | 1020 | 本発明 |

10

20

【0367】

表3から、比較の素子に比べて、本発明の素子は、外部取り出し量子効率が高く、低駆動電圧であり、且つ、長寿命であることが明らかである。

【0368】

実施例4

《有機EL素子4-1の作製》

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

30

【0369】

この透明支持基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液を用い、3000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

【0370】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、100mgのHT-29を10mlのトルエンに溶解した溶液を3000rpm、30秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。

40

【0371】

更に180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、第二正孔輸送層とした。

【0372】

この第二正孔輸送層上に、100mgのHost-53と15mgのD-30と0.5mgのD-10を10mlのトルエンに溶解した溶液を用い、600rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜した。

【0373】

更に100℃で加熱しながら15秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、更に真空中150℃で30分間加熱を行って、膜厚約60nmの発光層とした。

【0374】

50

次にこの発光層上に、50 mgのET-10を10 mlのヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)に溶解した溶液を用いて、1000 rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。更に60 で1時間真空乾燥し、膜厚約30 nmの電子輸送層とした。

【0375】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、陰極バッファ層としてフッ化リチウムを0.4 nm、更に陰極としてアルミニウムを110 nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子4-1を作製した。

【0376】

《有機EL素子4-2の作製》

有機EL素子4-1の作製と同様に第二正孔輸送層までを作製した。

【0377】

次にこの第二正孔輸送層上に、有機EL素子4-1で発光層を形成するのに用いた溶液と同様の溶液を用い、3000 rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜し、100 で加熱しながら15秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、更に真空中150 で30分間加熱を行って、膜厚約30 nmの第一発光層とした。

【0378】

続いて、同溶液を用いて第一発光層上に、3000 rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜し、100 で加熱しながら15秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行わせ、更に真空中150 で30分間加熱を行って、膜厚約30 nmの第二発光層とした。

【0379】

続いて、有機EL素子4-1と同様に電子輸送層、陰極バッファ層、陰極を形成し、有機EL素子4-2を作製した。

【0380】

《有機EL素子4-1、4-2の評価》

得られた有機EL素子4-1、4-2を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の比発光面をガラスカバーで覆い、ガラスカバーと有機EL素子が作製されたガラス基板とが接触するガラスカバー側の周囲にシール剤としてエポキシ系光硬化型接着剤(東亜合成社製ラクストラックLC0629B)を適用し、これを上記陰極側に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して硬化させ、封止して、図5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

【0381】

以下のように有機EL素子の評価を行った。

【0382】

(外部取り出し量子効率)

有機EL素子を室温(約23 ~ 25)下、 2.5 mA/cm^2 の定電流条件下で発光させ、発光開始直後の発光輝度(L) [cd/m^2]を測定することにより外部取り出し量子効率()を算出した。

【0383】

ここで、発光輝度の測定はCS-1000(コニカミノルタセンシング製)を用いた。外部取り出し量子効率は有機EL素子4-1を100とする相対値で表した。

【0384】

(電圧)

2.5 mA/cm^2 の定電流条件下で発光させ、発光開始直後の電圧を測定した。電圧は有機EL素子4-1を100とする相対値で表した。

【0385】

得られた結果を表4に示す。

【0386】

10

20

30

40

【表 4】

| 有機EL素子 No. | 発光層 | | 外部取り出し 量子効率 | 電圧 | 備 考 |
|---------------|---------|---------|----------------|-----|-----|
| | 第一発光層 | 第二発光層 | | | |
| 4-1 | HOST-53 | — | 100 | 100 | 本発明 |
| | D-30 | — | | | |
| | D-10 | — | | | |
| 4-2 | HOST-53 | HOST-53 | 115 | 89 | 本発明 |
| | D-30 | D-30 | | | |
| | D-10 | D-10 | | | |

10

【0387】

表4から、比較の素子に比べて、本発明の素子は、外部取り出し量子効率が高く、且つ、低駆動電圧であることが明らかである。

【0388】

実施例5

《有機EL素子5-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキsid）を100nm成膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥室素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

20

【0389】

この透明支持基板の上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron PA14083）を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により成膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの第一正孔輸送層を設けた。

【0390】

この基板を窒素雰囲気下に移し、第一正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料2を10mlのトルエンに溶解した溶液を1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜し、180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行った後、60℃で1時間真空乾燥し第二正孔輸送層を形成した。

30

【0391】

次に、Host-18（60mg）とD-1（3.0mg）とD-10（2.0mg）をトルエン6mlに溶解した溶液を用い、2000rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜した。60℃で1時間真空乾燥し第一発光層を形成した。

【0392】

更にこの第一発光層上に、Host-9（60mg）とD-26（6.0mg）を6mlのヘキサフルオロイソプロパノール（HFIP）に溶解した溶液を用い、2000rpm、30秒の条件でスピコート法により成膜し、60℃で1時間真空乾燥し、第二発光層を形成した。

40

【0393】

この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、第二発光層上に、電子輸送材料4を30nm、続いて陰極バッファ層としてフッ化リチウムを0.5nm、更に陰極としてアルミニウムを110nm蒸着して陰極を形成し、有機EL素子5-1を作製した。

【0394】

この素子に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用出来ることが判った。尚、例示の他の化合物に置き換えても同様に白色の発光が得られることが判った。

50

【符号の説明】

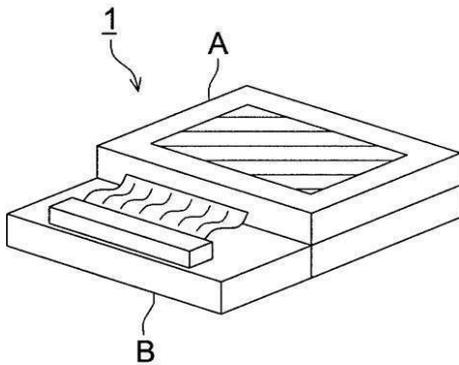
【0395】

- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- 7 電源ライン
- 10 有機EL素子
- 11 スイッチングトランジスタ
- 12 駆動トランジスタ
- 13 コンデンサ
- A 表示部
- B 制御部
- 101 有機EL素子
- 102 ガラスカバー
- 105 陰極
- 106 有機EL層
- 107 透明電極付きガラス基板
- 108 窒素ガス
- 109 捕水剤

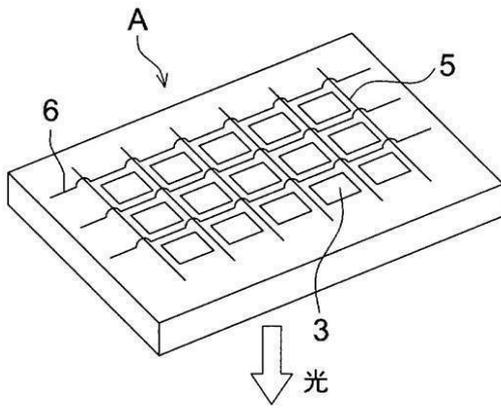
10

20

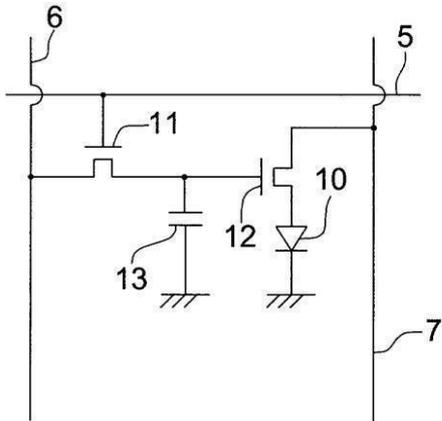
【図1】



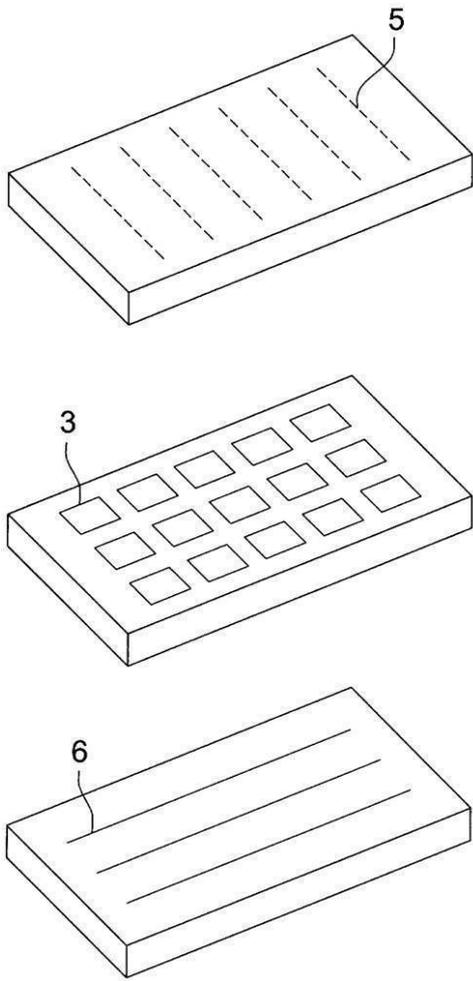
【 図 2 】



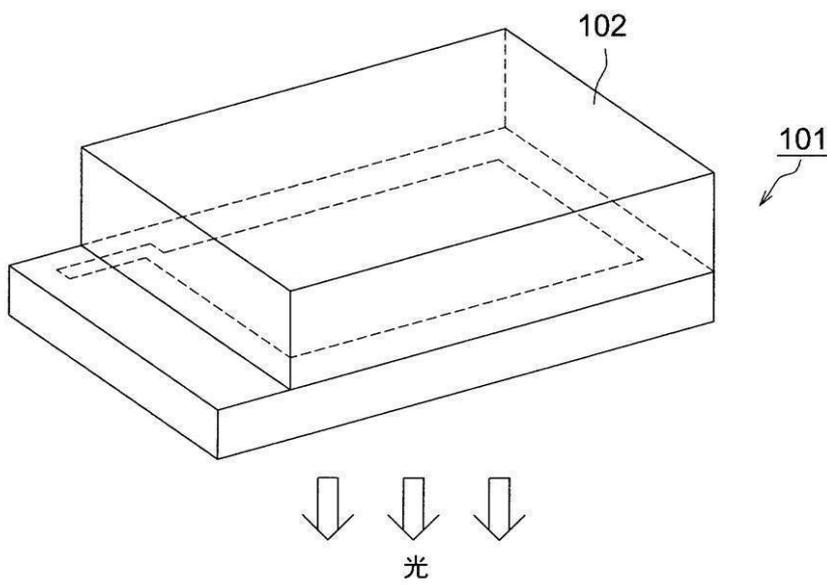
【 図 3 】



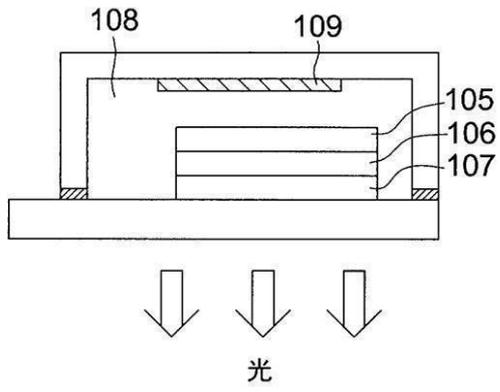
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



【 国際調査報告 】

| INTERNATIONAL SEARCH REPORT | | International application No. PCT/JP2010/052043 |
|--|---|---|
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L51/50(2006.01)i, C07F15/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H05B33/12(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, C07F15/00, C09K11/06, H05B33/12 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 1996-2010 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2010 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2010 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 | JP 2008-282610 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 20 November 2008 (20.11.2008), paragraphs [0144] to [0150], [0171], [0180], [0194] to [0202]; organic EL elements 42, 43 (Family: none) | 1-14 |
| X | JP 2008-84654 A (Seiko Epson Corp.), 10 April 2008 (10.04.2008), paragraphs [0031], [0042], [0053] to [0065]; fig. 5, 6 & US 2008/0074039 A1 & CN 101154717 A & KR 10-2008-0028806 A | 1, 8, 9, 11-14 |
| <input 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 24 February, 2010 (24.02.10) | | Date of mailing of the international search report 09 March, 2010 (09.03.10) |
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | | Authorized officer |
| Facsimile No. | | Telephone No. |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/052043

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. 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:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

An organic electroluminescence element including a matter for defining the inventions in claims 1 - 14, an illumination device and a display device, which are equipped with said element, are described in JP 2008-282610 A. The inventions in claims 1 - 14 cannot be considered to be novel in the light of the invention described in the above-said document, and do not have a special technical feature.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. 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.:

4. 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.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- 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.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

| 国際調査報告 | | 国際出願番号 PCT/JP2010/052043 | | | | | | | | | |
|---|---|--|---------|-----------|------------|-------------|------------|-------------|------------|-------------|------------|
| 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, C07F15/00(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H05B33/12(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, C07F15/00, C09K11/06, H05B33/12 | | | | | | | | | | | |
| 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2010年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2010年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2010年</td> </tr> </table> | | | | 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | 日本国公開実用新案公報 | 1971-2010年 | 日本国実用新案登録公報 | 1996-2010年 | 日本国登録実用新案公報 | 1994-2010年 |
| 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | | | | | | | | | | |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2010年 | | | | | | | | | | |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2010年 | | | | | | | | | | |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2010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 請求項の番号 | | | | | | | | | |
| X | JP 2008-282610 A (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2008.11.20, 【0144】-【0150】, 【0171】, 【0180】, 【0194】-【0202】, 有機EL素子42, 43 (ファミリーなし) | 1-14 | | | | | | | | | |
| <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 | | の日の後に公表された文献 | | | | | | | | | |
| 「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 | | 「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 | | | | | | | | | |
| 「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 | | 「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 | | | | | | | | | |
| 「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) | | 「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 | | | | | | | | | |
| 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 | | 「&」同一パテントファミリー文献 | | | | | | | | | |
| 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 | | | | | | | | | | | |
| 国際調査を完了した日 24.02.2010 | | 国際調査報告の発送日 09.03.2010 | | | | | | | | | |
| 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 | 20 2905 | | | | | | | | |
| | | 電話番号 03-3581-1101 | 内線 3271 | | | | | | | | |

| 国際調査報告 | | 国際出願番号 PCT/JP2010/052043 |
|-----------------------|--|--------------------------|
| 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 請求項の番号 |
| X | JP 2008-84654 A (セイコーエプソン株式会社) 2008.04.10, 【0031】, 【0042】, 【0053】 - 【0065】, 第5, 6図 & US 2008/0074039 A1 & CN 101154717 A & KR 10-2008-0028806 A | 1, 8, 9, 11-14 |

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2010/052043

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. 請求項 _____ 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. 請求項 _____ 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. 請求項 _____ 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。

文献JP 2008-282610 Aには、請求項1-14に係る発明の発明特定事項を備えた有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を備えた照明装置及び表示装置が記載されており、請求項1-14に係る発明は、上記文献に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しない。

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項について作成した。
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項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項のみについて作成した。
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項について作成した。

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はあったが、異議申立てはなかった。

様式PCT/ISA/210 (第1ページの続葉(2)) (2009年7月)

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, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, 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, LY, MA, MD, ME, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

Fターム(参考) 4H050 AA01 AB92 WB14 WB21

(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。