

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5845599号
(P5845599)

(45) 発行日 平成28年1月20日 (2016. 1. 20)

(24) 登録日 平成27年12月4日 (2015. 12. 4)

(51) Int. Cl.	F I
HO 1 L 51/50 (2006. 01)	H O 5 B 33/14 B
CO 7 D 519/00 (2006. 01)	H O 5 B 33/22 D
CO 9 K 11/06 (2006. 01)	H O 5 B 33/22 B
	CO 7 D 519/00 3 1 1
	CO 9 K 11/06 6 9 0

請求項の数 11 (全 57 頁)

(21) 出願番号	特願2011-53938 (P2011-53938)	(73) 特許権者	000001270
(22) 出願日	平成23年3月11日 (2011. 3. 11)		コニカミノルタ株式会社
(65) 公開番号	特開2012-191031 (P2012-191031A)		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
(43) 公開日	平成24年10月4日 (2012. 10. 4)	(74) 代理人	110001254
審査請求日	平成25年9月13日 (2013. 9. 13)		特許業務法人光陽国際特許事務所
前置審査		(72) 発明者	箱井 雄太郎
			東京都日野市さくら町1番地コニカミノル タテクノロジーセンター株式会社内
		審査官	川口 聖司
		(56) 参考文献	国際公開第2011/088877 (W O, A1) 国際公開第2011/060867 (W O, A1)

最終頁に続く

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

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

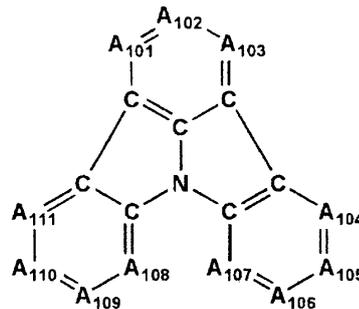
一対の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のうち少なくとも一層に下記一般式(1)で表される化合物を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

一般式(1)



一般式(2)



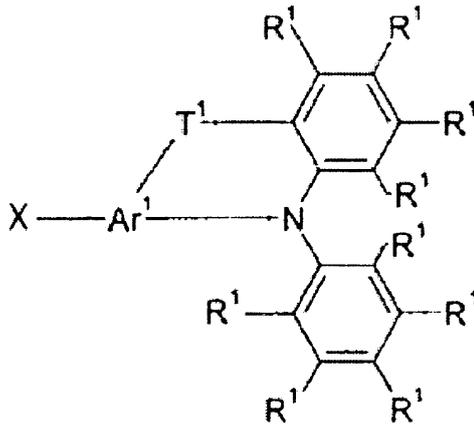
(一般式(1)中、Xは一般式(2)を表し、 n_1 は1~4の整数を表す。 n_1 が2以上の場合、それぞれのXは同一であっても異なっていても良い。また、一般式(2)中、 $A_{101} \sim A_{111}$ はNまたはC-Rを表す。Rはそれぞれ独立に水素原子、置換基または L_1 との結合手を表す。 $n_1 = 2 \sim 4$ の場合、 L_1 は芳香族縮合環または複素芳香族縮

合環を表す。 $n_1 = 1$ の場合、 L_1 は、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ピレン環、フェナンスレン環、フェナレン環、トリフェニレン環、コロネン環、キノリン環、ベンゾポロール環、イソインドール環、インドール環、ベンゾフラン環、ホスフィノインドール環、ホスフィノインドールオキシド環、ベンゾシロール環、ベンゾチオフエン環、ベンゾジポロール環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ベンゾジシロール環、ジベンゾポロール環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ベンソホスフィノインドール環、ジベンゾシロール環およびジベンゾチオフエン環から選択される、芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表すが、当該芳香族縮合環または当該複素芳香族縮合環が置換基を有する場合、置換基同士が連結してさらに環を形成することはない。また、 L_1 は一般式(2)で表される骨格構造であることはない。 L_1 と X とは、 L_1 を構成する炭素原子を介して結合している。但し、下記一般式(i)で表される化合物は除く。)

10

【化2】

一般式(i)



20

(一般式(i)中、 X は一般式(2)を表し、 Ar^1 は6員環の芳香族環であり、1つ以上の基 R^1 によって置換されていてもよく、 T^1 は単結合、 R^1 はHまたは置換基を表す。)

【請求項2】

30

前記一般式(1)中、 n_1 が2~4の整数を表す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】

前記一般式(1)中、 L_1 が複素芳香族縮合環であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

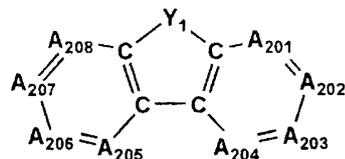
【請求項4】

前記一般式(1)中、 L_1 が一般式(3)で表され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3】

一般式(3)

40



(一般式(3)中、 $A_{201} \sim A_{208}$ はNまたはC-Rを表し、 Y_1 はO、S、NR'、BR'、SiR'R''、PR'またはP(Z1)R'を表す。R、R'およびR''はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、 Z_1 はOまたはSを表す。)

【請求項5】

前記一般式(3)中、 Y_1 がOまたはSで表されることを特徴とする請求項4に記載の

50

有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】

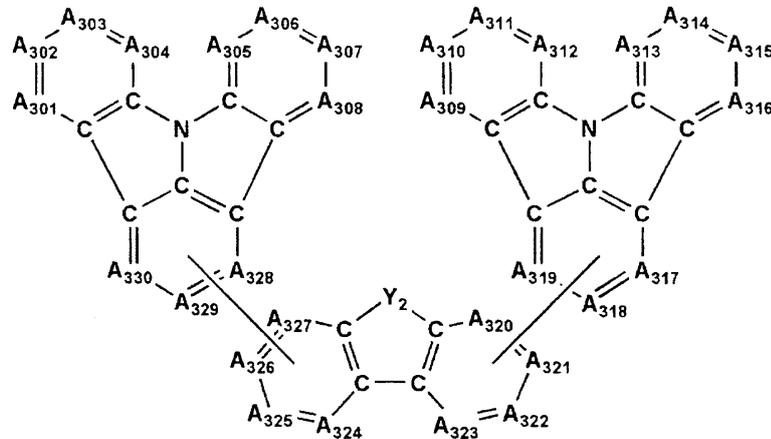
前記一般式(3)中、R、R'およびR''が水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族複素環、複素環基、アルコキシ基で表されることを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】

前記一般式(1)で表される化合物が、一般式(4)で表される化合物であることを特徴とする請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化4】

一般式(4)



(一般式(4)中、A₃₀₁~A₃₃₀はNまたは、C-Rを表し、Y₂はO、S、N、R'、BR'、SiR'R''、PR'またはP(Z₂)R'を表す。R、R'およびR''はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、Z₂はOまたはSを表す。)

【請求項8】

前記一般式(4)で表される化合物中、Y₂が、OまたはSで表されることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】

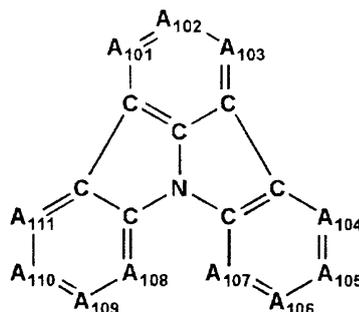
一对の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のうち少なくとも一層に下記一般式(1)で表される化合物を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化5】

一般式(1)



一般式(2)



(一般式(1)中、Xは一般式(2)を表し、n₁は1~4の整数を表す。n₁が2以上の場合、それぞれのXは同一であっても異なっていても良い。また、一般式(2)中、A₁₀₁~A₁₁₁はNまたはC-Rを表す。Rはそれぞれ独立に水素原子、置換基またはL₁との結合手を表す。L₁は芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表し、一般式(2)で表される骨格構造であることはない。L₁とXとは、L₁を構成する炭素原子を介して結合している。但し、下記一般式(ii)、式(I-29)、式(I-30)、式(I

10

20

30

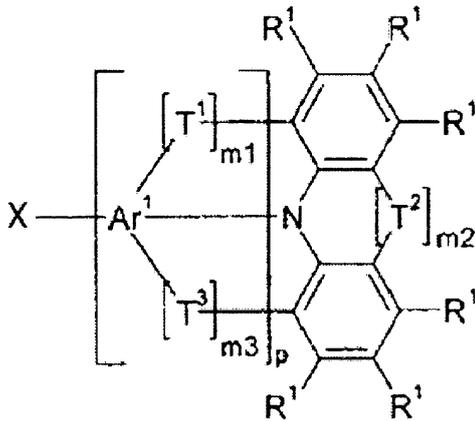
40

50

- 44)、式(I-45)、式(I-49)、式(I-50)、式(I-54)および式(I-55)で表される化合物を除く。)

【化6】

一般式(ii)



10

(一般式(ii)中、Xは一般式(2)で定義したとおりであり；

T¹、T²、T³は、単結合であり；

Ar¹は6個の芳香環原子を有する芳香族環系であり、これは1つ以上の基R¹によって置換されていてもよく；

R¹は、出現するごとに同一または異なり、H、D、F、Cl、Br、I、CHO、N(R³)₂、C(=O)R³、P(=O)(R³)₂、S(=O)R³、S(=O)₂R³、CR³=C(R³)₂、CN、NO₂、Si(R³)₃、B(OR³)₂、OSO₂R³、OH、1~40個のC原子を有する直鎖のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または3~40個のC原子を有する分岐もしくは環状のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または2~40個のC原子を有するアルケニル基もしくはアルキニル基(これらの各々は1つ以上の基R³によって置換されていてもよい)(ここで、1つ以上の隣接しないCH₂基は、R³C=CR³、C-C、Si(R³)₂、Ge(R³)₂、Sn(R³)₂、C=O、C=S、C=Se、C=NR³、P(=O)(R³)、SO、SO₂、NR³、O、SまたはCONR³によって置きかえられていてもよく、1つ以上のH原子は、D、F、Cl、Br、I、CN、またはNO₂によって置きかえられていてもよい)、または5~60個の芳香環原子を有する単環もしくは多環の芳香族環系もしくはヘテロ芳香族環系(これは各々の場合において1つ以上の非芳香族基R³によって置換されていてもよい)、または5~60個の芳香環原子を有するアリーロキシ基もしくはヘテロアリーロキシ基(これは1つ以上の非芳香族基R³によって置換されていてもよい)、またはこれらの系の組合せであり、ここで、2つ以上の基R¹は、互いに連結していてもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成していてもよく；

30

R³は、出現するごとに同一または異なり、H、D、F、Cl、Br、I、CHO、N(R⁴)₂、C(=O)R⁴、P(=O)(R⁴)₂、S(=O)R⁴、S(=O)₂R⁴、CR⁴=C(R⁴)₂、CN、NO₂、Si(R⁴)₃、B(OR⁴)₂、OSO₂R⁴、OH、1~40個のC原子を有する直鎖のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または3~40個のC原子を有する分岐もしくは環状のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または2~40個のC原子を有するアルケニル基もしくはアルキニル基(これらの各々は、1つ以上の基R⁴によって置換されていてもよい)(ここで、1つ以上の隣接しないCH₂基は、R⁴C=CR⁴、C-C、Si(R⁴)₂、Ge(R⁴)₂、Sn(R⁴)₂、C=O、C=S、C=Se、C=NR⁴、P(=O)(R⁴)、SO、SO₂、NR⁴、O、SまたはCONR⁴によって置きかえられていてもよく、1つ以上のH原子は、D、F、Cl、Br、I、CN、またはNO₂によって置

40

50

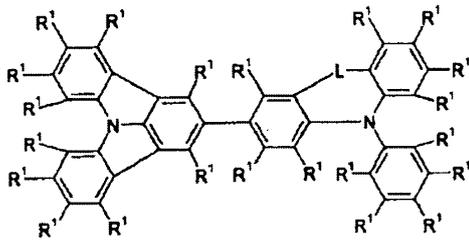
きかえられていてもよい)、または5~60個の芳香環原子を有する単環もしくは多環の芳香族環系もしくはヘテロ芳香族環系(これは各々の場合において1つ以上の非芳香族基 R^4 によって置換されていてもよい)、または5~60個の芳香環原子を有するアリールオキシ基もしくはヘテロアリールオキシ基(これは1つ以上の非芳香族基 R^4 によって置換されていてもよい)、またはこれらの系の組合せであり、ここで、2つ以上の基 R^3 は、互いに連結していてもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成していてもよく;

R^4 は、出現するごとに同一または異なり、H、D、Fまたは1~20個のC原子を有する脂肪族、芳香族および/または複素芳香族有機基(ここで、さらに、1つ以上のH原子は、DまたはFによって置きかえられていてもよい)であり;ここで2つ以上の同一または異なった置換基 R^4 は、また、互いに連結していてもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成していてもよく;

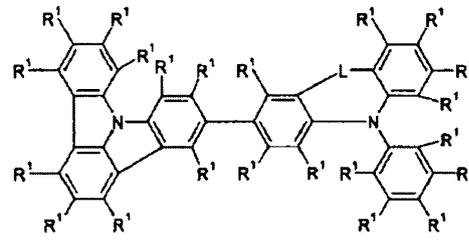
m_1 、 m_2 、 m_3 は、出現するごとに同一または異なり、0または1であり、ここで、 m_1 、 m_2 または $m_3 = 0$ のとき、それぞれ、基 R^1 は基 T^1 、 T^2 または T^3 の代わりに結合され;

pは1に等しい。)

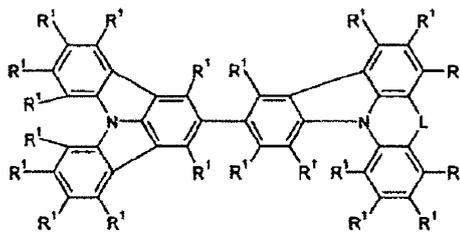
【化7】



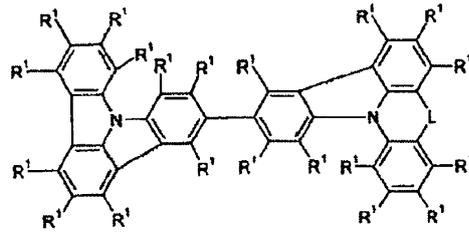
式 (I-29)



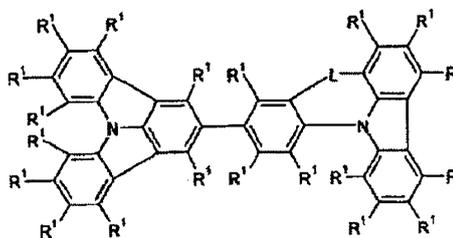
式 (I-30)



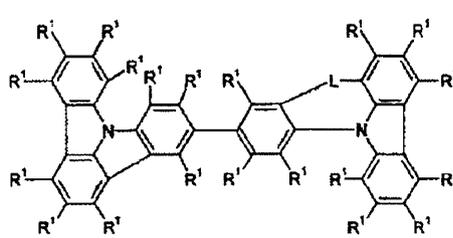
式 (I-44)



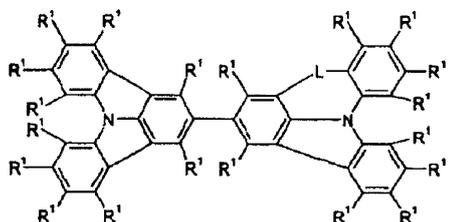
式 (I-45)



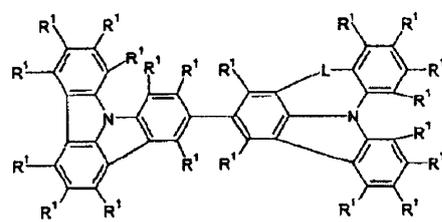
式 (I-49)



式 (I-50)



式 (I-54)



式 (I-55)

10

20

30

40

50

(式(I-29)、式(I-30)、式(I-44)、式(I-45)、式(I-49)、式(I-50)、式(I-54)および式(I-55)中、Lは、出現するごとに同一または異なり、 BR^2 、 $C(R^2)_2$ 、 $R^2C=CR^2$ 、 $Si(R^2)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=NR^2$ 、 O 、 S 、 SO 、 SO_2 、 PR^2 、 POR^2 および NR^2 から選択され；

R^1 は、一般式(ii)において定義されたとおりであり；

R^2 は、一般式(ii)における R^1 と同義である。))

【請求項10】

請求項1から9のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いたことを特徴とする表示装置。

【請求項11】

請求項1から9のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いたことを特徴とする照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、表示装置及び照明装置に関するものである。

【背景技術】

【0002】

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

【0003】

しかしながら、今後の実用化に向けた有機EL素子においては、更に低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。また、素子を高効率、低電圧化させる材料を志向した、含窒素複素環を有した化合物を材料に用いた有機EL素子の報告(例えば特許文献1~3)がなされているが、さらなる高効率化、低電圧駆動化が求められている。

【0004】

一方、特許文献4に、有機EL素子に1-アザピシクロ[3.3.0]オクタン部分構造を含む少なくとも4つの環が縮合した縮合複素環を有する化合物を用いた報告がなされており、有機EL素子に前記部分構造を含む化合物を用いることで高効率、低電圧駆動が可能になるとの記載がある。特許文献4は有機EL素子に前記縮合複素環が直接結合した化合物、もしくは(複素)芳香族単環で連結した化合物を用いた報告であるが、有機EL素子の発光効率および低電圧駆動性の更なる改善が依然課題として残っており、さらに発光寿命の長寿命化が重要な課題として挙げられる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2002-100476号公報

【特許文献2】特開2004-171808号公報

【特許文献3】特開2007-288035号公報

【特許文献4】特開2010-87496号公報

10

20

30

40

50

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、上記課題に鑑みなされたものであり、その目的は、高い発光効率および低電圧駆動性を示し、且つ発光寿命の長い有機EL素子、該有機EL素子を用いた照明装置、及び表示装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の上記目的は、以下の構成により達成される。

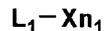
【0008】

1. 一対の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のうち少なくとも一層に下記一般式(1)で表される化合物を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

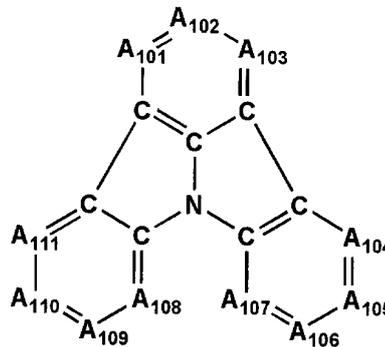
【0009】

【化1】

一般式(1)



一般式(2)

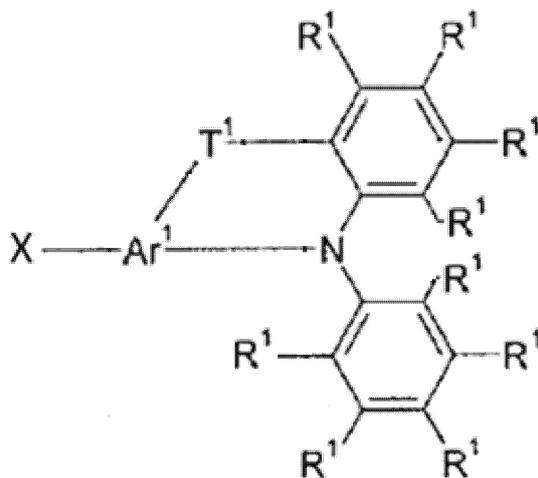


【0010】

(一般式(1)中、Xは一般式(2)を表し、 n_1 は1~4の整数を表す。 n_1 が2以上の場合、それぞれのXは同一であっても異なっていても良い。また、一般式(2)中、 $A_{101} \sim A_{111}$ はNまたはC-Rを表す。Rはそれぞれ独立に水素原子、置換基または L_1 との結合手を表す。 $n_1 = 2 \sim 4$ の場合、 L_1 は芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表す。 $n_1 = 1$ の場合、 L_1 は、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ピレン環、フェナンスレン環、フェナレン環、トリフェニレン環、コロネン環、キノリン環、ベンゾポロール環、イソインドール環、インドール環、ベンゾフラン環、ホスフィノインドール環、ホスフィノインドールオキシド環、ベンゾシロール環、ベンゾチオフエン環、ベンゾジポロール環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ベンゾジシロール環、ジベンゾポロール環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ベンゾホスフィノインドール環、ジベンゾシロール環およびジベンゾチオフエン環から選択される、芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表すが、当該芳香族縮合環または当該複素芳香族縮合環が置換基を有する場合、置換基同士が連結してさらに環を形成することはない。また、 L_1 は一般式(2)で表される骨格構造であることではない。 L_1 とXとは、 L_1 を構成する炭素原子を介して結合している。但し、下記一般式(i)で表される化合物は除く。)

【化 A】

一般式 (i)



10

(一般式 (i) 中、X は一般式 (2) を表し、Ar¹ は 6 員環の芳香族環であり、1 つ以上の基 R¹ によって置換されていてもよく、T¹ は単結合、R¹ は H または置換基を表す。)

2. 前記一般式 (1) 中、n₁ が 2 ~ 4 の整数を表す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。

20

3. 前記一般式 (1) 中、L₁ が複素芳香族縮合環であることを特徴とする前記 1 または 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

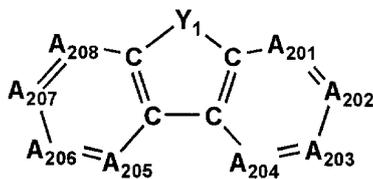
【0011】

4. 前記一般式 (1) 中、L₁ が一般式 (3) で表され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。

【0012】

【化 2】

一般式(3)



30

【0013】

(一般式 (3) 中、A₂₀₁ ~ A₂₀₈ は N または C - R を表し、Y₁ は O、S、NR'、BR'、SiR'R''、PR' または P(Z₁)R' を表す。R、R' および R'' はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、Z₁ は O または S を表す。)

40

5. 前記一般式 (3) 中、Y₁ が O または S で表され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。

6. 前記一般式 (3) 中、R、R' および R'' が水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族複素環、複素環基、アルコキシ基で表され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。

【0014】

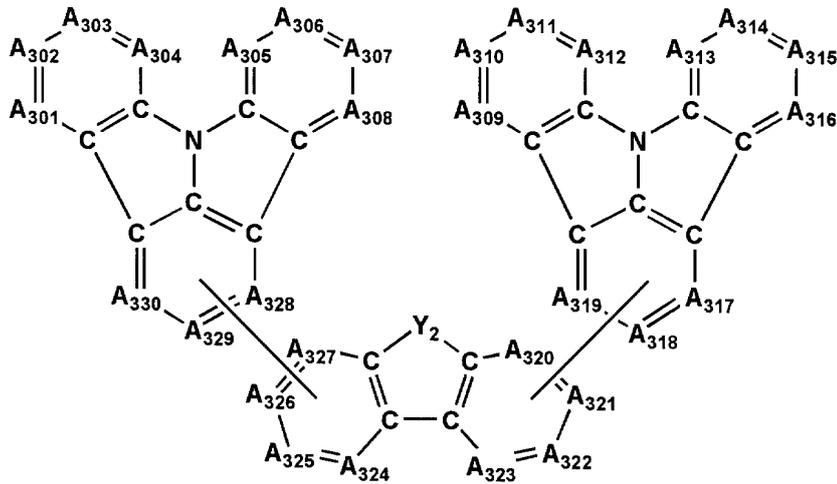
7. 前記一般式 (1) で表される化合物が、一般式 (4) で表される化合物であることを特徴とする前記 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【 0 0 1 5 】

【 化 3 】

一般式(4)



10

【 0 0 1 6 】

(一般式(4)中、 $A_{301} \sim A_{330}$ はNまたは、C-Rを表し、 Y_2 はO、S、N、 R' 、 BR' 、 SiR'' 、 PR' または $P(Z_2)R'$ を表す。 R 、 R' および R'' はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、 Z_2 はOまたはSを表す。)

8. 前記一般式(4)で表される化合物中、 Y_2 が、OまたはSで表されることを特徴とする前記7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

【 0 0 1 7 】

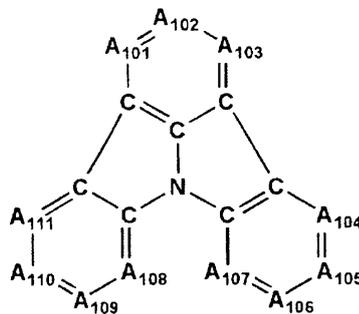
9. 一対の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のうち少なくとも一層に下記一般式(1)で表される化合物を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 化 B 】

一般式(1)



一般式(2)



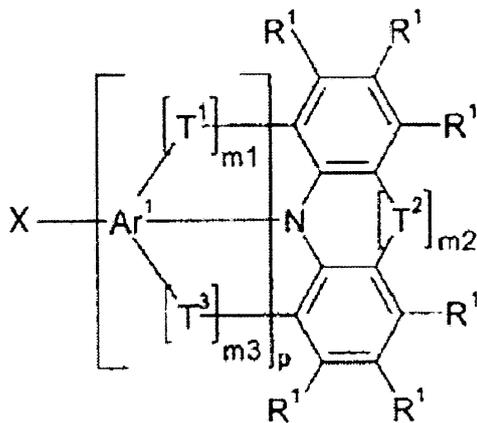
30

(一般式(1)中、 X は一般式(2)を表し、 n_1 は1~4の整数を表す。 n_1 が2以上の場合、それぞれの X は同一であっても異なっても良い。また、一般式(2)中、 $A_{101} \sim A_{111}$ はNまたはC-Rを表す。 R はそれぞれ独立に水素原子、置換基または L_1 との結合手を表す。 L_1 は芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表し、一般式(2)で表される骨格構造であることはない。 L_1 と X とは、 L_1 を構成する炭素原子を介して結合している。但し、下記一般式(ii)、式(I-29)、式(I-30)、式(I-44)、式(I-45)、式(I-49)、式(I-50)、式(I-54)および式(I-55)で表される化合物を除く。)

40

【化C】

一般式 (ii)



10

(一般式 (ii) 中、X は一般式 (2) で定義したとおりであり；

T^1 、 T^2 、 T^3 は、単結合であり；

Ar^1 は 6 個の芳香環原子を有する芳香族環系であり、これは 1 つ以上の基 R^1 によって置換されているもよく；

R^1 は、出現するごとに同一または異なり、H、D、F、Cl、Br、I、CHO、N
 $(R^3)_2$ 、 $C(=O)R^3$ 、 $P(=O)(R^3)_2$ 、 $S(=O)R^3$ 、 $S(=O)_2R^3$ 、 $CR^3=C(R^3)_2$ 、CN、 NO_2 、 $Si(R^3)_3$ 、 $B(OR^3)_2$ 、 OSO_2R^3 、OH、1 ~ 40 個の C 原子を有する直鎖のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または 3 ~ 40 個の C 原子を有する分岐もしくは環状のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または 2 ~ 40 個の C 原子を有するアルケニル基もしくはアルキニル基（これらの各々は 1 以上の基 R^3 によって置換されているもよい）（ここで、1 つ以上の隣接しない CH_2 基は、 $R^3C=CR^3$ 、 $C-C$ 、 $Si(R^3)_2$ 、 $Ge(R^3)_2$ 、 $Sn(R^3)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^3$ 、 $P(=O)(R^3)$ 、 SO 、 SO_2 、 NR^3 、O、S または $CONR^3$ によって置きかえられているもよく、1 つ以上の H 原子は、D、F、Cl、Br、I、CN、または NO_2 によって置きかえられているもよい）、または 5 ~ 60 個の芳香環原子を有する単環もしくは多環の芳香族環系もしくはヘテロ芳香族環系（これは各々の場合において 1 つ以上の非芳香族基 R^3 によって置換されているもよい）、または 5 ~ 60 個の芳香環原子を有するアリーロキシ基もしくはヘテロアリーロキシ基（これは 1 つ以上の非芳香族基 R^3 によって置換されているもよい）、またはこれらの系の組合せであり、ここで、2 つ以上の基 R^1 は、互いに連結しているもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成しているもよく；

20

30

R^3 は、出現するごとに同一または異なり、H、D、F、Cl、Br、I、CHO、N
 $(R^4)_2$ 、 $C(=O)R^4$ 、 $P(=O)(R^4)_2$ 、 $S(=O)R^4$ 、 $S(=O)_2R^4$ 、 $CR^4=C(R^4)_2$ 、CN、 NO_2 、 $Si(R^4)_3$ 、 $B(OR^4)_2$ 、 OSO_2R^4 、OH、1 ~ 40 個の C 原子を有する直鎖のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または 3 ~ 40 個の C 原子を有する分岐もしくは環状のアルキル基、アルコキシ基もしくはチオアルキル基、または 2 ~ 40 個の C 原子を有するアルケニル基もしくはアルキニル基（これらの各々は、1 つ以上の基 R^4 によって置換されているもよい）（ここで、1 つ以上の隣接しない CH_2 基は、 $R^4C=CR^4$ 、 $C-C$ 、 $Si(R^4)_2$ 、 $Ge(R^4)_2$ 、 $Sn(R^4)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^4$ 、 $P(=O)(R^4)$ 、 SO 、 SO_2 、 NR^4 、O、S または $CONR^4$ によって置きかえられているもよく、1 つ以上の H 原子は、D、F、Cl、Br、I、CN、または NO_2 によって置きかえられているもよい）、または 5 ~ 60 個の芳香環原子を有する単環もしくは多環の芳香族環系もしくはヘテロ芳香族環系（これは各々の場合において 1 つ以上の非芳香族基

40

50

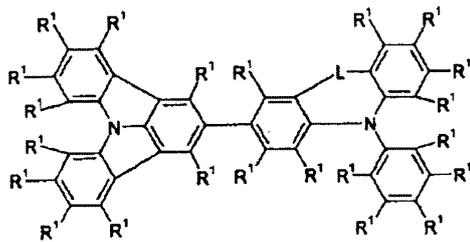
R⁴によって置換されていてもよい)、または5~60個の芳香環原子を有するアリールオキシ基もしくはヘテロアリールオキシ基(これは1つ以上の非芳香族基R⁴によって置換されていてもよい)、またはこれらの系の組合せであり、ここで、2つ以上の基R³は、互いに連結していてもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成していてもよく;

R⁴は、出現するごとに同一または異なり、H、D、Fまたは1~20個のC原子を有する脂肪族、芳香族および/または複素芳香族有機基(ここで、さらに、1つ以上のH原子は、DまたはFによって置きかえられていてもよい)であり;ここで2つ以上の同一または異なった置換基R⁴は、また、互いに連結していてもよく、単環または多環の脂肪族環系または芳香族環系を形成していてもよく;

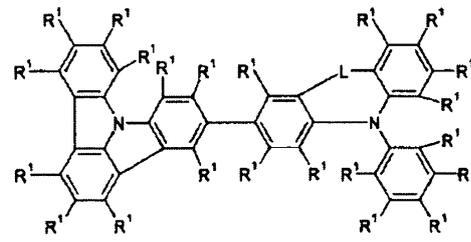
m₁、m₂、m₃は、出現するごとに同一または異なり、0または1であり、ここで、m₁、m₂またはm₃ = 0のとき、それぞれ、基R¹は基T¹、T²またはT³の代わりに結合され;

pは1に等しい。)

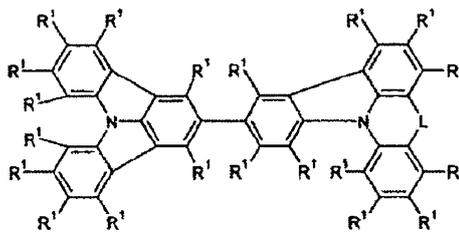
【化D】



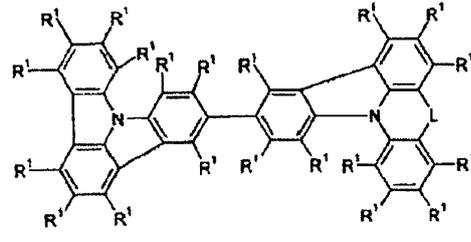
式 (I-29)



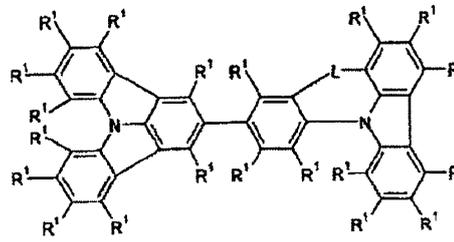
式 (I-30)



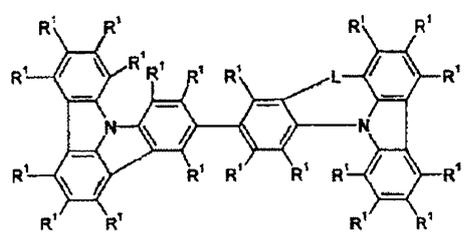
式 (I-44)



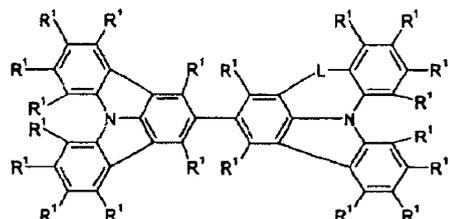
式 (I-45)



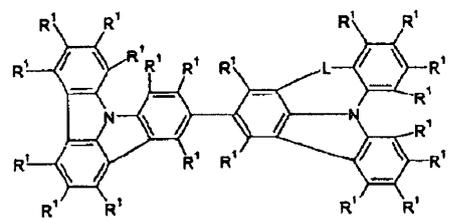
式 (I-49)



式 (I-50)



式 (I-54)



式 (I-55)

)、式(I-50)、式(I-54)および式(I-55)中、Lは、出現するごとに同一または異なり、 BR^2 、 $C(R^2)_2$ 、 $R^2C=CR^2$ 、 $Si(R^2)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=NR^2$ 、 O 、 S 、 SO 、 SO_2 、 PR^2 、 POR^2 および NR^2 から選択され；

R^1 は、一般式(ii)において定義されたとおりであり；

R^2 は、一般式(ii)における R^1 と同義である。)

10. 前記1から9のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いたことを特徴とする表示装置。

【0018】

11. 前記1から9のいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いたことを特徴とする照明装置。

10

【発明の効果】

【0019】

本発明により、高い発光効率および低電圧駆動性を示し、且つ発光寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子、該有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた照明装置、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】

【0020】

【図1】本発明の有機EL素子を用いた照明装置の一例を示す概略図である。

【図2】本発明の有機EL素子を用いた照明装置の一例を示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

20

【0021】

以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。

【0022】

本発明者は、上記課題に鑑み鋭意検討を行った結果、一对の電極間に発光層を含む少なくとも一層の有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層のうち少なくとも一層に一般式(1)で表される化合物を有する有機EL素子により、発光効率の高効率化、低電圧駆動化および発光寿命の長寿命化が達成されることを見出し、本発明に至った次第である。本発明の有機EL素子は、異なった形の共役系縮環構造を複数種有しているため、分子の性質が電子輸送性や正孔輸送性の一方だけに偏らず、電子・正孔両方の安定性に優れている。さらに、一般式(1)で表される化合物は一般式(2)で表される高度な縮合複素環に芳香族縮合環を L_1 として導入しているため、分子全体が適度なねじれ角を有している。このため発光層におけるホストとドーパントの相溶性が向上するなど他材料との相性が良く、エネルギー移動やキャリア移動がスムーズになることで、有機EL素子の性能が飛躍的に向上したと推測している。

30

【0023】

本発明の有機EL素子は、陽極と陰極により挟まれた少なくとも一層の発光層を有する有機EL素子であり、前記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする。

【0024】

一般式(1)中、Xは一般式(2)を表す。 L_1 は芳香族縮合環を表し、一般式(2)で表される骨格構造であることはない。また、前記一般式(2)においてRは水素原子、置換基または L_1 との結合手を表す。

40

【0025】

Rが表す置換基としては、下記置換基群として挙げたものが適用できる。

【0026】

置換基群：シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニ

50

ル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジ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(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、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)等が挙げられ、より好ましくはアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*t*-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)、アリール基(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(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジル基、ピリミジル基、ピラジル基、トリアジル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、キナゾリル基、フタラジル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリル基、モルホリル基、オキサゾリル基等)、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

10

20

30

40

50

オキシ基、ドデシルオキシ基等)等が挙げられる。

【0027】

これらの基は更に置換基を有していてもよく、更なる置換基としては、以上に説明した置換基群から選択される基を挙げることができる。

【0028】

また、一般式(2)において、 $A_{101} \sim A_{111}$ のうち窒素原子の数は0~4個が好ましく、0~2個がより好ましい。

【0029】

一般式(1)において n_1 は1~4の整数を表し、好ましくは1~3であり、より好ましくは1~2である。 n_1 が2以上の場合、それぞれのXは同一であっても異なっても良い。

10

【0030】

一般式(1)において L_1 は芳香族縮合環または複素芳香族縮合環を表し、一般式(2)で表される骨格構造であることはない。 L_1 としては以下のものが適用できる。芳香族縮合環(例えば、ナフタレン環、アントラセン環、テトラセン環、ピレン環、フェナンスレン環、フェナレン環、トリフェニレン環、コロネン環、キノリン環、ベンゾポロール環、イソインドール環、インドール環、ベンゾフラン環、ホスフィノインドール環、ホスフィノインドールオキシド環、ベンゾシロール環、ベンゾチオフエン環、ベンゾジポロール環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ベンゾジシロール環、ジベンゾポロール環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ベンソホスフィノインドール環、ジベンゾシロール環、ジベンゾチオフエン環など)が挙げられ、より好ましくは、複素芳香族縮合環(例えば、キノリン環、ベンゾポロール環、イソインドール環、インドール環、ベンゾフラン環、ホスフィノインドール環、ホスフィノインドールオキシド環、ベンゾシロール環、ベンゾチオフエン環、ベンゾジポロール環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ベンゾジシロール環、ジベンゾポロール環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ベンソホスフィノインドール環、ベンゾホスフィノインドールオキシド環、ジベンゾシロール環、ジベンゾチオフエン環等)が挙げられ、特に好ましくは、ジベンゾポロール環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環、ベンソホスフィノインドール環、ベンゾホスフィノインドールオキシド環、ジベンゾシロール環、ジベンゾチオフエン環が挙げられ、最も好ましくはジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環が挙げられる。これらの環はさらに置換されていても良く、さらなる置換基としては、前に説明した置換基群から選択される基を挙げることができる。また好ましい範囲も同様である。

20

30

【0031】

前記一般式(1)中、 L_1 が一般式(3)で表されることが好ましい。

【0032】

一般式(3)において $A_{201} \sim A_{208}$ はNまたはC-Rを表し、 Y_1 はO、S、N、 R' 、 BR' 、 $SiR'R''$ 、 PR' または $P(Z_1)R'$ を表す。 R 、 R' および R'' はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、置換基は前記置換基群から選択されるのが好ましい。 Z_1 はOまたはSを表す。また、一般式(3)において、 $A_{201} \sim A_{208}$ のうち窒素原子の数は0~4個が好ましく、0~2個がより好ましい。

40

【0033】

好ましくは、一般式(3)中、 R 、 R' および R'' が水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族複素環、複素環基、アルコキシ基で表されることである。

【0034】

前記一般式(1)で表される化合物が、一般式(4)で表されることが好ましい。

【0035】

一般式(4)中、 $A_{301} \sim A_{330}$ はNまたは、C-Rを表し、 Y_2 はO、S、N、 R' 、 BR' 、 $SiR'R''$ 、 PR' または $P(Z_2)R'$ を表す。 R 、 R' および R'' はそれぞれ独立に水素原子、置換基または結合手を表し、 Z_2 はOまたはSを表す。Rで表

50

される置換基としては前記置換基群と同様の置換基が挙げられる。Rとしてアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族複素環、複素環基、アルコキシ基、水素原子であることがより好ましく、Rが水素原子であることが特に好ましい。R'およびR''で表される置換基としては前記置換基群と同様の置換基が挙げられる。R'およびR''で表される置換基としてアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族複素環、複素環基、アルコキシ基であることがより好ましく、アリール基、芳香族複素環、複素環であることが特に好ましい。また、Y₂としてより好ましくは、OおよびSが挙げられる。また、一般式(4)において、A_{3 0 1} ~ A_{3 3 0}のうち窒素原子の数は0 ~ 4個が好ましく、0 ~ 2個がより好ましい。

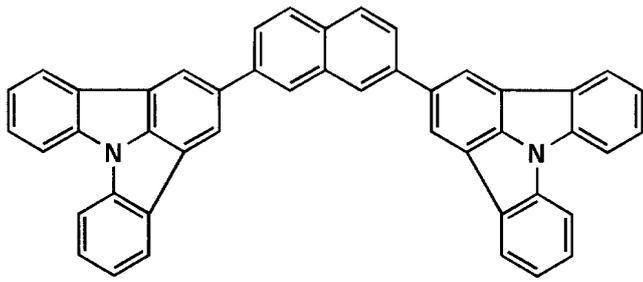
【0036】

以下に一般式(1) ~ (4)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0037】

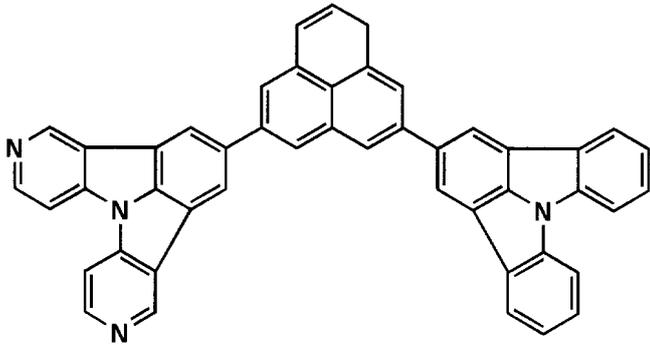
【化4】

1

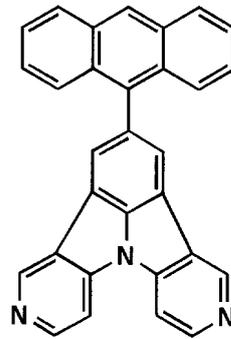


10

2

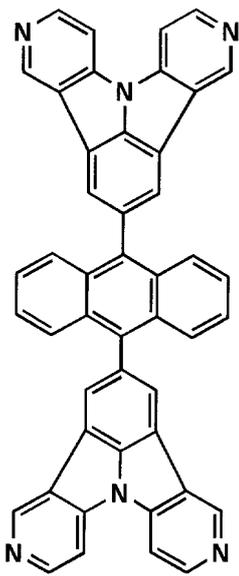


3

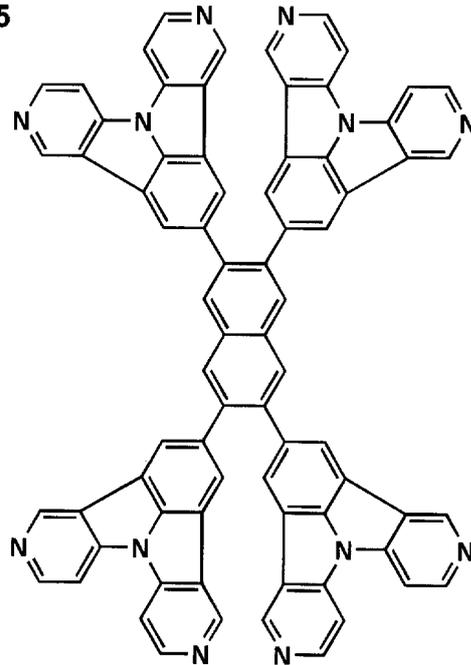


20

4



5

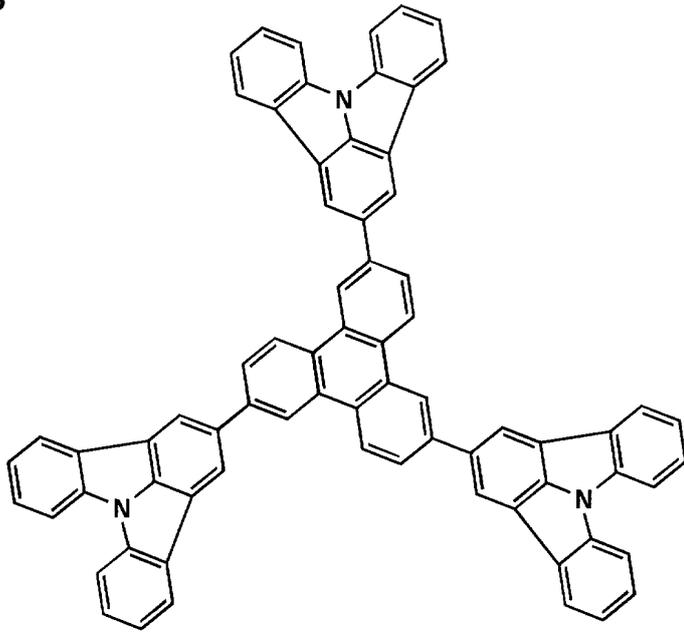


30

40

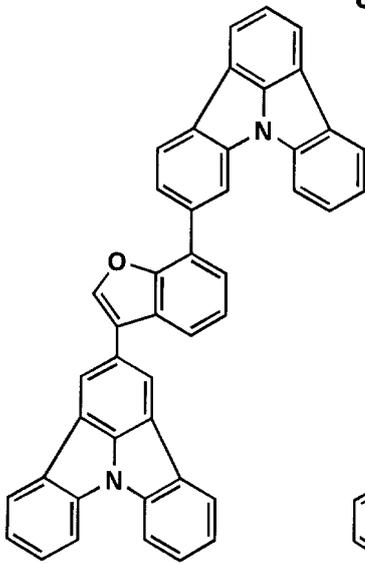
【化5】

6

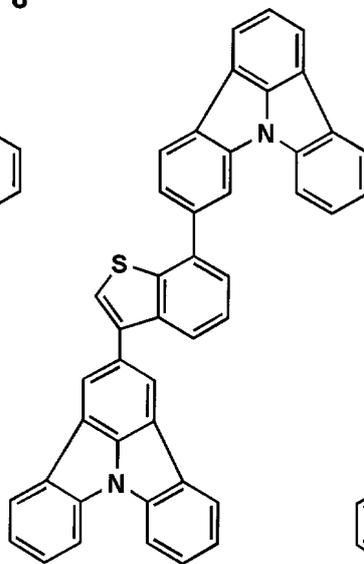


10

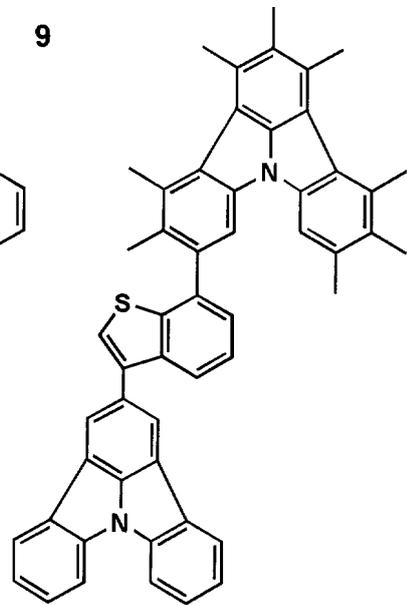
7



8



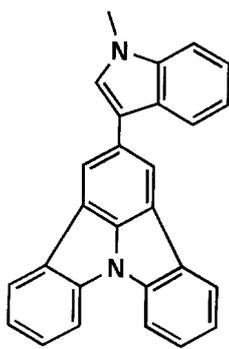
9



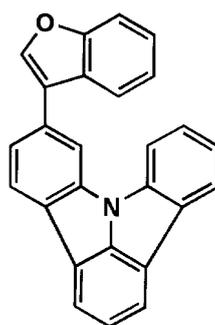
20

30

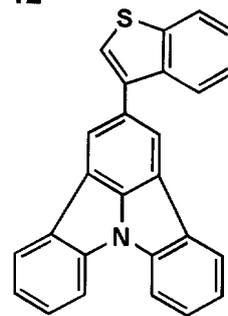
10



11



12

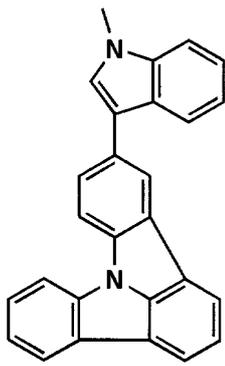


40

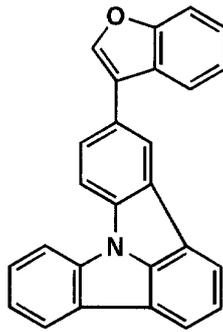
【0039】

【化6】

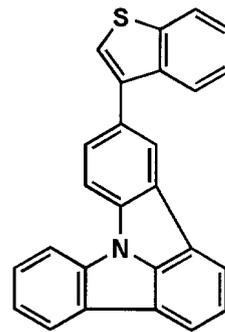
13



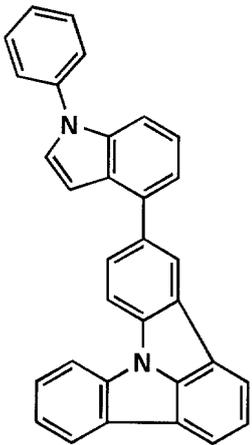
14



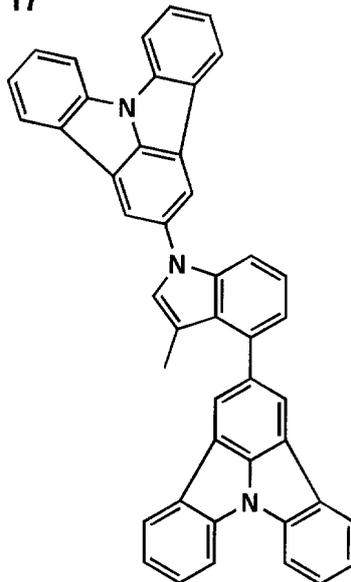
15



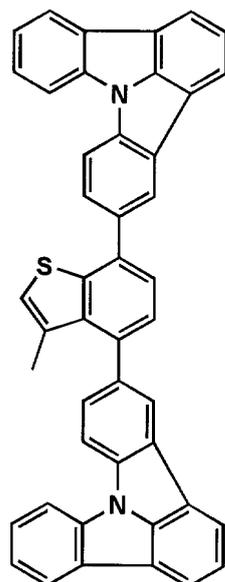
16



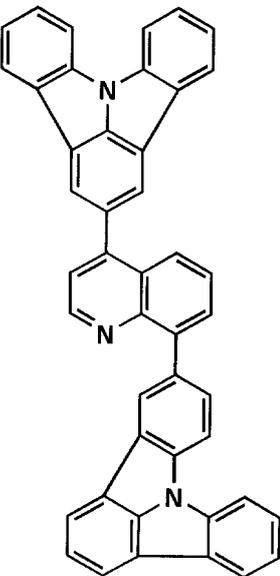
17



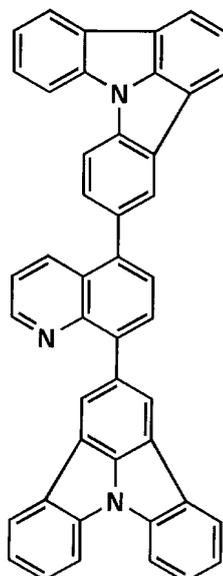
18



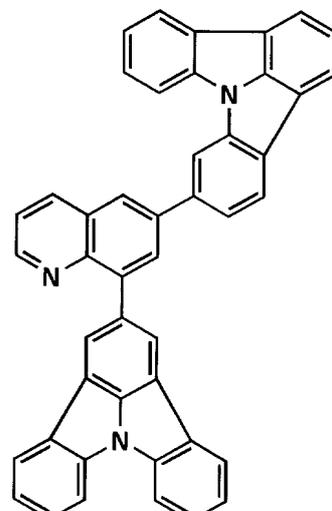
19



20



21



10

20

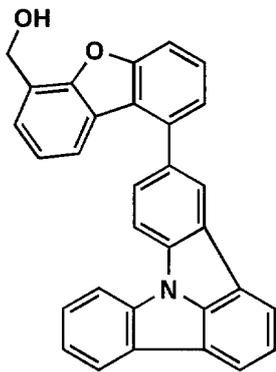
30

40

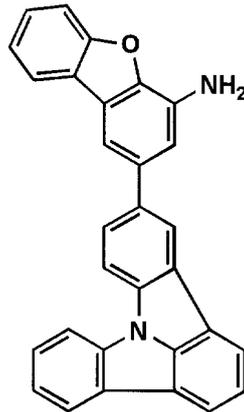
【0040】

【化7】

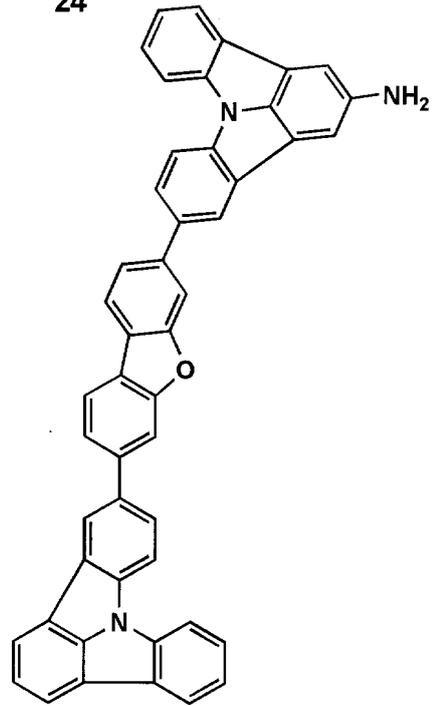
22



23

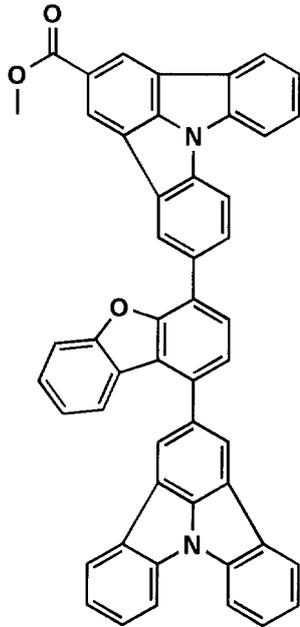


24



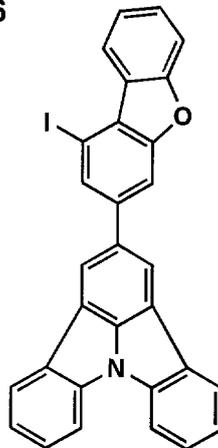
10

25

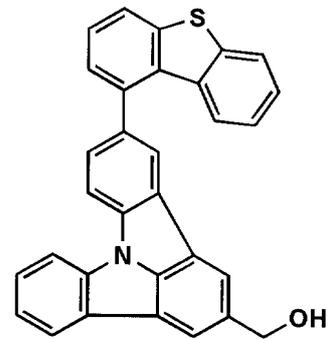


20

26

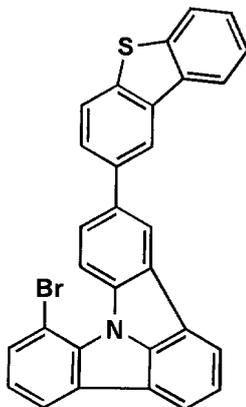


27

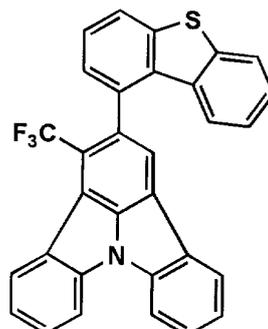


30

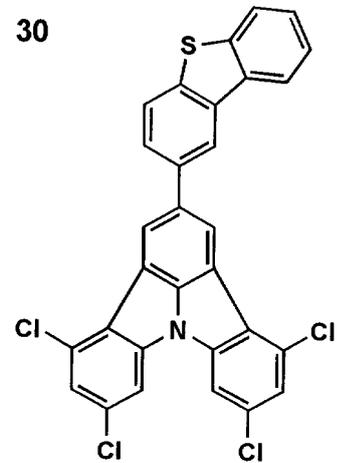
28



29



30

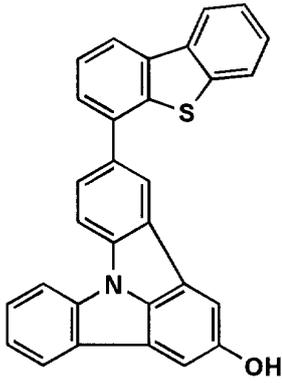


40

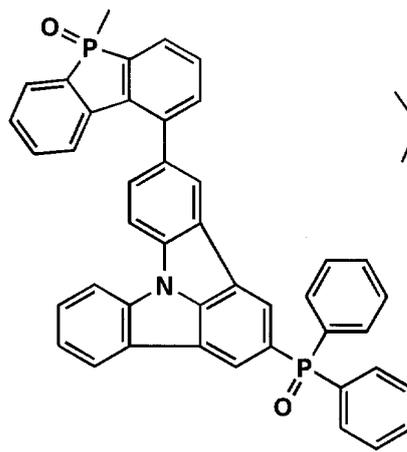
【0041】

【化 8】

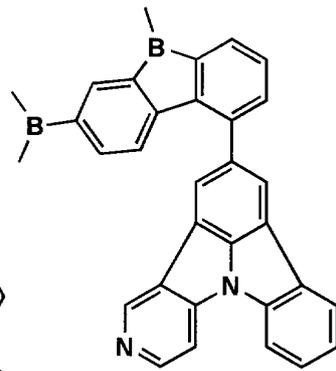
31



32

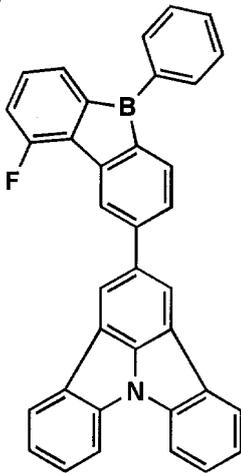


33

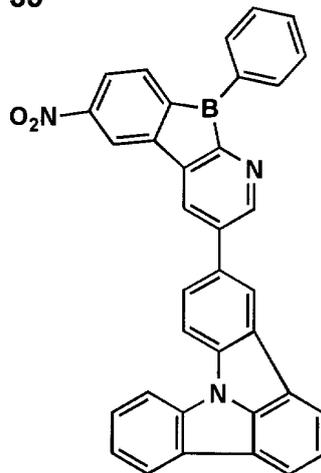


10

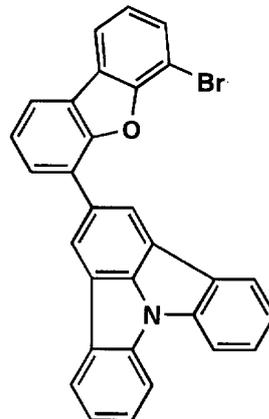
34



35

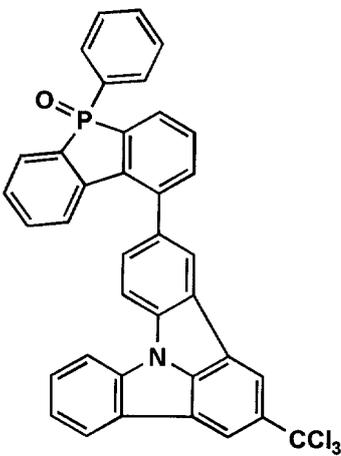


36

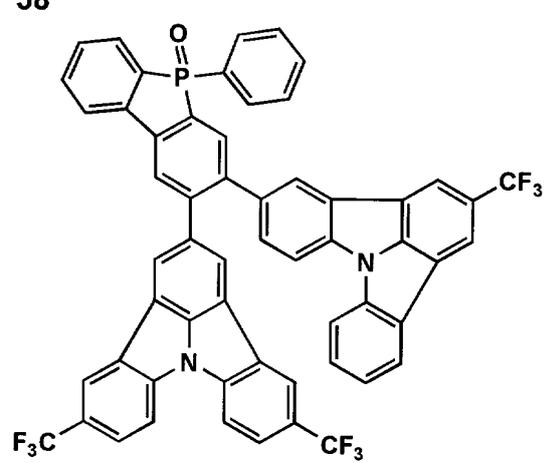


20

37



38

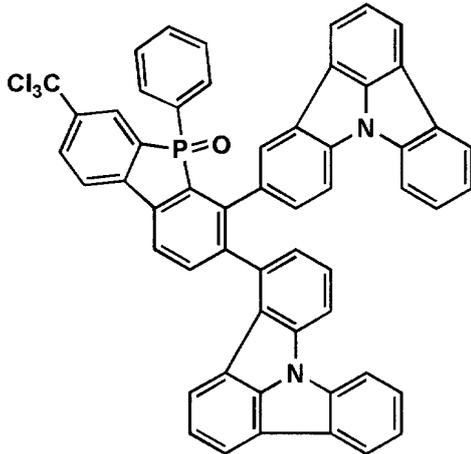


40

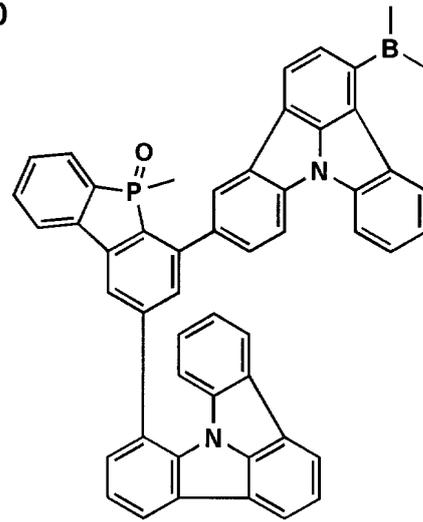
【 0 0 4 2 】

【化9】

39

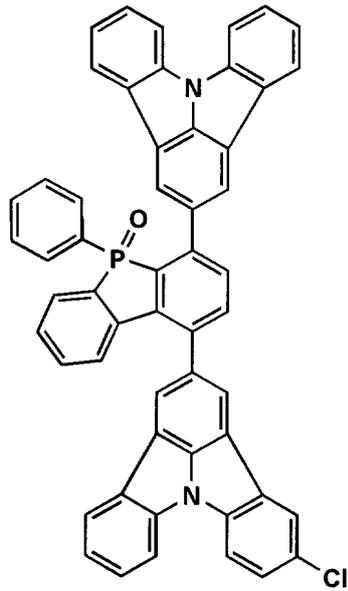


40

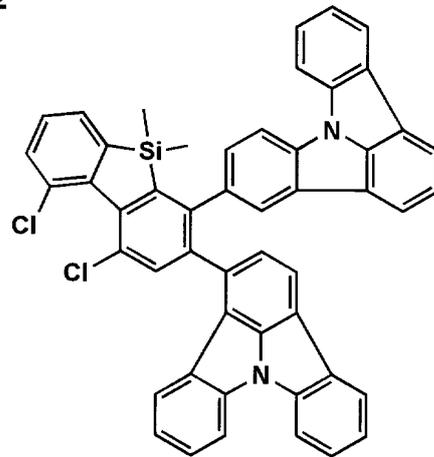


10

41

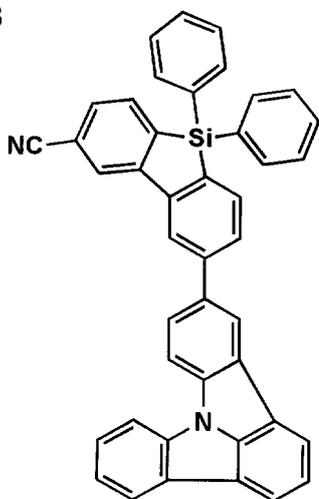


42

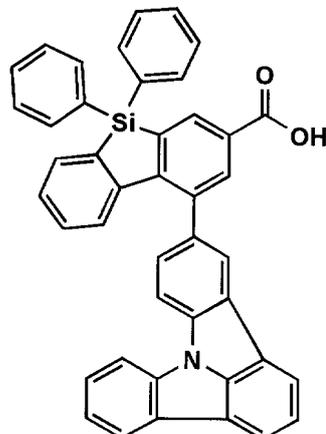


20

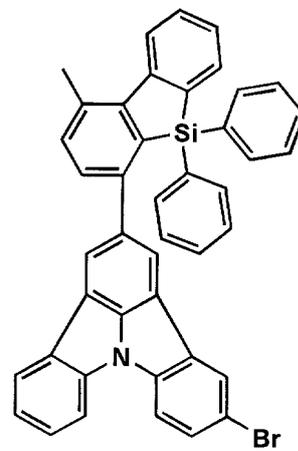
43



44



45



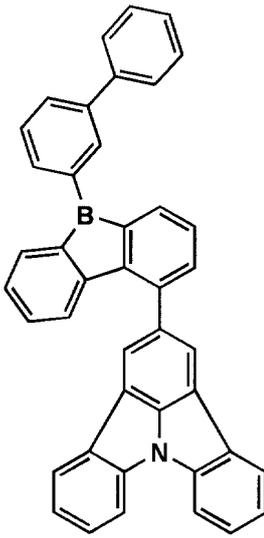
30

40

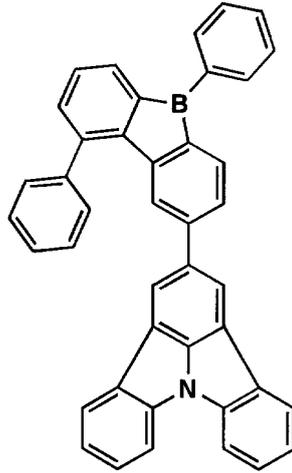
【0043】

【化 1 0】

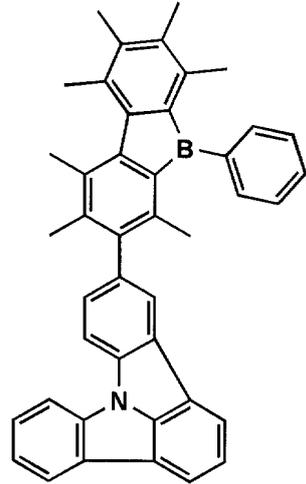
46



47

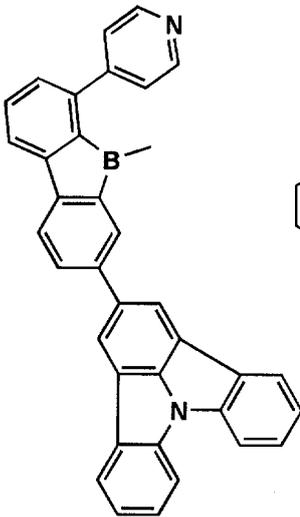


48

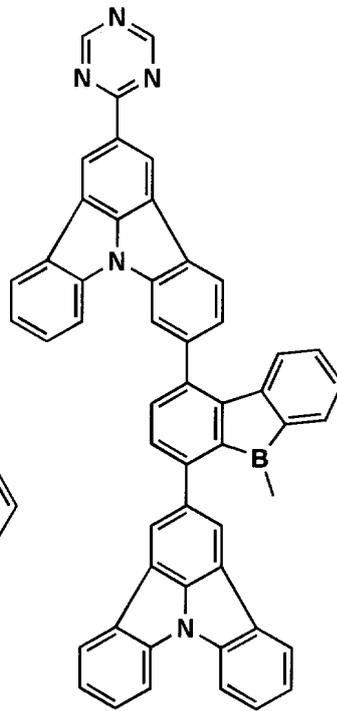


10

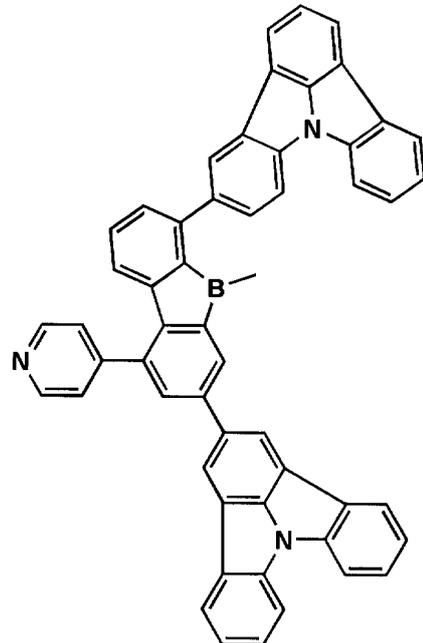
49



50



51



20

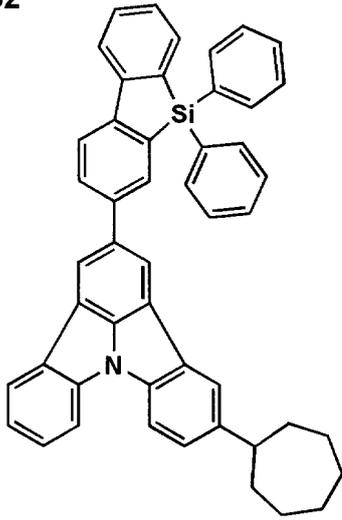
30

40

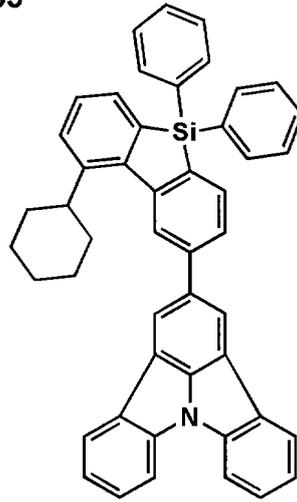
【 0 0 4 4 】

【化 1 1】

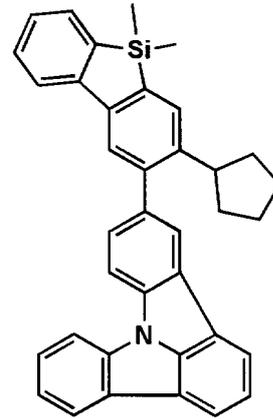
52



53

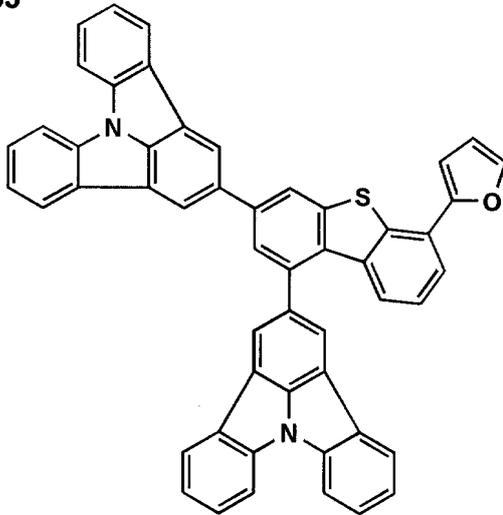


54

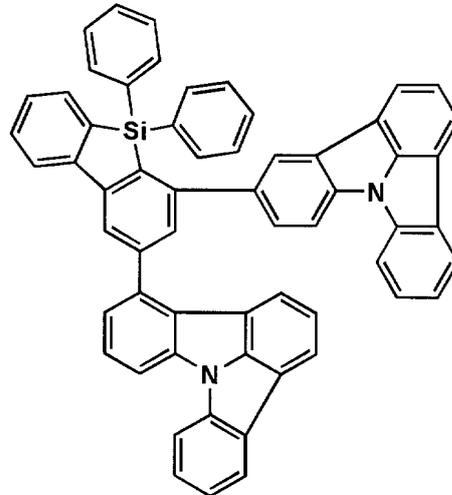


10

55



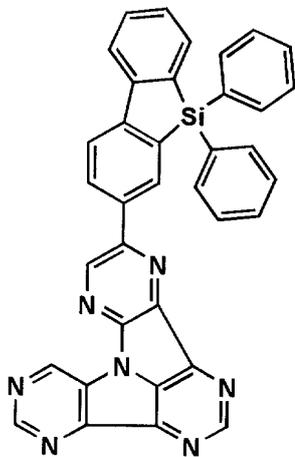
56



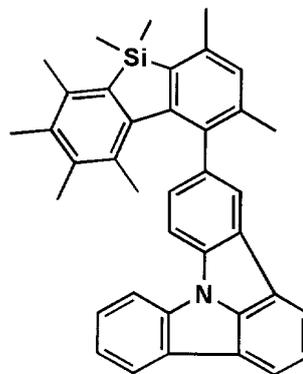
20

30

57



58

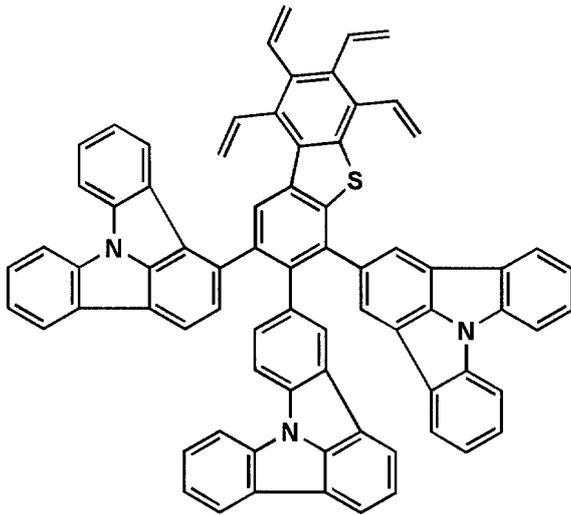


40

【 0 0 4 5 】

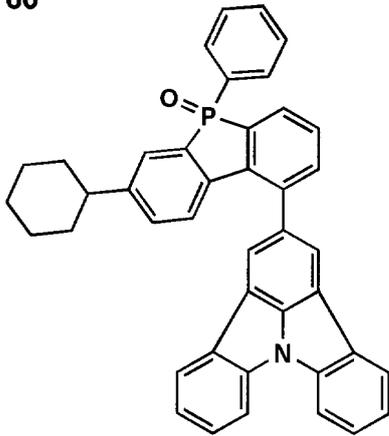
【化 1 2】

59

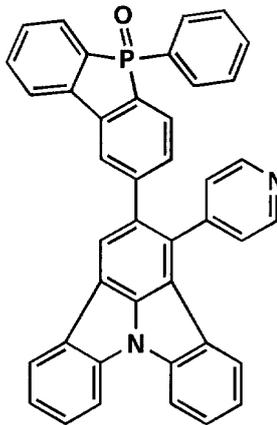


10

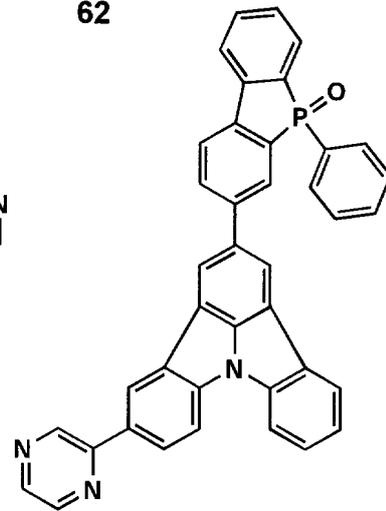
60



61



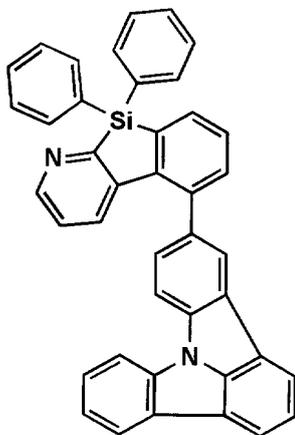
62



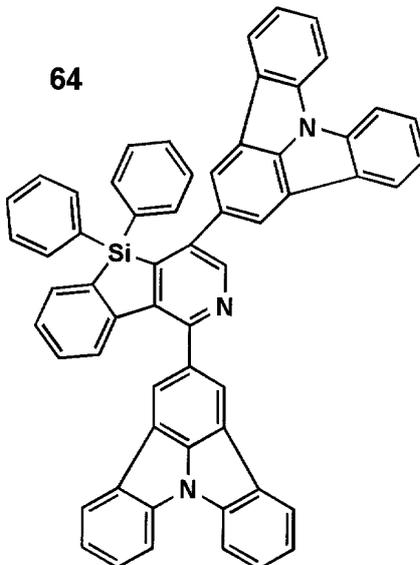
20

30

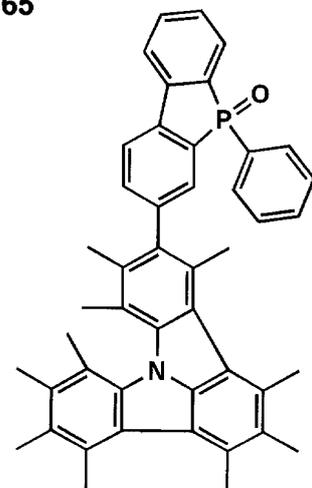
63



64



65

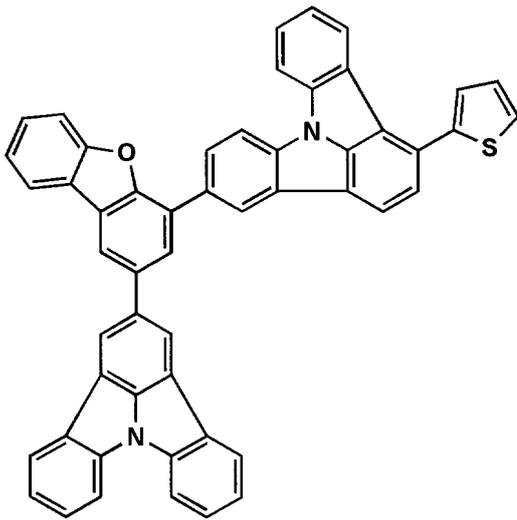


40

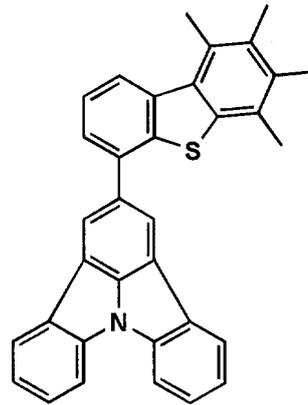
【 0 0 4 6 】

【化 1 3】

66

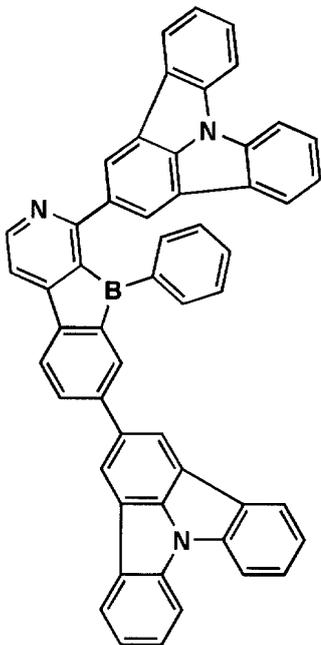


67

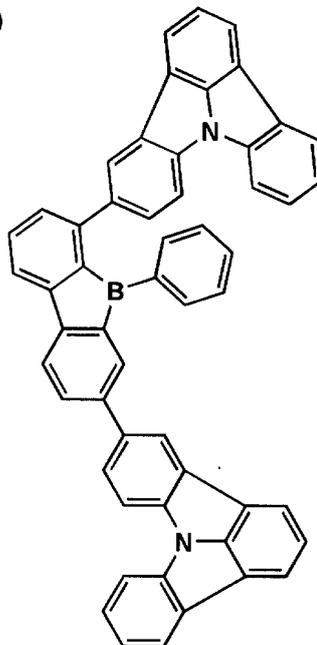


10

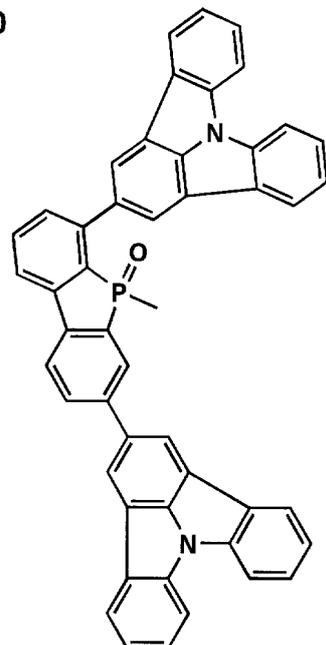
68



69



70



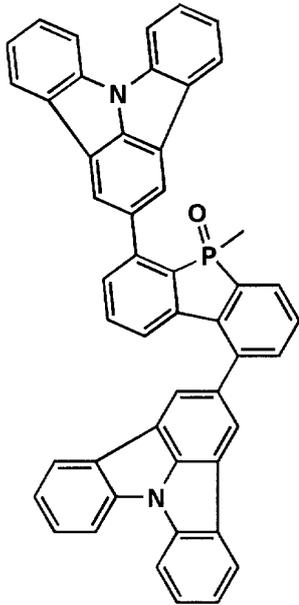
20

30

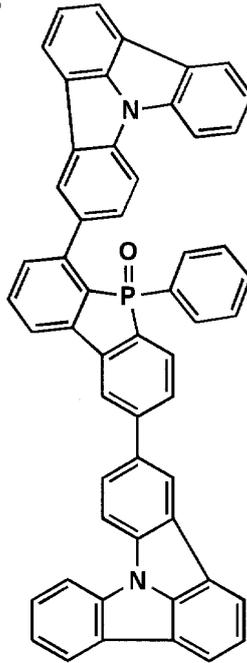
【 0 0 4 7】

【化 1 4】

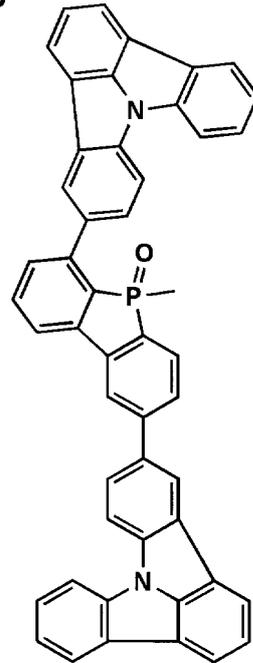
71



72



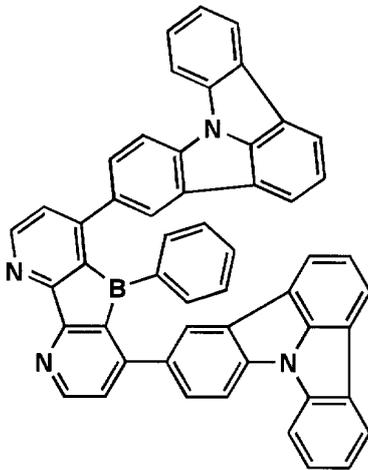
73



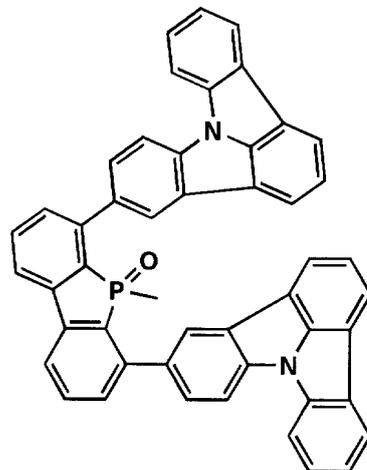
10

20

74



75

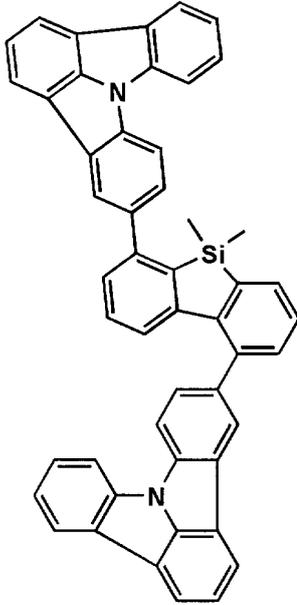


30

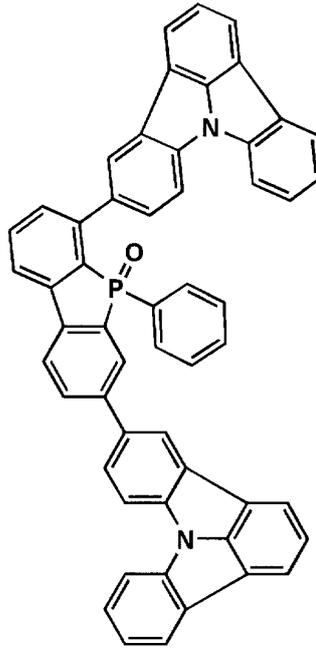
【 0 0 4 8 】

【化 1 5】

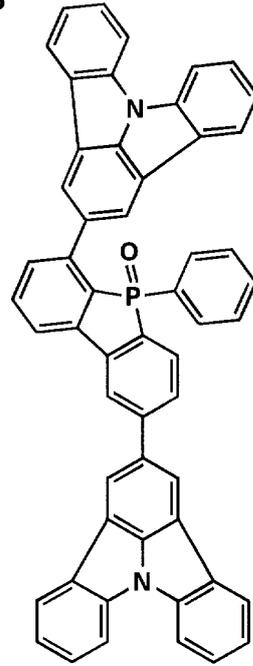
76



77



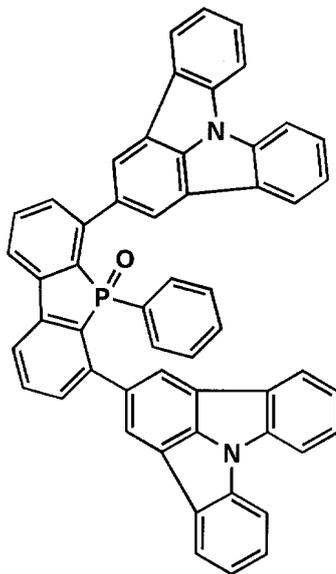
78



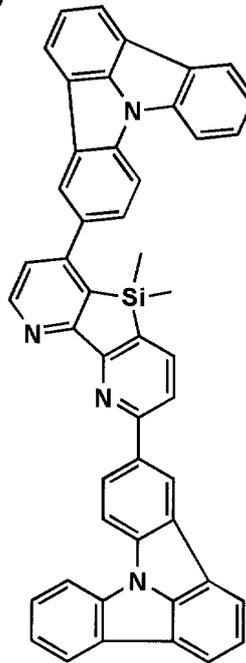
10

20

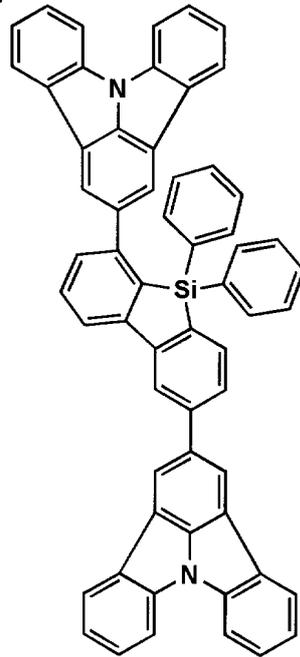
79



80



81



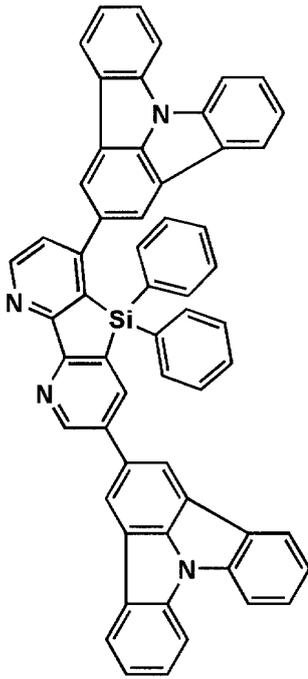
30

40

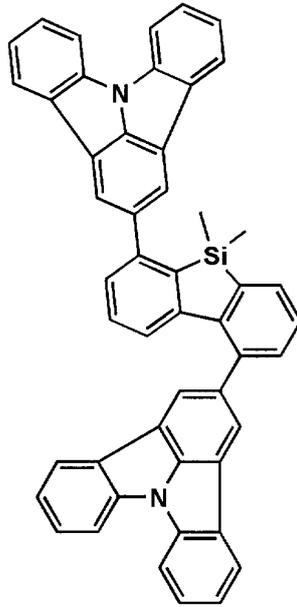
【 0 0 4 9 】

【化 1 6】

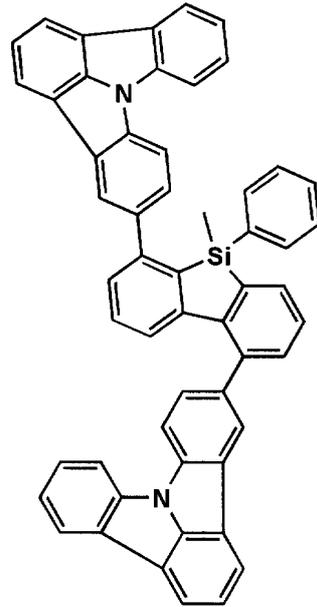
82



83



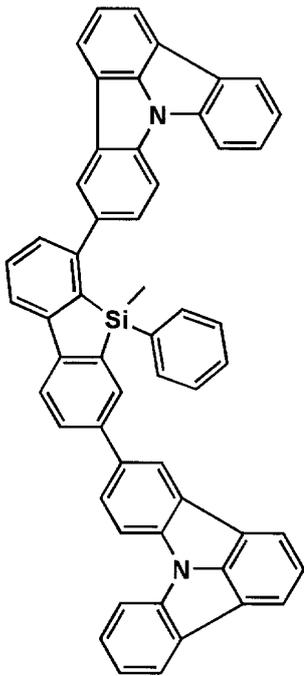
84



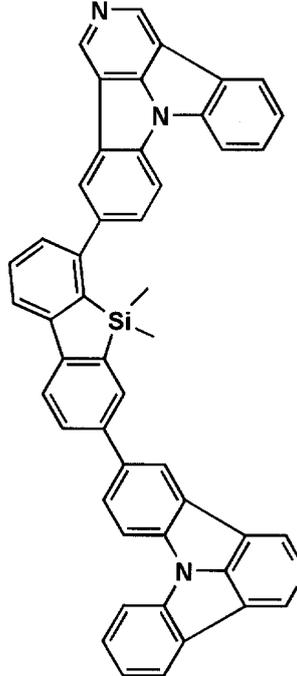
10

20

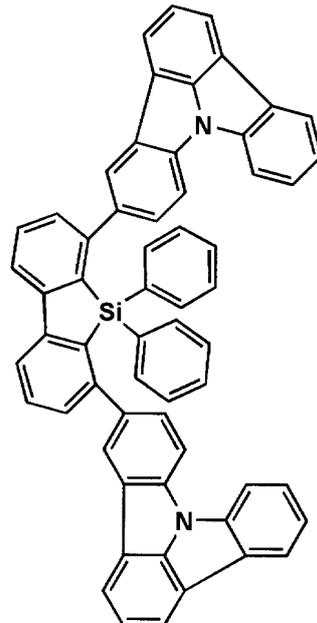
85



86



87



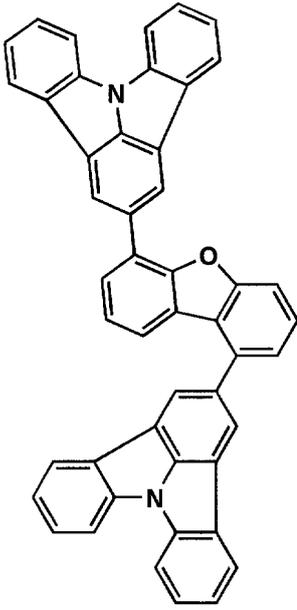
30

40

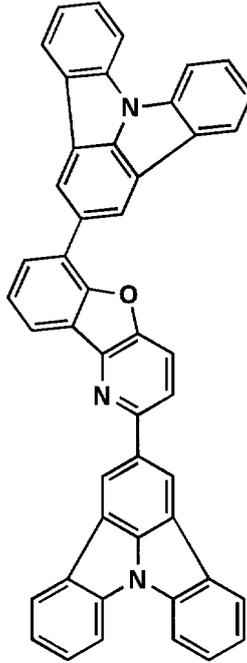
【 0 0 5 0 】

【化 17】

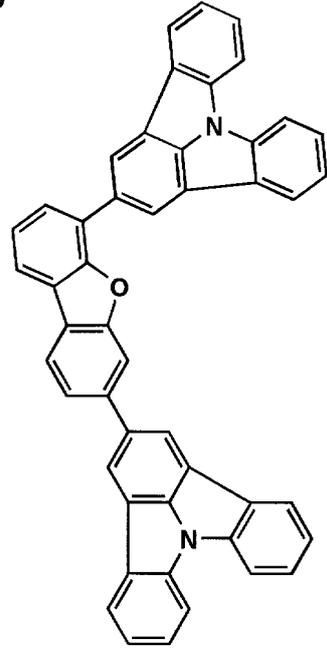
88



89



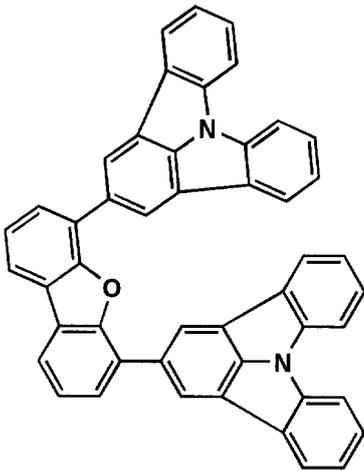
90



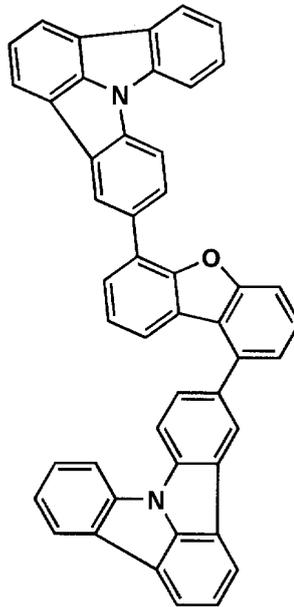
10

20

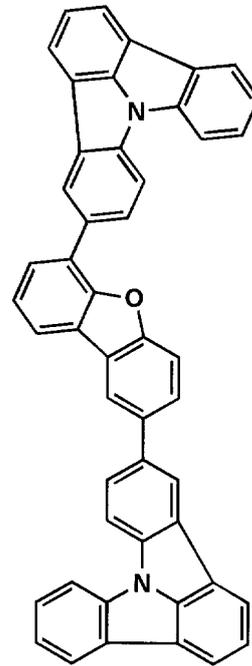
91



92



93



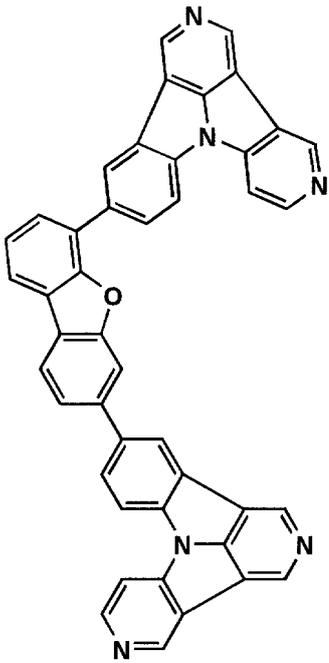
30

40

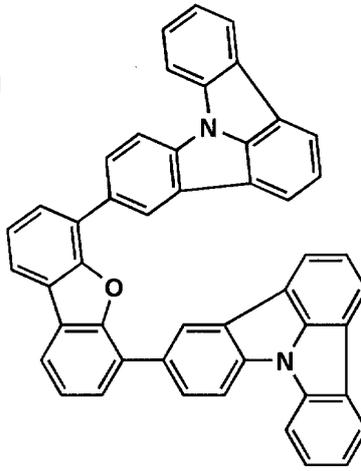
【0051】

【化 1 8】

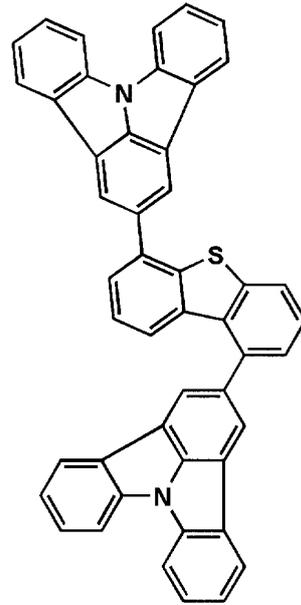
94



95



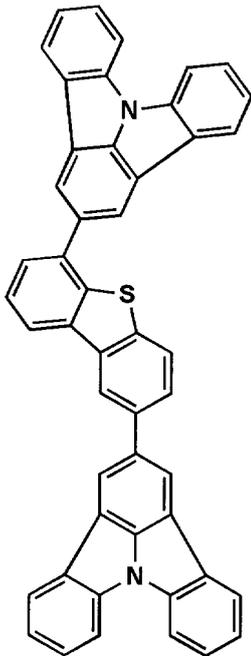
96



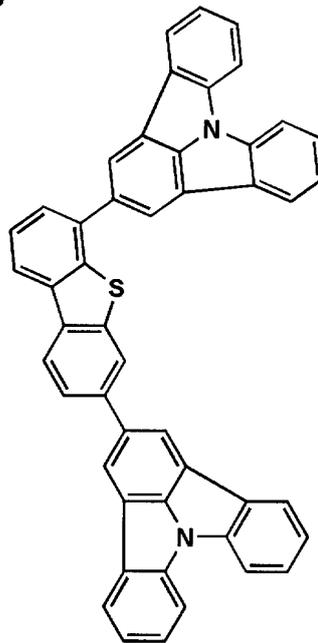
10

20

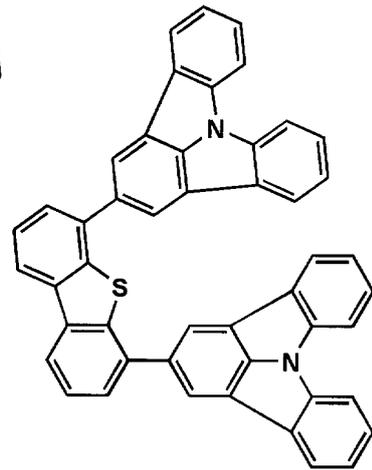
97



98



99



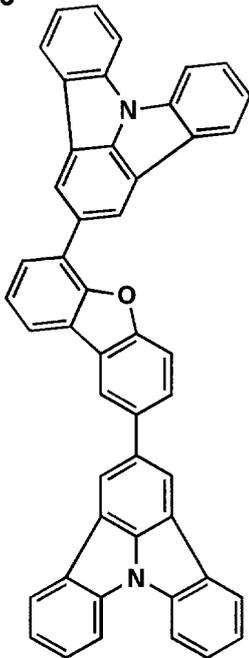
30

40

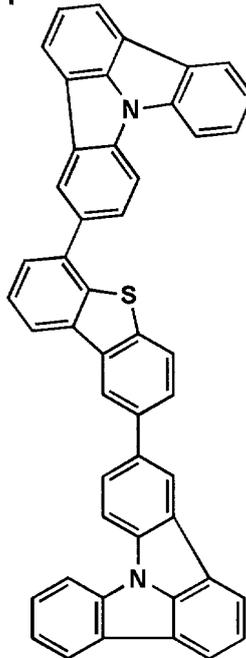
【 0 0 5 2 】

【化 19】

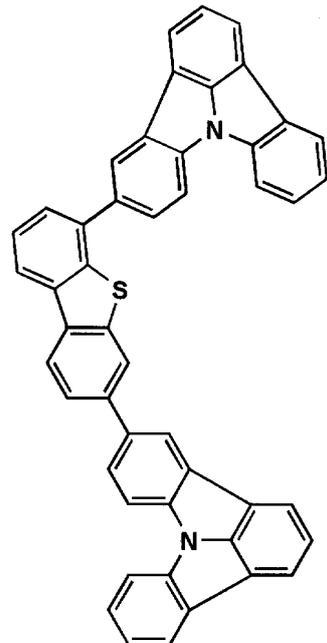
100



101



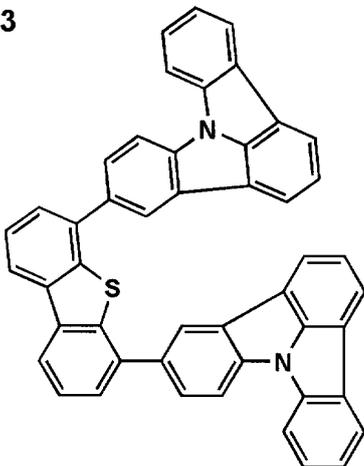
102



10

20

103



30

【0053】

本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、例えば、「ジャーナル・オブ・ケミカル・ソサイエティ(Journal of Chemical Society)、1939年、p.1945-1956」、更にこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を参照することにより合成可能である。

40

【0054】

本発明において、一般式(1)で表される化合物は、本発明の有機EL素子の発光層を含む少なくとも一層の有機層に含まれる。有機層とは、一対の電極に挟まれた層のうち、有機物を含む層をいう。具体的には一般式(1)で表される化合物は、後述する正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層に用いることができる。好ましくは正孔輸送層、発光層、電子輸送層に用いることである。一層だけでなく、複数の層に含ませることもできる。この場合、少なくとも発光層に含ませることが好ましい。

【0055】

50

また好ましくは、発光層、正孔輸送層、電子輸送層のホスト化合物として用いられる。尚、本発明の有機EL素子の構成層、ホスト化合物等については後に詳細に説明する。

【0056】

以下、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子について説明する。

【0057】

<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。

【0058】

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。

陽極 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極

陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 電子輸送層 / 陰極

陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 陰極

陽極 / 正孔輸送層 / 発光層 / 正孔阻止層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

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 / 電子注入層 / 陰極

<陽極>

本発明において一対の電極とは、陽極と陰極をいう。

【0059】

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、電気伝導性化合物およ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。また、 In_2O_3 - ZnO (IDIXO)等非晶質で透明電導膜を作成可能な材料を用いても良い。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良い。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10~1000 nm、好ましくは10~200 nmの範囲で選ばれる。

【0060】

<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られる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~5 μm、好ましくは50~200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

【0061】

また、陰極に上記金属を1~20 nmの膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電

10

20

30

40

50

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

【0062】

<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、単層または複数層設けることができる。

【0063】

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。

10

【0064】

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。

20

【0065】

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(MTDA TA)等が挙げられる。

30

40

【0066】

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

【0067】

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。

50

【0068】

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

【0069】

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、特開2000-196140号、特開2001-102175号の各公報、J. Appl. Phys., 95, 5773 (2004)等に記載されたものが挙げられる。

10

【0070】

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。

【0071】

<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、単層または複数層設けることができる。

【0072】

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

20

30

【0073】

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

40

【0074】

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

【0075】

また、不純物をドーブしたn性の高い電子輸送層を用いることもできる。その例として

50

は、特開平4-297076号公報、同10-270172号公報、特開2000-196140号公報、同2001-102175号公報、J. Appl. Phys., 95, 5773(2004)等に記載されたものが挙げられる。

【0076】

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

【0077】

<注入層>：電子注入層、正孔注入層

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、上記のごと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。

10

【0078】

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123~166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファ層)と電子注入層(陰極バッファ層)とがある。陽極バッファ層(正孔注入層)は、特開平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。陰極バッファ層(電子注入層)は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm~5μmの範囲が好ましい。

20

【0079】

<阻止層>：正孔阻止層、電子阻止層

阻止層は、上記のごとく、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、同11-204359号、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。

30

【0080】

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、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。

【0081】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、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。

40

【0082】

<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。

【0083】

発光層に使用される材料(以下、発光材料という)は、蛍光または燐光を発する有機化合物または錯体であることが好ましく、有機EL素子の発光層に使用される公知のもの

50

中から適宜選択して用いることができる。このような発光材料は、主に有機化合物であり、所望の色調により、例えば、Macromol. Synth., 125巻, 17~25頁に記載の化合物等を用いることができる。発光材料は、発光性能の他に、正孔輸送機能や電子輸送機能を併せ持ってもよく、正孔輸送材料や電子輸送材料のほとんどが、発光材料としても使用できる。発光材料は、p-ポリフェニレンビレンやポリフルオレンのような高分子材料でもよく、さらに前記発光材料を高分子鎖に導入した、または前記発光材料を高分子の主鎖とした高分子材料を使用してもよい。この発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5μm、好ましくは5~200nmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらの発光材料1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。本発明の有機EL素子の好ましい態様は、発光層が2種以上の材料からなり、その内の1種が本発明の化合物であるときである。

10

【0084】

また、この発光層は、特開昭57-51781号に記載されているように、樹脂等の結着材と共に上記発光材料を溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については、特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5nm~5μmの範囲、好ましくは5~200nmの範囲である。

【0085】

20

(ホスト化合物)

「ホスト化合物(以下、単にホストともいう)」とは、2種以上の化合物で構成される発光層中にて混合比(質量)の最も多い化合物のことを意味し、それ以外の化合物については「ドーパント化合物(単に、ドーパントともいう)」という。例えば、発光層を化合物A、化合物Bという2種で構成し、その混合比がA:B=10:90であれば化合物Aがドーパント化合物であり、化合物Bがホスト化合物である。更に、発光層を化合物A、化合物B、化合物Cの3種から構成し、その混合比がA:B:C=5:10:85であれば、化合物A、化合物Bがドーパント化合物であり、化合物Cがホスト化合物である。

【0086】

発光層のホスト化合物は、有機化合物または錯体であることが好ましく、本発明においては、ホスト化合物の励起3重項エネルギーが燐光ドーパントの励起3重項エネルギーよりも大きいことが好ましい。更にホスト化合物の燐光スペクトルにおける0-0バンドの波長が450nm以下であることが好ましい。これにより可視光、特にBGR発光が可能となる。つまりホスト化合物の励起3重項エネルギーが燐光ドーパントの励起3重項エネルギーよりも大きくすることにより、ホスト化合物からドーパントへのエネルギー移動型のドーパント発光が可能である。またホスト化合物の燐光スペクトルにおける0-0バンドの波長が450nm以下である化合物は非常にワイドエネルギーギャップ(イオン化ポテンシャル-電子親和力、HOMO-LUMO)であるので、キャリアトラップ型にも有利に働く。

30

【0087】

40

このようなホスト化合物としては、有機EL素子に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができ、また後述の正孔輸送材料や電子輸送材料のほとんどが発光層ホスト化合物としても使用できる。ポリビニルカルバゾールやポリフルオレンのような高分子材料でもよく、さらに前記ホスト化合物を高分子鎖に導入した、または前記ホスト化合物を高分子の主鎖とした高分子材料を使用してもよい。

【0088】

ホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tg(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

【0089】

ここで、本発明においてホスト化合物とは、発光層に含有される化合物の内、その層中

50

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。

【0090】

発光層のホスト化合物としては、本発明に係る前記一般式(1)~(4)で表される化合物を用いることが好ましいが、公知のホスト化合物であってもよく、また併用してもよい。併用してもよい公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、且つ発光の長波長化を防ぎ、なお且つ高T_g(ガラス転移温度)である化合物が好ましい。

【0091】

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

【0092】

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2002-14173号公報、同2002-352957号公報、同2002-203683号公報、同2002-363227号公報、同2002-23153号公報、同2003-3165号公報、同2002-234888号公報、同2003-27048号公報、同2002-2934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。

【0093】

本発明においては、複数の発光層を有する場合、これら各層のホスト化合物の50質量%以上が同一の化合物であることが、有機層全体に渡って均質な膜性状を得やすいことから好ましく、更には該化合物のリン光発光エネルギーが2.9eV以上であることが、ドープメントからのエネルギー移動を効率的に抑制し、高輝度を得る上で有利となることからより好ましい。

【0094】

本発明でいうところのリン光発光エネルギーとは、ホスト化合物を基板上に100nmの蒸着膜のフォトルミネッセンスを測定し、そのリン光発光の0-0バンドのピークエネルギーを言う。

【0095】

(ドープメント)

次にドープメントについて述べる。

【0096】

原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをドープメントに移動させることでドープメントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはドープメントがキャリアトラップとなり、ドープメント化合物上でキャリアの再結合が起こりドープメント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、ドープメント化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

【0097】

本発明における「リン光ドープメント」、「リン光性化合物」とは励起三重項からの発光が観測される化合物であり、リン光量子収率が、25において0.001以上の化合物

10

20

30

40

50

である。リン光量子収率は好ましくは0.01以上、更に好ましくは0.1以上である。

【0098】

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、本発明に用いられるリン光ドーパントは、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

【0099】

本発明で用いられるリン光ドーパントとしては、好ましくは元素の周期律表で8族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物(白金錯体系化合物)、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

10

【0100】

本発明の有機EL素子においては、発光層のホスト化合物、発光層に隣接する正孔輸送層、発光層に隣接する電子輸送層全ての材料の励起3重項エネルギーがリン光ドーパントの励起3重項エネルギーよりも大きいことが好ましい。特に発光層のホスト化合物、発光層に隣接する正孔輸送層、発光層に隣接する電子輸送層のリン光スペクトルにおける0-0バンドの波長が450nm以下であることが好ましい。

【0101】

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

20

【0102】

本発明でいうところの白色素子とは、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±0.07、Y=0.33±0.07の領域内にあることをいう。

【0103】

発光層は上記化合物を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。

【0104】

本発明においては、発光層は発光極大波長が各々430~480nm、510~550nm、600~640nmの範囲にある発光スペクトルの異なる層、あるいはこれらが積層された層を含む。

30

【0105】

発光層の積層順としては特に制限はなく、また各発光層間に非発光性の中間層を有していてもよい。本発明においては、少なくとも一つの青発光層が全発光層中最も陽極に近い位置に設けられていることが好ましい。

【0106】

また、発光層を4層以上設ける場合には、陽極に近い順から、例えば、青/緑/赤/青、青/緑/赤/青/緑、青/緑/赤/青/緑/赤のように青、緑、赤を順に積層することが、輝度安定性を高める上で好ましい。

40

【0107】

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、通常2nm~5μm、好ましくは2~200nmの範囲で選ばれる。本発明においては、更に10~20nmの範囲にあるのが好ましい。薄すぎると膜の均質性が得られにくい。またこれより厚いと発光を得るのに高電圧を要するため好ましくない。膜厚を20nm以下にすると電圧面のみならず、駆動電流に対する発光色の安定性が向上する効果があり好ましい。

【0108】

個々の発光層の膜厚は、好ましくは2~100nmの範囲で選ばれ、2~20nmの範囲にあるのが更に好ましい。青、緑、赤の各発光層の膜厚の関係については、特に制限は

50

ないが、3発光層中、青発光層（複数層ある場合はその総和）が最も厚いことが好ましい。

【0109】

また、前記の極大波長を維持する範囲において、各発光層には複数の発光性化合物を混合してもよい。例えば、青発光層に極大波長430～480nmの青発光性化合物と、同510～550nmの緑発光性化合物を混合して用いてもよい。

【0110】

<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、基板、支持体等ともいう）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

【0111】

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

【0112】

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、水蒸気透過度が $0.01 \text{ g/m}^2/\text{day} \cdot \text{atm}$ 以下のバリア性フィルムであることが好ましく、更には、酸素透過度 $10^{-3} \text{ g/m}^2/\text{day}$ 以下、水蒸気透過度 $10^{-5} \text{ g/m}^2/\text{day}$ 以下の高バリア性フィルムであることが好ましい。

30

【0113】

該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侵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

【0114】

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

【0115】

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

【0116】

50

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。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。

【0117】

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。

【0118】

<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。

【0119】

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

【0120】

具体的には、ガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、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る一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。本発明においては、素子を薄膜化できるということからポリマーフィルム、金属フィルムを好ましく使用することができる。更には、ポリマーフィルムは、酸素透過度 $10^{-3} \text{ g/m}^2/\text{day}$ 以下、水蒸気透過度 $10^{-5} \text{ g/m}^2/\text{day}$ 以下のものであることが好ましい。

【0121】

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。

【0122】

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。

【0123】

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

【0124】

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侵入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。更に該膜の脆弱性を改良するために、これら無機層と有機材料からなる層の積層構造を持たせることが好ましい。これらの膜の形成方法については、特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エビ

10

20

30

40

50

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。

【0125】

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、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。

【0126】

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。

10

【0127】

<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。

20

【0128】

<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15～20%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。

30

【0129】

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。

40

【0130】

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。

【0131】

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

50

素子を得ることができる。

【0132】

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。

【0133】

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。

【0134】

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。

【0135】

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。

【0136】

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

【0137】

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。

【0138】

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。

【0139】

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。

【0140】

<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。

【0141】

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が30 μm でその頂角が90度となるような四角錐を2次元に配列する。一辺は10~100 μm 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。

【0142】

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

10

20

30

40

50

例えば、基板に頂角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。

【0143】

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。

【0144】

<有機EL素子の作製方法>

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

【0145】

まず適当な基板上に所望の電極物質、例えば、陽極用物質からなる薄膜を1 μ m以下、好ましくは10~200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。

【0146】

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

【0147】

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス(スピコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法)等があるが、均質な膜が得られやすく、且つピンホールが生成しにくい等の点から、本発明においては、スピコート法、インクジェット法、印刷法等の塗布法による製膜が特に好ましい。

【0148】

本発明においては、発光層の形成において、本発明に係る一般式(1)で表される化合物を溶解または分散した液を用いて塗布法により成膜することが好ましく、特に塗布法がインクジェット法であることが好ましい。

【0149】

本発明に係る一般式(1)で表される化合物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、DMF、DMSO等の有機溶媒を用いることができる。また、分散方法としては超音波、高剪断力分散やメディア分散等の分散方法で分散することができる。

【0150】

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

【0151】

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

【0152】

<用途>

本発明の有機EL素子は、表示装置や照明装置として用いることができる。

【0153】

《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上記有機EL素子を有する。

【0154】

10

20

30

40

50

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、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

【0155】

発光層のみパターニングを行う場合、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、印刷法である。蒸着法を用いる場合においては、シャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。

【0156】

このようにして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2~40V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。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

10

【0157】

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。

【0158】

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。

20

【0159】

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、これに限定するものではない。

【0160】

《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。

30

【0161】

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。

【0162】

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。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。

40

【0163】

このように、本発明に係る有機EL素子は、前記表示デバイス、ディスプレイに加えて、各種発光光源、照明装置として、家庭用照明、車内照明、また露光光源のような一種のランプとして、また液晶表示装置のバックライト等、表示装置にも有用に用いられる。

【0164】

その他、時計等のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体等の光源、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、更には表示装置を必要とする一

50

般の家庭用電気器具等広い範囲の用途が挙げられる。

【0165】

本発明の有機EL素子においては、必要に応じ製膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターンニングを施してもよい。パターンニングする場合は、電極のみをパターンニングしてもよいし、電極と発光層をパターンニングしてもよいし、素子全層をパターンニングしてもよい。

【実施例】

【0166】

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「部」あるいは「%」の表示を用いるが、特に断りがな

10

い限り「質量部」あるいは「質量%」を表す。

【0167】

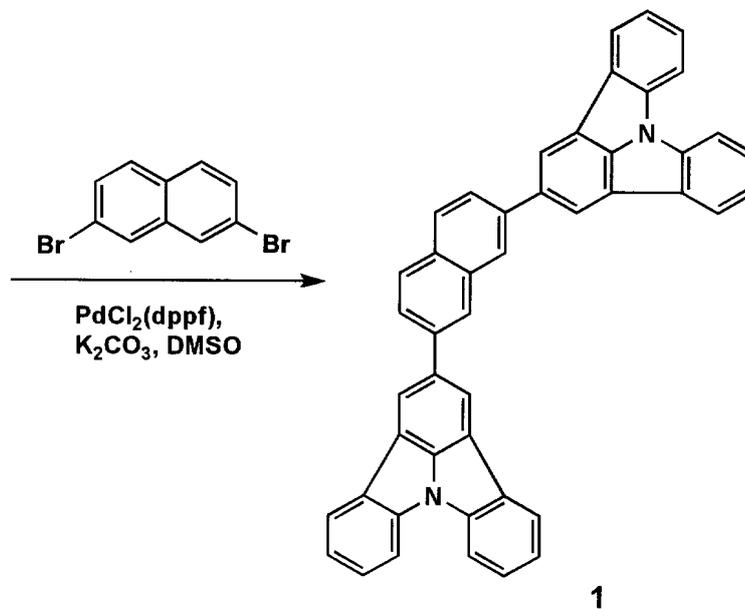
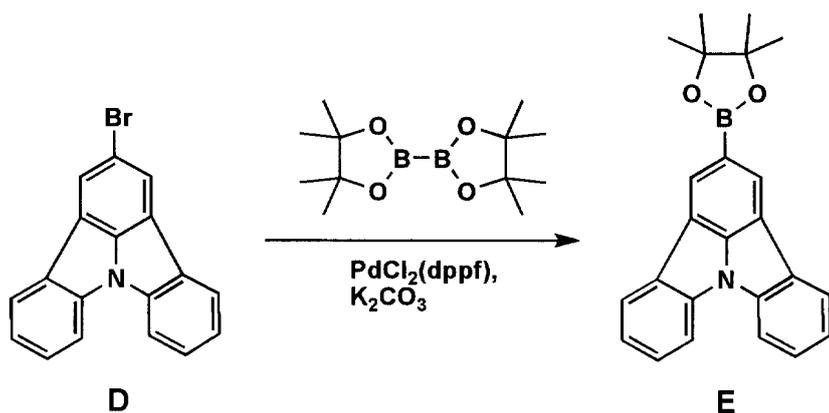
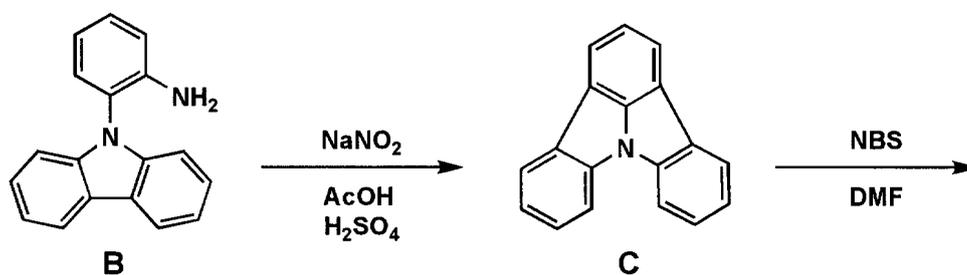
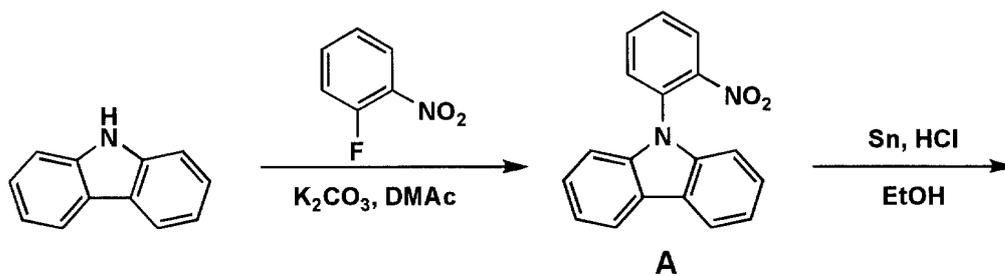
《合成例》

(例示化合物1の合成)

例示化合物1は以下のスキームに従って合成できる。

【0168】

【化20】



【0169】

カルバゾールと1-フルオロ-2-ニトロベンゼンを炭酸カリウム共存下で1時間加熱還流する事で収率90%で化合物Aが得られた。化合物Aをスズ粉末で還元、化合物Bへと収率91%で変換した。化合物Bを硫酸(濃度:18体積%)、酢酸(濃度:82体積

10

20

30

40

50

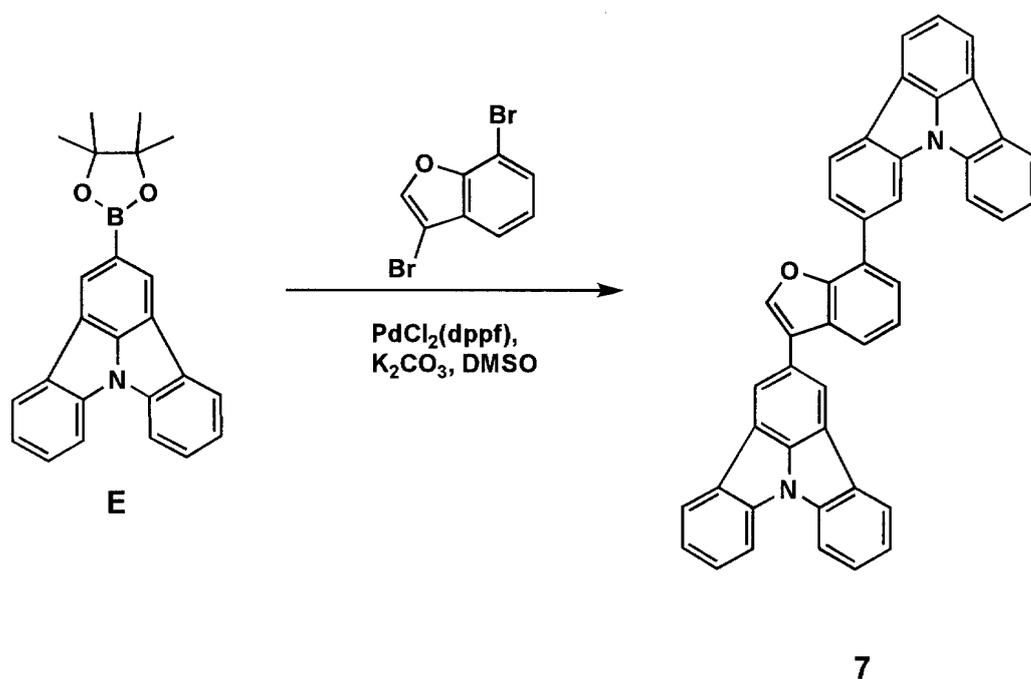
%) 溶媒中 0 で亜硝酸ナトリウムと反応後、加熱分解により縮合させ、収率 62% で化合物 C を得た。化合物 C を DMF 中、N-ブロモスクシンイミドで臭素化し、収率 56% で化合物 D を得た。化合物 D をビスピナコラトジボランと炭酸カリウムで反応させ化合物 E を収率 50% で得た。化合物 E と 2,7-ジブロモナフタレンを DMSO 中反応させることで、例示化合物 1 を収率 55% で得た。なお、例示化合物 1 の構造は ^1H -NMR スペクトルおよび MS スペクトルにより確認した。なお、 $\text{PdCl}_2(\text{dppf})$ は、1,1-ビス(ジフェニルホスフィノフェロセン)パラジウムジクロライドを表す。

【0170】

(例示化合物 7 の合成)

【0171】

【化 21】



10

20

30

【0172】

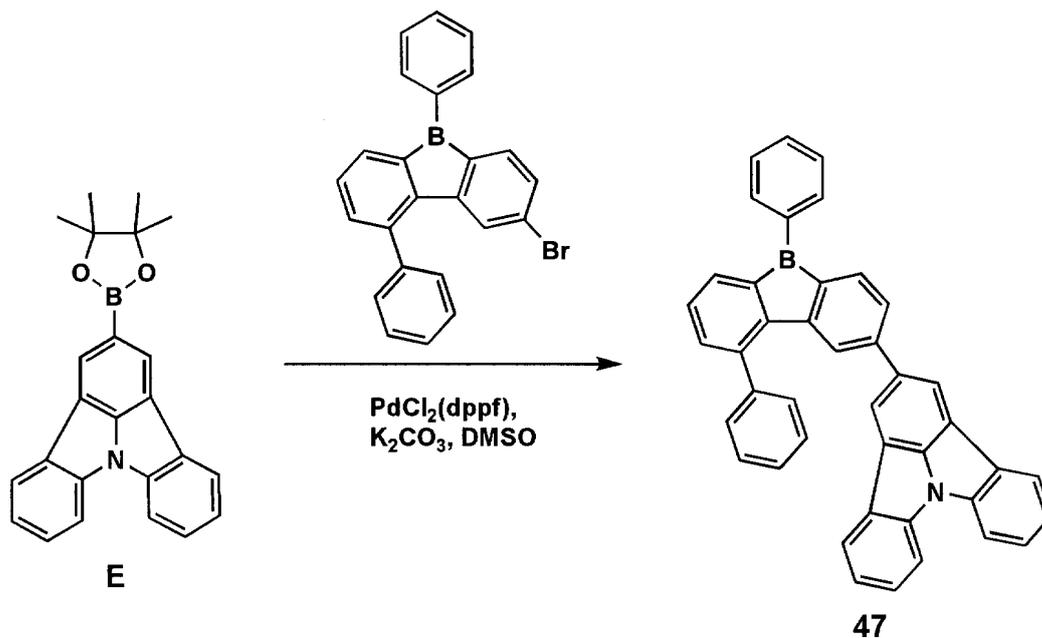
前記化合物 E と 3,7-ジブロモベンゾフランを DMSO 中反応させることで、例示化合物 7 を 60% で得た。なお、例示化合物 7 の構造は ^1H -NMR スペクトルおよび MS スペクトルにより確認した。

【0173】

(例示化合物 47 の合成)

【0174】

【化 2 2】



10

20

【 0 1 7 5】

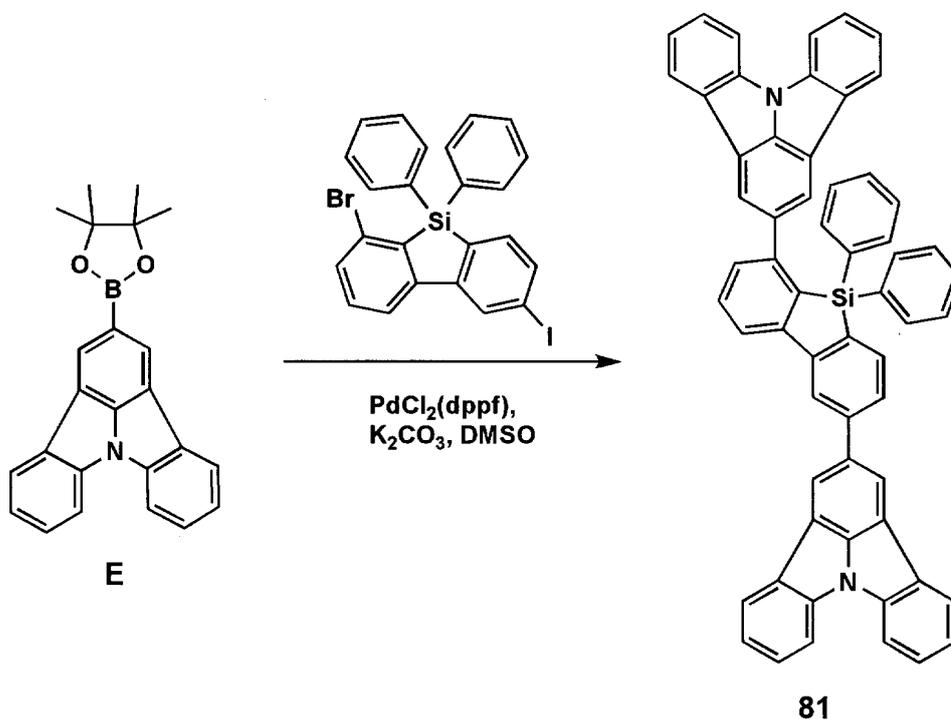
前記化合物 E と 8 - ブロモ - 1 , 5 - ジフェニルジベンゾボロールを DMSO 中反応させることで、例示化合物 47 を 64 % で得たなお、例示化合物 47 の構造は $^1\text{H-NMR}$ スペクトルおよび MS スペクトルにより確認した。

【 0 1 7 6】

(例示化合物 81 の合成)

【 0 1 7 7】

【化 2 3】



30

40

50

【 0 1 7 8 】

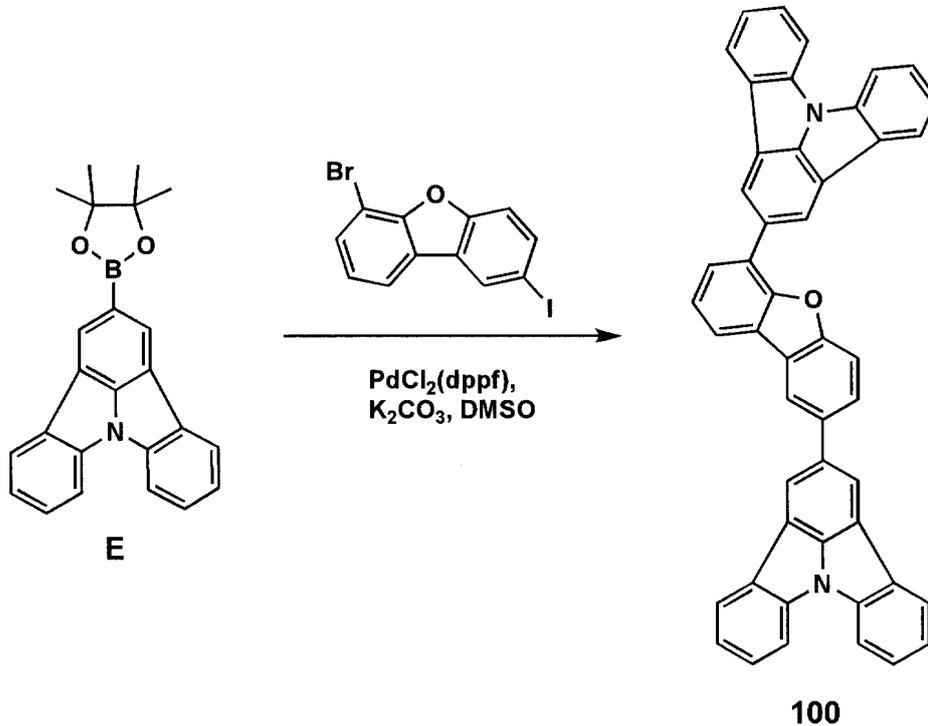
前記化合物 E と 6 - ブロモ - 2 - ヨード - 5 , 5 - ジフェニルジベンゾシロールを DMSO 中反応させることで、例示化合物 8 1 を 5 3 % で得た。なお、例示化合物 8 1 の構造は ^1H - NMR スペクトルおよび MS スペクトルにより確認した。

【 0 1 7 9 】

(例示化合物 1 0 0 の合成)

【 0 1 8 0 】

【 化 2 4 】



10

20

30

【 0 1 8 1 】

前記化合物 E と 6 - ブロモ - 2 - ヨードジベンゾフランを DMSO 中反応させることで、例示化合物 1 0 0 を 5 3 % で得た。なお、例示化合物 1 0 0 の構造は ^1H - NMR スペクトルおよび MS スペクトルにより確認した。

【 0 1 8 2 】

《 実施例 1 》

有機 EL 素子 1 - 1 の作製

陽極として $100\text{mm} \times 100\text{mm} \times 1.1\text{mm}$ のガラス基板の上に ITO (インジウムチンオキシド) を 100nm 製膜した基板 (NH テクノグラス社製 NA45) にパターンニングを行った後、この ITO 透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UV オゾン洗浄を 5 分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料として -NPD を 200mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較のホスト化合物として A - 1 を 200mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに発光性ドーパントとして $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ を 100mg 入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子注入材料として Alq_3 を 200mg 入れ、真空蒸着装置に取付けた。

40

【 0 1 8 3 】

次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}\text{Pa}$ まで減圧した後、 -NPD の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1\text{nm}/\text{sec}$ で透明支持基板に蒸着し、膜厚 40nm の正孔輸送層を設けた。更に、A - 1 と $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の入った前記加熱ポートに通

50

電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.2 nm/sec 、 0.012 nm/sec で前記正孔輸送層上に共蒸着して、膜厚 40 nm の発光層を設けた。その上に、更に Alq_3 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記発光層の上に蒸着して、更に膜厚 40 nm の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

【0184】

引き続き、フッ化リチウム 0.5 nm 及びアルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

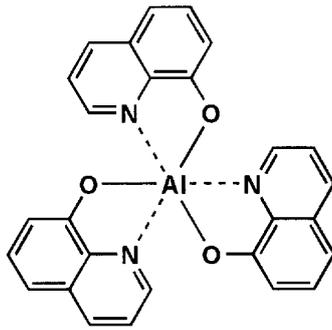
【0185】

以下に、電子輸送材料の Alq_3 、正孔輸送材料の $\alpha\text{-NPD}$ 、発光性ドーパントの $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の構造を示す。

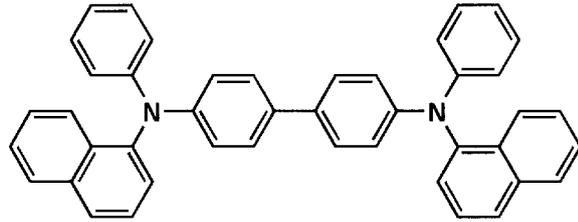
【0186】

【化25】

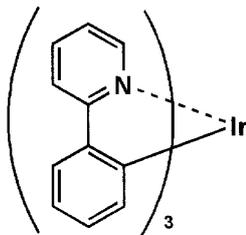
Alq_3



$\alpha\text{-NPD}$



$\text{Ir}(\text{ppy})_3$



【0187】

(有機EL素子1-2～1-23の作製)

有機EL素子1-1の作製において、表1に記載のようにホスト化合物を比較の化合物A-2～A-5、及び本発明に係る例示化合物に変更した以外は同様にして、有機EL素子1-2～1-23を作製した。

【0188】

有機EL素子の評価

作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み $300 \mu\text{m}$ 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、これを上記陰極上に重ねて前記透明支持基板と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止して、図1、図2に示すような照明装置を形成して、評価した。

【0189】

図1は本発明の有機EL素子を用いた照明装置の一例を示す概略図であり、発光した光7が白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。有機EL素子101はガラ

10

20

30

40

50

スカバー 102 で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機 EL 素子 101 を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度 99.999% 以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った）。図 2 は本発明の有機 EL 素子を用いた照明装置の一例を示す断面図である。図 2 において、105 は陰極、106 は有機 EL 層、107 は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー 102 内には窒素ガス 108 が充填され、捕水剤 109 が設けられている。

【0190】

（外部取り出し量子効率）

作製した有機 EL 素子について、23、乾燥窒素ガス雰囲気下で 2.5 mA/cm^2 定電流を印加した時の外部取り出し量子効率（%）を測定した。なお、測定には分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。

10

【0191】

表 1 の外部取り出し量子効率の測定結果は、有機 EL 素子 1-1 の測定値を 100 とした時の相対値で表した。

【0192】

（発光寿命）

2.5 mA/cm^2 の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度（初期輝度）の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間（0.5）として寿命の指標とした。なお、測定には分光放射輝度計 CS-1000（コニカミノルタセンシング製）を用いた。

20

【0193】

また、表 1 の寿命の測定結果は、有機 EL 素子 1-1 を 100 とした時の相対値で表した。

【0194】

（駆動電圧）

各素子を輝度が 1000 cd/m^2 になるように直流電圧を印加し、発光させる。このときの印加電圧を駆動電圧評価の指標とした。

【0195】

また、表 1 の測定結果は有機 EL 素子 1-1 との駆動電圧差（V）で表した。値の低い（マイナス）のほう駆動電圧の低いことを示し、好ましい。

30

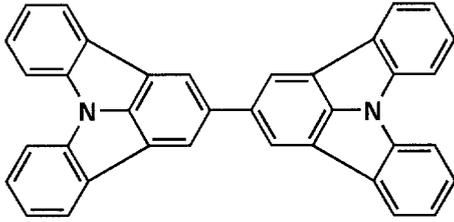
【0196】

以下に比較例に用いた化合物 A-1 ~ A-5 を示した。

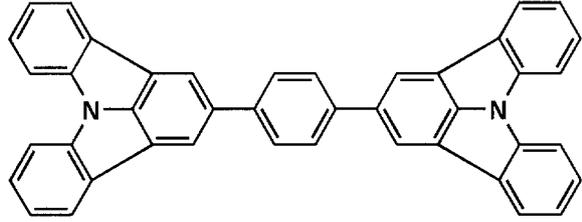
【0197】

【化 2 6】

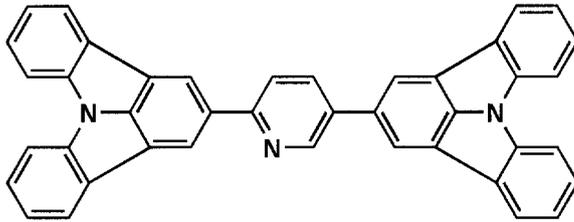
A-1



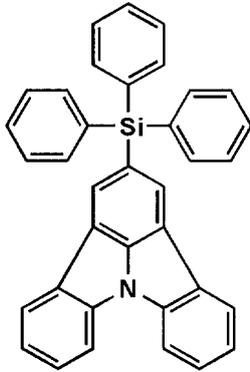
A-2



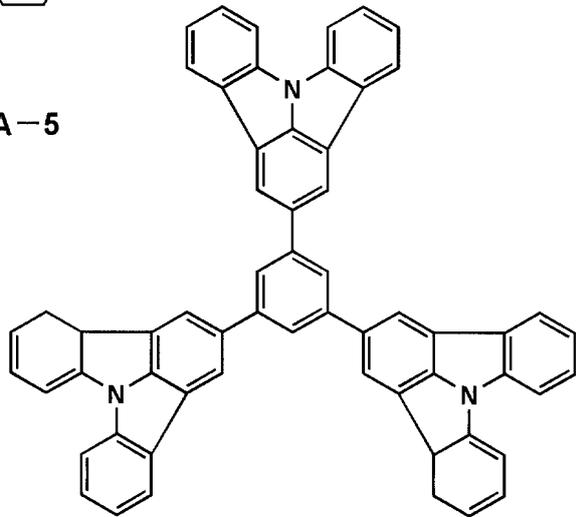
A-3



A-4



A-5



10

20

30

【 0 1 9 8 】

【表 1】

有機EL素子 No.	ホスト化合物	発光寿命	外部量子効率	有機EL素子1-1 との駆動電圧差 (ΔV)	備 考
1-1	A-1	100	100	0	比較例
1-2	A-2	103	105	-0.26	比較例
1-3	A-3	106	107	-0.28	比較例
1-4	A-4	106	106	-0.27	比較例
1-5	A-5	104	108	-0.25	比較例
1-6	1	159	133	-0.6	実施例
1-7	4	160	136	-0.78	実施例
1-8	6	163	135	-0.66	実施例
1-9	8	199	146	-0.89	実施例
1-10	11	170	140	-0.88	実施例
1-11	15	155	148	-0.92	実施例
1-12	29	199	155	-0.88	実施例
1-13	32	188	154	-0.9	実施例
1-14	42	201	160	-0.77	実施例
1-15	52	204	165	-0.58	実施例
1-16	61	199	168	-0.69	実施例
1-17	65	209	169	-0.55	実施例
1-18	69	218	171	-0.55	実施例
1-19	75	219	176	-0.54	実施例
1-20	81	215	172	-0.63	実施例
1-21	89	230	180	-0.75	実施例
1-22	98	238	189	-0.7	実施例
1-23	100	237	195	-0.77	実施例

【0199】

表1から、発光層のホスト化合物に本発明の化合物を含む本発明の有機EL素子は、高効率化、低電圧駆動化および長寿命化が達成されていることが分かる。

【0200】

《実施例2》

有機EL素子2-1の作製

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキsid）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製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、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料として-NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較のホスト化合物としてA-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較の電子輸送材料としてA-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに発光性ドーパントとしてIr(ppy)₃を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子注入材料としてAlq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【0201】

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で透明支持基板に蒸着し、膜厚 40 nm の正孔輸送層を設けた。更に、A-1 と $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.2 nm/sec 、 0.012 nm/sec で前記正孔輸送層上に共蒸着して、膜厚 40 nm の発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。更に A-1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記発光層の上に蒸着して膜厚 10 nm の正孔阻止の役割も兼ねた電子輸送層を設けた。その上に、更に Alq_3 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/sec で前記電子輸送層の上に蒸着して、更に膜厚 40 nm の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。引き続き、フッ化リチウム 0.5 nm 及びアルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 2-1 を作製した。

10

【0202】

(有機 EL 素子 2-2 ~ 2-14 の作製)

有機 EL 素子 2-1 の作製において、表 2 に記載のように、ホスト化合物および電子輸送材料を比較の A-1 から本発明に係る例示化合物に変更した以外は同様にして、有機 EL 素子 2-2 ~ 2-14 を作製した。

【0203】

表 1 の測定同様、図 1、図 2 の照明装置を形成し外部量子効率、駆動電圧差 (ΔV) および発光寿命のそれぞれを有機 EL 素子 No. 2-1 を基準として計測した。以下の表 2 に測定結果をまとめた。

20

【0204】

【表 2】

有機EL素子 No.	ホスト化合物	電子輸送材料	発光寿命	外部量子効率	有機EL素子2-1 との駆動電圧差 (ΔV)	備考
2-1	A-1	A-1	100	100	0	比較例
2-2	A-1	A-4	105	102	-0.2	比較例
2-3	A-1	4	149	110	-0.62	実施例
2-4	A-1	8	163	109	-0.55	実施例
2-5	A-1	29	171	107	-0.54	実施例
2-6	A-1	65	167	109	-0.74	実施例
2-7	A-1	81	190	106	-0.71	実施例
2-8	A-1	100	189	111	-0.66	実施例
2-9	1	1	248	150	-1.44	実施例
2-10	1	8	255	161	-1.55	実施例
2-11	32	29	267	170	-1.44	実施例
2-12	32	69	260	177	-1.69	実施例
2-13	89	81	268	191	-1.79	実施例
2-14	89	98	273	196	-1.88	実施例

30

40

【0205】

表 2 から、電子輸送層および発光層のホスト化合物に本発明の化合物を含む本発明の有機 EL 素子は、高効率化、低電圧駆動化ならびに長寿命化が達成されていることが分かる。

【0206】

《実施例 3》

有機 EL 素子 3-1 の作製

50

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ド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに比較の正孔輸送材料としてA-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物として比較のA-3を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに発光性ドーパントとしてIr(ppy)₃を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子注入材料としてAlq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

【0207】

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、A-1の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで透明支持基板に蒸着し、膜厚40nmの正孔輸送層を設けた。更に、A-3とIr(ppy)₃の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.2nm/sec、0.012nm/secで前記正孔輸送層上に共蒸着して、膜厚40nmの発光層を設けた。その上に、更にAlq₃の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記発光層の上に蒸着して、更に膜厚40nmの電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。引き続き、フッ化リチウム0.5nm及びアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子3-1を作製した。

【0208】

（有機EL素子3-2～3-14の作製）

有機EL素子3-1の作製において、表3に記載のようにホスト化合物および正孔輸送材料を変更した以外は同様にして、有機EL素子3-2～3-14を作製した。

【0209】

表1の測定同様、図1、図2の照明装置を形成し外部量子効率、駆動電圧差（V）および発光寿命のそれぞれを有機EL素子No.3-1を基準として計測した。以下の表3に測定結果をまとめた。

【0210】

【表3】

有機EL素子 No.	ホスト化合物	正孔輸送材料	発光寿命	外部量子効率	有機EL素子3-1 との駆動電圧差 (ΔV)	備考
3-1	A-3	A-1	100	100	0	比較例
3-2	A-3	A-5	102	104	-0.22	比較例
3-3	A-3	1	158	105	-0.52	実施例
3-4	A-3	11	150	105	-0.65	実施例
3-5	A-3	29	175	107	-0.56	実施例
3-6	A-3	52	177	108	-0.64	実施例
3-7	A-3	75	189	108	-0.72	実施例
3-8	A-3	81	185	107	-0.74	実施例
3-9	4	1	267	150	-1.54	実施例
3-10	4	8	264	161	-1.65	実施例
3-11	61	29	272	170	-1.73	実施例
3-12	61	69	286	177	-1.77	実施例
3-13	100	81	277	191	-1.79	実施例
3-14	100	100	291	208	-1.91	実施例

10

20

30

40

50

【0211】

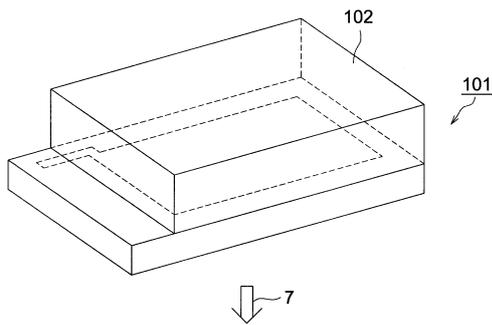
表3から、正孔輸送層または発光層のホスト化合物に本発明の化合物を含む本発明の有機EL素子は、高効率化、低電圧駆動化および長寿命化が達成されていることが分かる。

【符号の説明】

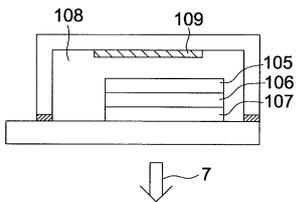
【0212】

- 7 発光した光
- 101 有機EL素子
- 102 ガラスカバー
- 105 透明電極付きガラス基板
- 106 有機EL層
- 107 陰極
- 108 窒素ガス
- 109 補水剤

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H01L 51/50

CAplus/REGISTRY(STN)