

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5636630号
(P5636630)

(45) 発行日 平成26年12月10日(2014.12.10)

(24) 登録日 平成26年10月31日(2014.10.31)

(51) Int.Cl. F I
HO 1 L 51/50 (2006.01) HO 5 B 33/22 B
 HO 5 B 33/14 B

請求項の数 9 (全 65 頁)

(21) 出願番号	特願2009-6530 (P2009-6530)	(73) 特許権者	000001270
(22) 出願日	平成21年1月15日(2009.1.15)		コニカミノルタ株式会社
(65) 公開番号	特開2010-165830 (P2010-165830A)		東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
(43) 公開日	平成22年7月29日(2010.7.29)	(74) 代理人	110001254
審査請求日	平成23年6月14日(2011.6.14)		特許業務法人光陽国際特許事務所
		(72) 発明者	▲高▼ 秀雄
			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	片倉 利恵
			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	尾関 秀謙
			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

最終頁に続く

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

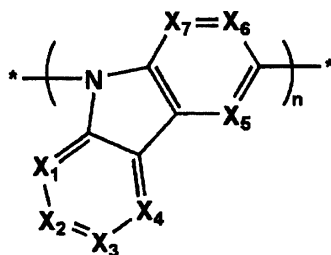
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(1)で表される高分子化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化1】

一般式(1)



(一般式(1)中のX₁~X₇はN原子またはCR基を表し、Rは水素原子または置換基を表す。但し、X₁~X₄のうち一つがN原子であり、及び/または、X₅~X₇のうち一つがN原子であり、他はCR基である。また、X₁とX₂、X₂とX₃、X₃とX₄、X₆とX₇が同時にCR基である場合、R同士が互いに結合し5員または6員の芳香環を形成してもよい。nは平均重合度を示し、3 ≤ n ≤ 1000である。)

【請求項2】

更にアルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を前記一般式(1)で表される高分子化合物に対して0.01~50質量%含有することを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項3】

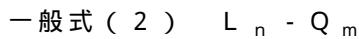
対向する電極間に少なくとも有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機層に請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】

前記有機層が電子輸送層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。

【請求項5】

前記有機層が複数の層からなり、その一つが発光層であり、ホスト化合物として下記一般式(2)で表される化合物が含まれていることを特徴とする請求項3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



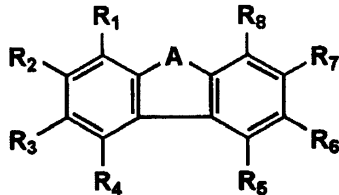
(式中、Lは置換していてもよい縮合した芳香族複素環、Qは置換していてもよい芳香族炭化水素環または芳香族複素環であり、n、mはそれぞれ1~3の整数である。nが2以上の時はLは互いに異なっていてもよく、mが2以上の時はQは互いに異なっていてもよい。)

【請求項6】

前記一般式(2)で表される化合物のLが下記一般式(3)で表されることを特徴とする請求項5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(3)



(式中、AはO原子、S原子、NR₉基を表す。R₁~R₉は水素原子または置換基を表す。)

【請求項7】

白色発光することを特徴とする請求項3~6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】

請求項3~7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を備えたことを特徴とする表示装置。

【請求項9】

請求項3~7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を備えたことを特徴とする照明装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

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

【背景技術】

【0002】

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ

10

20

30

40

50

レイ (E L D) がある。 E L D 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 E L 素子とも言う) が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

【 0 0 0 3 】

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

10

【 0 0 0 4 】

実用化に向けた有機 E L 素子の開発としては、 M . A . B a l d o e t a l . , N a t u r e , 3 9 5 巻、 1 5 1 ~ 1 5 4 頁 (1 9 9 8 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 E L 素子の報告がされて以来、 M . A . B a l d o e t a l . , N a t u r e , 4 0 3 巻、 1 7 号、 7 5 0 ~ 7 5 3 頁 (2 0 0 0 年) 、米国特許第 6 , 0 9 7 , 1 4 7 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。

【 0 0 0 5 】

更に最近発見されたリン光発光を利用する有機 E L 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 倍の発光効率が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。

20

【 0 0 0 6 】

例えば、 S . L a m a n s k y e t a l . , J . A m . C h e m . S o c . , 1 2 3 巻、 4 3 0 4 頁 (2 0 0 1 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。

【 0 0 0 7 】

一方で、有機 E L 素子の製造方法には大別して 2 つの方法、真空化での蒸着による成膜 (ドライブプロセス) 、溶液の塗布・成膜 (ウエットプロセス) が知られており、大面積化や高生産性等の点で優れたウエットプロセスが注目されている。

30

【 0 0 0 8 】

現在主流となっている多層構成の有機 E L 素子においては、塗布による積層方法や塗布積層可能な材料の開発が求められている。

【 0 0 0 9 】

ウエットプロセスは真空プロセスでの成膜に比して低温で成膜可能であるため、下層の有機層のダメージを低減でき、発光効率や素子寿命の改善の面からも大きな期待が寄せられる。ウエットプロセスによる電極成膜の例としては、 I T O 陽極に代わって P E D O T / P S S を用いること等、また低融金属ペーストの塗布成膜 (例えば、特許文献 1 参照) や、導電性ペースト材料の塗布成膜 (例えば、特許文献 2 参照) 等による陰極形成方法が報告されている。しかしながら、実用上の観点からは高温保存時の性能劣化等の点でまだ不十分であり、更なる改良技術が不可欠である。

40

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 1 0 】

【 特許文献 1 】 特開 2 0 0 5 - 2 8 5 7 3 2 号公報

【 特許文献 2 】 特表 2 0 0 5 - 5 1 4 7 2 9 号公報

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 1 1 】

本発明の目的は、外部取り出し量子効率が高く、発光寿命が長く、低駆動電圧で、且つ

50

高温保存性に優れる有機エレクトロルミネッセンス素子、そのための有機エレクトロルミネッセンス素子材料、該有機EL素子を用いる表示装置、及び照明装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明の上記目的は、下記構成による達成される。

【0013】

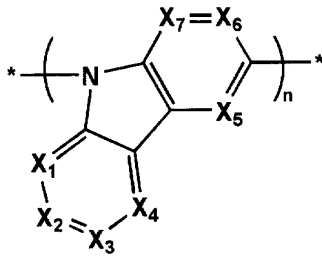
1. 下記一般式(1)で表される高分子化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0014】

【化1】

10

一般式(1)



20

【0015】

(一般式(1)中の $X_1 \sim X_7$ はN原子またはCR基を表し、Rは水素原子または置換基を表す。但し、 $X_1 \sim X_4$ のうち一つがN原子であり、及び/または、 $X_5 \sim X_7$ のうち一つがN原子であり、他はCR基である。また、 X_1 と X_2 、 X_2 と X_3 、 X_3 と X_4 、 X_6 と X_7 が同時にCR基である場合、R同士が互いに結合し5員または6員の芳香環を形成してもよい。 n は平均重合度を示し、 $3 \leq n \leq 1000$ である。)

2. 更にアルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を前記一般式(1)で表される高分子化合物に対して0.01~50質量%含有することを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

30

【0016】

3. 対向する電極間に少なくとも有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機層に前記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材料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。

【0017】

4. 前記有機層が電子輸送層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。

【0018】

5. 前記有機層が複数の層からなり、その一つが発光層であり、ホスト化合物として下記一般式(2)で表される化合物が含まれていることを特徴とする前記3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【0019】

一般式(2) $L_n - Q_m$

(式中、Lは置換していてもよい縮合した芳香族複素環、Qは置換していてもよい芳香族炭化水素環または芳香族複素環であり、 n 、 m はそれぞれ1~3の整数である。 n が2以上の時はLは互いに異なってもよく、 m が2以上の時はQは互いに異なってもよい。)

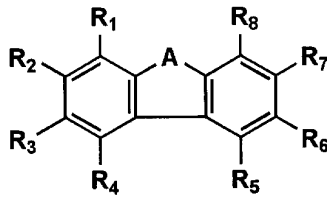
6. 前記一般式(2)で表される化合物のLが下記一般式(3)で表されることを特徴とする前記5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【 0 0 2 0 】

【 化 2 】

一般式(3)



10

【 0 0 2 1 】

(式中、AはO原子、S原子、NR₉基を表す。R₁～R₉は水素原子または置換基を表す。)

7. 白色発光することを特徴とする前記3～6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。

【 0 0 2 2 】

8. 前記3～7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を備えたことを特徴とする表示装置。

20

【 0 0 2 3 】

9. 前記3～7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を備えたことを特徴とする照明装置。

【 発明の 効果 】

【 0 0 2 4 】

本発明により、外部取り出し量子効率が高く、発光寿命が長く、低駆動電圧で、且つ高温保存性に優れる有機エレクトロルミネッセンス素子、そのための有機エレクトロルミネッセンス素子材料、該有機EL素子を用いる表示装置、及び照明装置を提供することができた。

【 図面の簡単な説明 】

30

【 0 0 2 5 】

【 図 1 】 有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

【 図 2 】 表示部の模式図である。

【 図 3 】 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 】 照明装置の断面図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 2 6 】

以下、本発明について詳述する。

40

【 0 0 2 7 】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子材料は、前記一般式(1)で表される高分子化合物を含有することを特徴とし、アルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を前記一般式(1)で表される高分子化合物に対して0.01～50質量%含有することを特徴とする。また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は該有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含むものである。

【 0 0 2 8 】

前記一般式(1)において、X₁～X₇はN原子またはCR基を表し、Rは水素原子または置換基を表す。但し、X₁～X₇の内、少なくとも一つはN原子である。また、X₁とX₂、X₂とX₃、X₃とX₄、X₆とX₇が同時にCR基である場合、R同士が互い

50

に結合し5員または6員の芳香環を形成してもよい。

【0029】

Rが表す置換基としては、置換基としてはシクロアルキル基、アルキニル基、芳香族炭化水素環基（芳香族炭素環基、アリール基とも言い、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、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、シクロアルキルチオ基、アリールチオ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、カルバモイル基、ウレイド基、スルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基またはヘテロアリールスルホニル基、アミノ基、ハロゲン原子、フッ化炭化水素基、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基等が挙げられる。

【0030】

平均重合度nは $3 \leq n \leq 1000$ を表し、好ましくは $3 \leq n \leq 500$ 、より好ましくは $5 \leq n \leq 100$ である。

【0031】

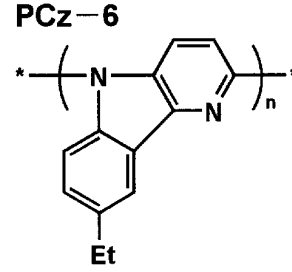
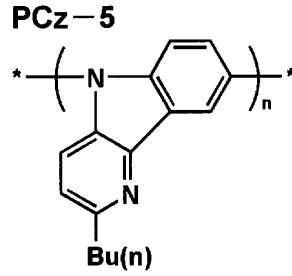
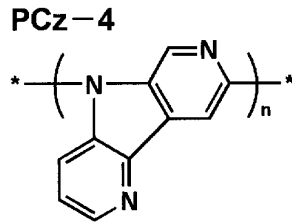
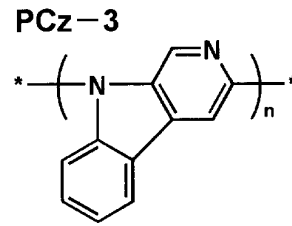
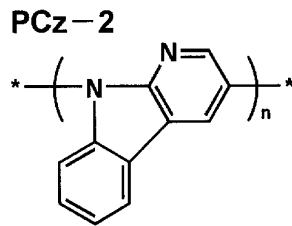
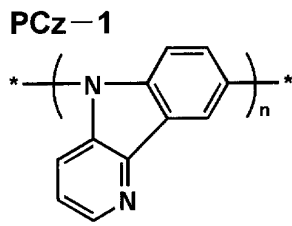
以下、一般式(1)で表される高分子化合物を示すが、これらに限定されるものではない。

【0032】

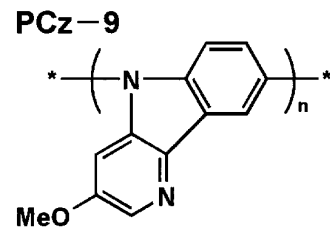
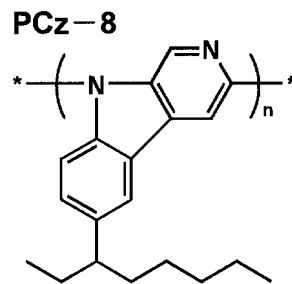
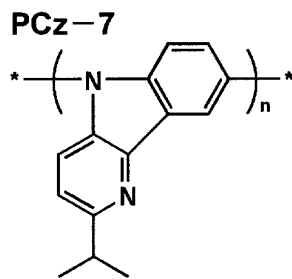
10

20

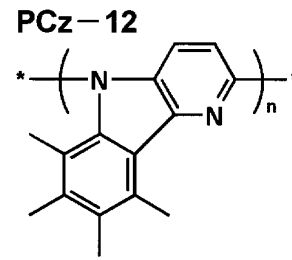
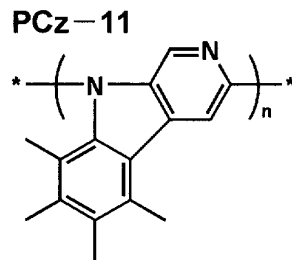
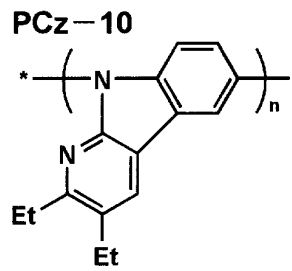
【化3】



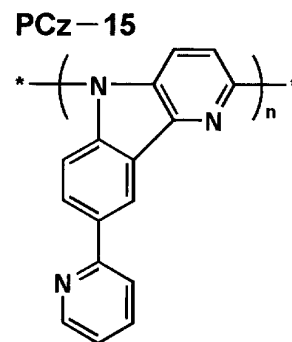
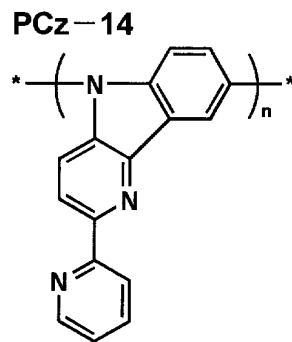
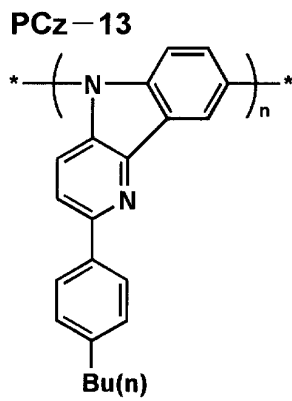
10



20



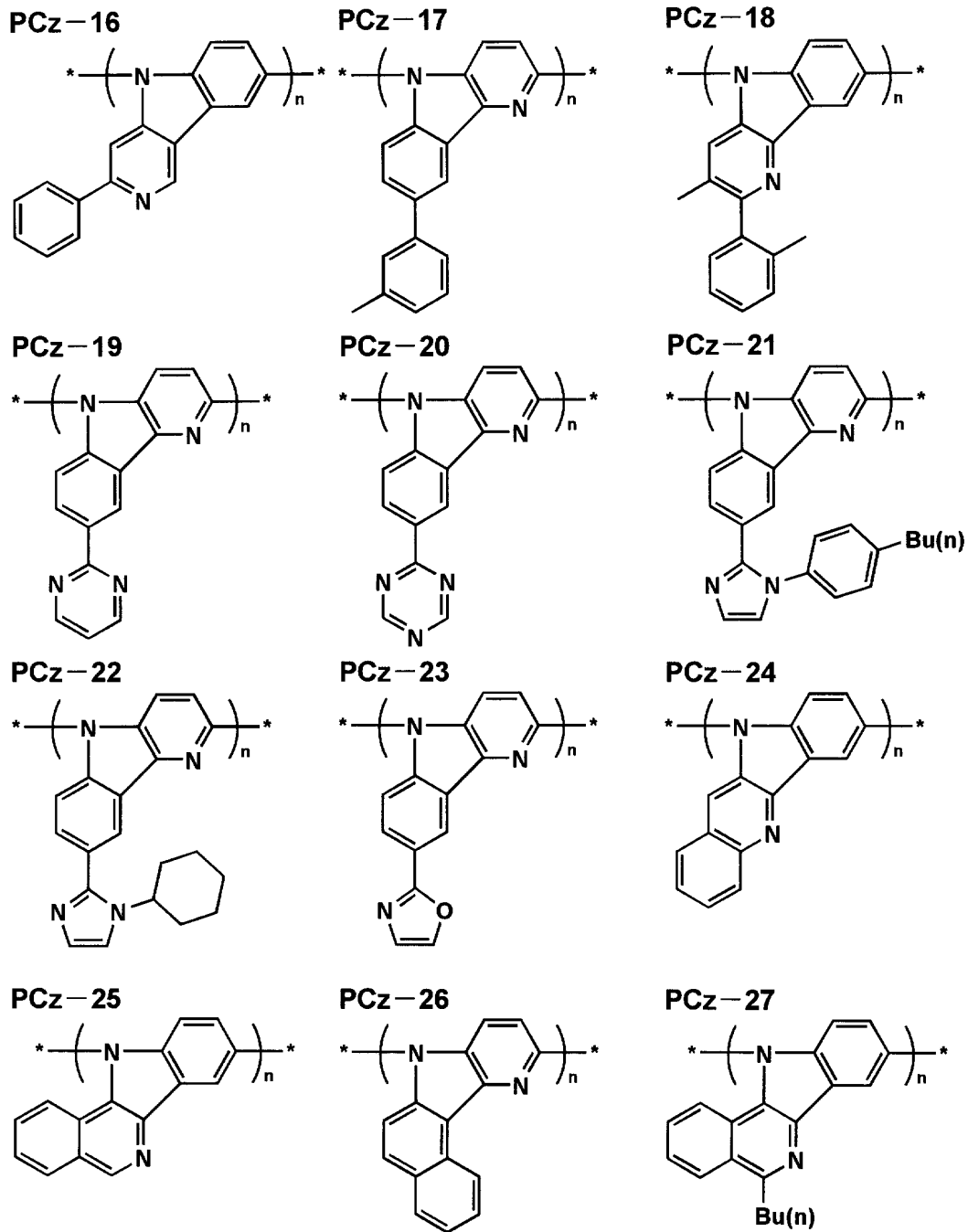
30



40

【0033】

【化4】



10

20

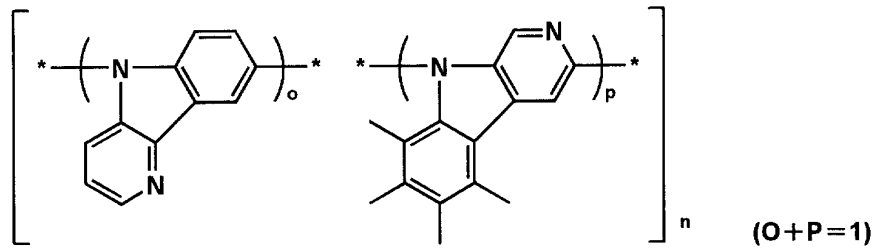
30

【0034】

40

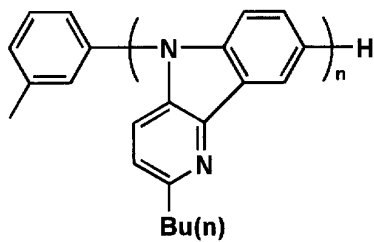
【化5】

co-Poly(Cz-1-Cz-11)

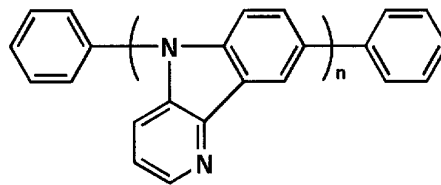


10

Ar-PCz-5-H



Ph-PCz-1-Ph



20

【0035】

以下、一般式(1)で表される高分子化合物の合成例を示す。

【0036】

合成例(PCz-1)

6-ブロモ-4-アザカルバゾール(494mg、2mmol)、酢酸パラジウム(45mg、0.2mmol)、トリ-t-ブチルホスフィン(80mg、0.4mmol)、ナトリウム-t-ブトキシド(231mg、2.4mmol)を50mlのキシレンに加え、窒素気流下、3時間加熱環流を行った。反応終了後、不溶物をろ別し、得られた溶液に10mlのヘキサンを加え再沈殿を行った。更に得られた化合物を20mlのキシレンに加熱しながら溶解し、10mlのヘキサンを加え再沈殿を行った。同様な操作を2回繰り返すことで、目的のPCz-1を80mg得ることができた。

30

【0037】

分子量や分子量分布等については、下記のGPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー)カラムを用いたHPLC(高速液体クロマトグラフ法)により決定した。結果、数平均分子量3500であった。

【0038】

測定装置 : HLC-8220GPC(高速GPC装置)

使用カラム : TSKgel SuperHM-M(排除限界: 4×10^6)

溶媒量 : テトラヒドロフラン(THF)

測定温度 : 40

カラム流量 : 0.6ml/分

検量線 : 標準ポリスチレンを用いて検量線を作成した。

40

【0039】

その他の一般式(1)で表される高分子化合物も、上記と同様にして合成することができる。また、既知の他の合成・重合反応を組み合わせて使用しても構わない。また、重合反応終了後、N-アリール化反応やアリールハライドの還元反応により、重合体末端の処理を行っても構わない。

【0040】

50

一般式(2)において、Lは置換していてもよい縮合した芳香族複素環、Qは置換していてもよい芳香族炭化水素環または芳香族複素環であり、n、mはそれぞれ1~3の整数である。nが2以上の時はLは互いに異なっていてもよく、mが2以上の時はQは互いに異なっていてもよい。

【0041】

一般式(2)で表される化合物は、更には下記一般式(4)~(100)のいずれかで表される化合物である。

【0042】

【化 6】

- | | | | | |
|----------------|------------|----------------|------------|----|
| (4) L-Q | (m=1, n=1) | (5) L-Q-L | (m=1, n=2) | |
| (6) L-L-Q | (m=1, n=2) | (7) L-Q-L | (m=1, n=3) | |
| | | | | |
| | | L | | |
| (8) L-Q-L-L | (m=1, n=3) | (9) L-L-L-Q | (m=1, n=3) | |
| (10) Q-L-Q | (m=2, n=1) | (11) Q-Q-L | (m=2, n=1) | |
| (12) Q-L-Q | (m=3, n=1) | (13) Q-L-Q-Q | (m=3, n=1) | 10 |
| | | | | |
| Q | | | | |
| (14) Q-Q-Q-L | (m=3, n=1) | (15) Q-Q-Q | (m=3, n=1) | |
| | | | | |
| | | L | | |
| (16) L-Q-L-Q | (m=2, n=2) | (17) L-Q-Q | (m=2, n=2) | |
| | | | | |
| | | L | | |
| (18) L-Q-Q-L | (m=2, n=2) | (19) Q-L-L-Q | (m=2, n=2) | |
| (20) Q-L-L | (m=2, n=2) | (21) L-Q-L | (m=2, n=2) | |
| | | | | |
| Q | | Q | | |
| (22) L-Q-L-Q | (m=3, n=2) | (23) L | (m=3, n=2) | 20 |
| | | | | |
| Q | | Q-L-Q | | |
| | | | | |
| | | Q | | |
| (24) L-Q-L-Q-Q | (m=3, n=2) | (25) Q-L-Q-Q-L | (m=3, n=2) | |
| (26) Q-L-Q-Q | (m=3, n=2) | (27) Q-L-Q-Q | (m=3, n=2) | |
| | | | | |
| L | | L | | |
| (28) Q-L-Q-L-Q | (m=3, n=2) | (29) L-Q-Q-Q-L | (m=3, n=2) | |
| (30) Q-Q-Q-L-L | (m=3, n=2) | (31) Q-Q-Q-L | (m=3, n=2) | |
| | | | | |
| | | L | | |
| (32) Q-Q-Q-L | (m=3, n=2) | (33) Q-Q-Q | (m=3, n=2) | 30 |
| | | | | |
| L | | L-L | | |
| (34) L | (m=3, n=2) | (35) Q-L-Q-L | (m=2, n=3) | |
| | | | | |
| Q-Q-Q | | L | | |
| | | | | |
| L | | | | |
| (36) Q | (m=2, n=3) | (37) Q-L-Q-L-L | (m=2, n=3) | |
| | | | | |
| L-Q-L | | | | |
| | | | | |
| L | | | | |
| (38) L-Q-L-L-Q | (m=2, n=3) | (39) L-Q-L-L | (m=2, n=3) | |
| | | | | |
| | | Q | | |
| (40) L-Q-L-L | (m=2, n=3) | (41) Q-L-L-L-Q | (m=2, n=3) | 40 |
| | | | | |
| Q | | | | |
| (42) L-L-L-Q-Q | (m=2, n=3) | (43) L-L-L-Q | (m=2, n=3) | |
| | | | | |
| | | Q | | |

【化7】

- | | | | | | |
|------|---|------------|------|---|------------|
| (44) | $\begin{array}{c} \text{L-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=2, n=3) | (45) | $\begin{array}{c} \text{Q-Q-L-L} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=2, n=3) |
| (46) | $\begin{array}{c} \text{Q} \\ \\ \text{L-L-L} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=2, n=3) | (47) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-Q-L} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=2, n=3) |
| (48) | L-L-Q-Q-L | (m=2, n=3) | (49) | $\begin{array}{c} \text{Q-Q-L-Q-L} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (50) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-Q-L} \\ \quad \\ \text{Q} \quad \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (51) | $\begin{array}{c} \text{Q} \\ \\ \text{Q-L-Q-L} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (52) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-Q-L-Q} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (53) | $\begin{array}{c} \text{L} \\ \\ \text{L-Q-Q-Q} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (54) | $\begin{array}{c} \text{Q} \\ \\ \text{Q-L-Q-L} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (55) | Q-Q-L-Q-L-L | (m=3, n=3) |
| (56) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-Q-L-L} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (57) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-Q-L-L} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (58) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-Q-L-L} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (59) | Q-L-Q-L-L-Q | (m=3, n=3) |
| (60) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (61) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (62) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (63) | L-Q-L-L-Q-Q | (m=3, n=3) |
| (64) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-L-L} \\ \quad \\ \text{Q} \quad \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (65) | $\begin{array}{c} \text{L-Q-L-Q-Q} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (66) | $\begin{array}{c} \text{Q} \\ \\ \text{L-Q-L-L} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (67) | $\begin{array}{c} \text{L-L-Q-Q-Q} \\ \\ \text{L} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (68) | Q-Q-L-L-L-Q | (m=3, n=3) | (69) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (70) | $\begin{array}{c} \text{Q-L-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (71) | L-L-L-Q-Q-Q | (m=3, n=3) |
| (72) | $\begin{array}{c} \text{L-L-L-Q-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (73) | $\begin{array}{c} \text{L-L-L-Q-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) |
| (74) | $\begin{array}{c} \text{L-L-L-Q-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) | (75) | $\begin{array}{c} \text{Q} \\ \\ \text{L-L-L-Q} \\ \\ \text{Q} \end{array}$ | (m=3, n=3) |

10

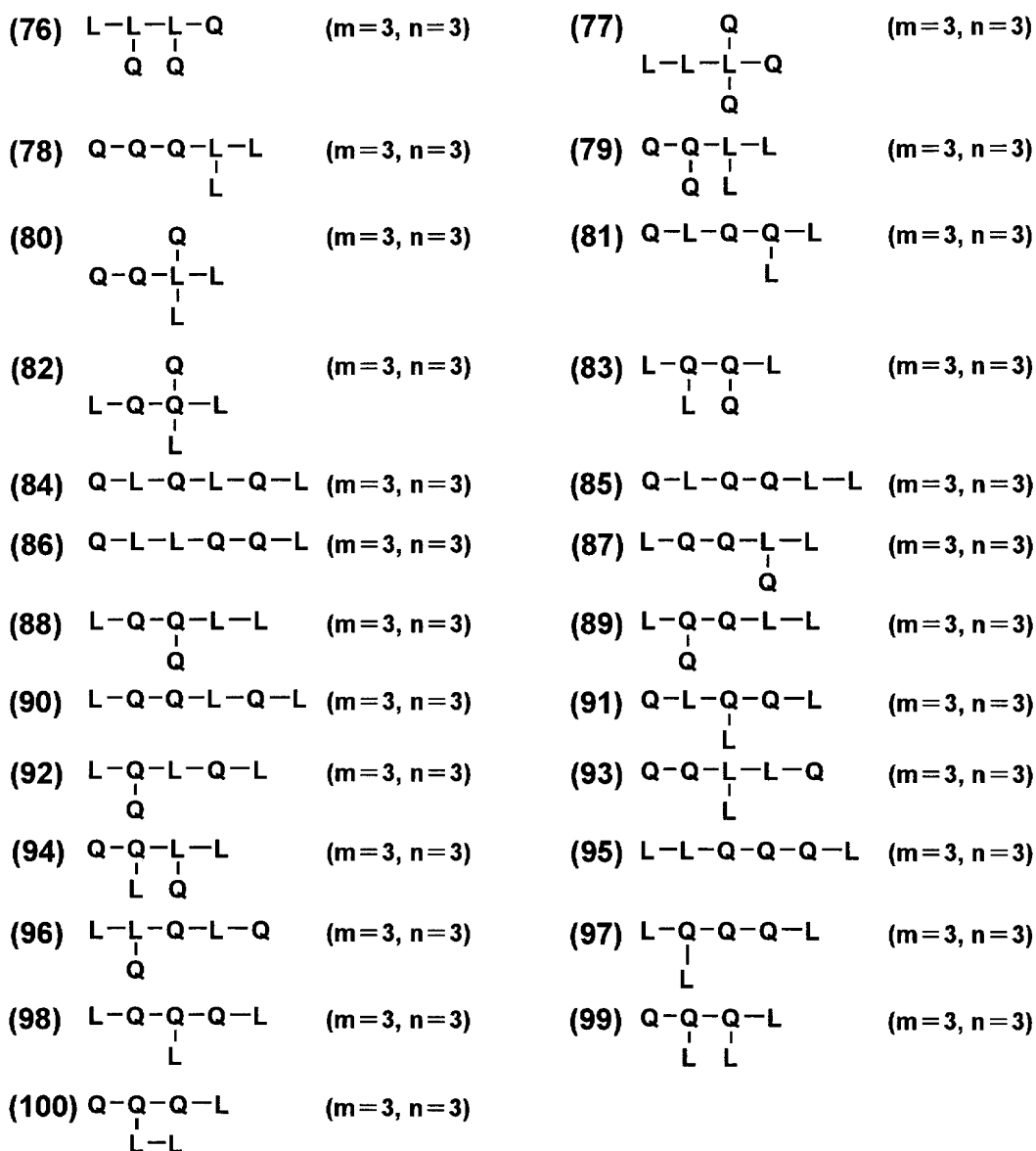
20

30

40

【0044】

【化 8】



10

20

30

【0045】

一般式(2)で表される化合物または一般式(4)~(100)のいずれかで表される化合物において、Lで表される置換していてもよい縮合した芳香族複素環としては、具体的には、アクリジン環、ベンゾキノリン環、カルバゾール環、フェナジン環、フェナントリジン環、フェナントロリン環、カルボリン環、サイクラジン環、キンドリン環、テペニジン環、キニンドリン環、トリフェノジチアジン環、トリフェノジオキサジン環、フェナントラジン環、アントラジン環、ペリミジン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素原子の任意の一つが窒素原子で置き換わったものを表す)、フェナントロリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、ナフトフラン環、ナフトチオフエン環、ベンゾジフラン環、ベンゾジチオフエン環、ナフトジフラン環、ナフトジチオフエン環、アントラフラン環、アントラジフラン環、アントラチオフエン環、アントラジチオフエン環、チアントレン環、フェノキサチイン環、チオフアントレン環(ナフトチオフエン環)等が挙げられる。

40

【0046】

中でも、カルバゾール環、カルボリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環等

50

が好ましい。

【0047】

また、これらの環は後述する置換基を有していてもよい。

【0048】

一般式(2)で表される化合物または一般式(4)~(100)のいずれかで表される化合物において、Qで表される置換していてもよい芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、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。

10

【0049】

更に、これらの環は後述する置換基を有していてもよい。

【0050】

一般式(2)で表される化合物または一般式(4)~(100)のいずれかで表される化合物において、Qで表される置換していてもよい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、インダゾール環、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、シンノリン環、キノリン環、イソキノリン環、フタラジン環、ナフチリジン環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(カルボリン環を構成する炭素原子の一つが更に窒素原子で置換されている環を示す)等が挙げられる。

20

【0051】

更にこれらの環は後述する置換基を有していてもよい。

【0052】

本発明では、本発明に係る一般式(2)で表される化合物のLが、上記一般式(3)で表されることが好ましい。

【0053】

一般式(3)のAで表される-NR₉基を含め、R₁~R₉が置換基を表すとき、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、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、1-プロペニル基、2-ブテニル基、1,3-ブタジエニル基、2-ペンテニル基、イソプロペニル基等)、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、芳香族複素環基、アリール基等とも言い、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、ピレニル基等)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する任意の炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリル基、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

30

40

50

オ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、アリールオキシカルボニル基（例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等）、スルファモイル基（例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2 - ピリジ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。

【0054】

これらの置換基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。

【0055】

また、本発明に係る一般式(2)で表される化合物は、少なくとも一つのピリジン環を有することが好ましい。

【0056】

以下、本発明に係る一般式(2)で表される化合物として、好ましく用いら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ない。

10

20

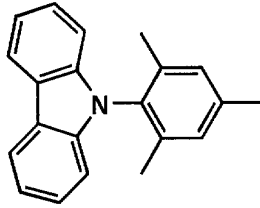
30

40

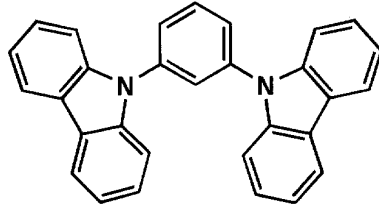
50

【 0 0 5 7 】
【 化 9 】

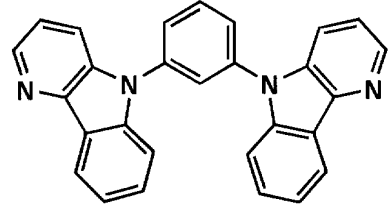
HS-1



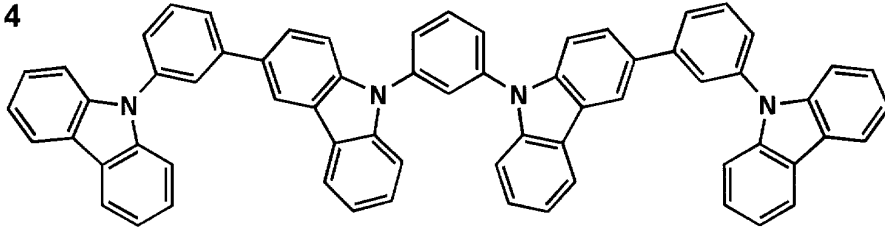
HS-2



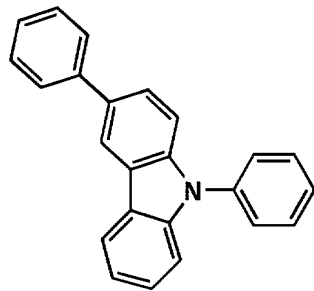
HS-3



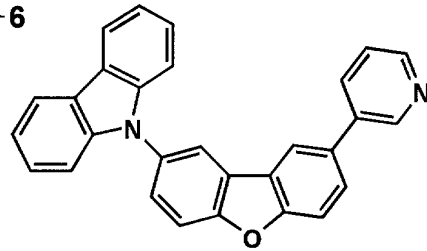
HS-4



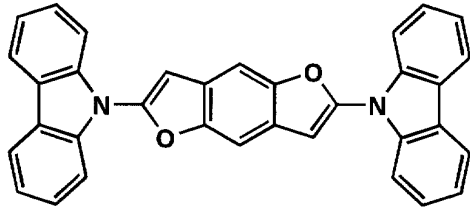
HS-5



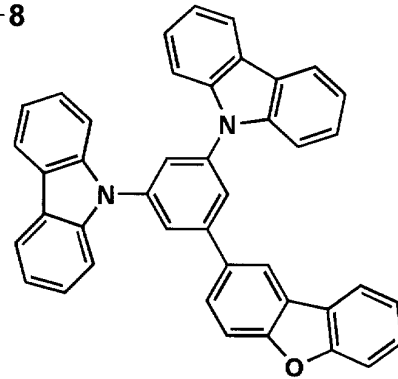
HS-6



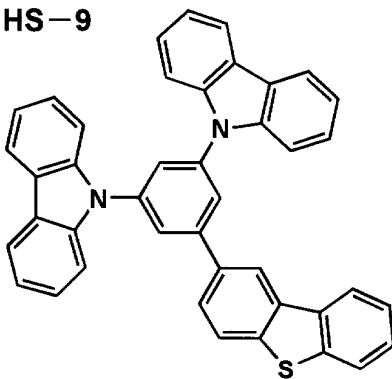
HS-7



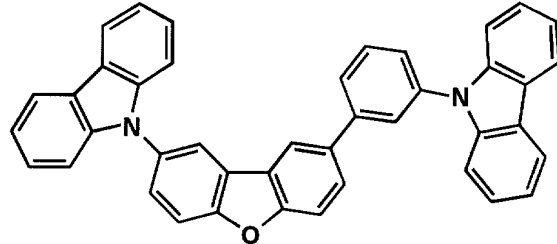
HS-8



HS-9



HS-10



【 0 0 5 8 】

10

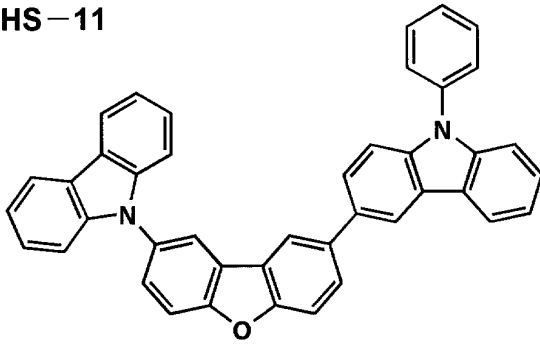
20

30

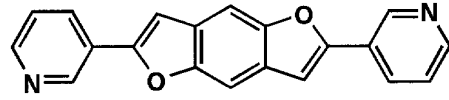
40

【化 1 0】

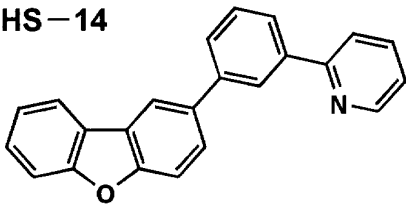
HS-11



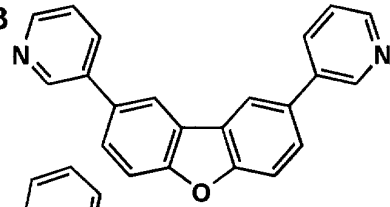
HS-12



HS-14

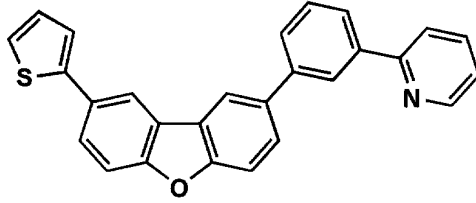


HS-13

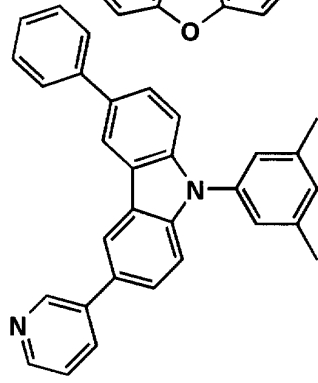


10

HS-16

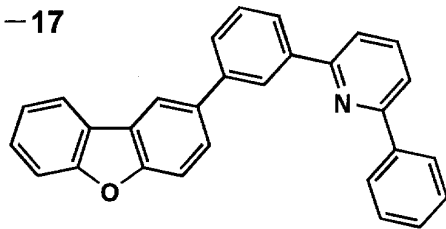


HS-15

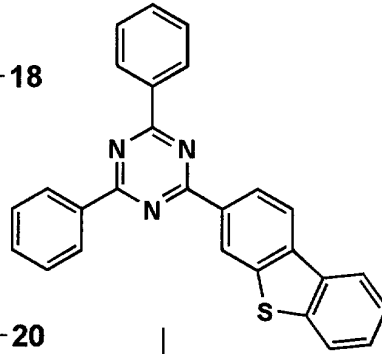


20

HS-17

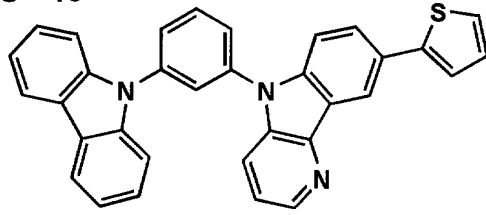


HS-18

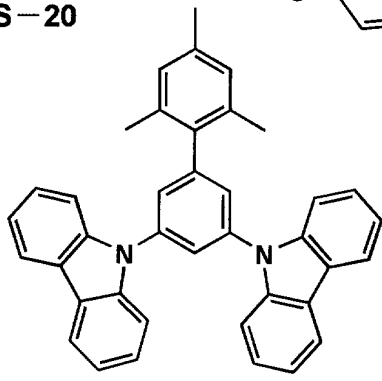


30

HS-19

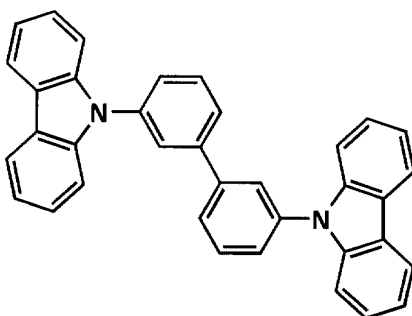


HS-20



40

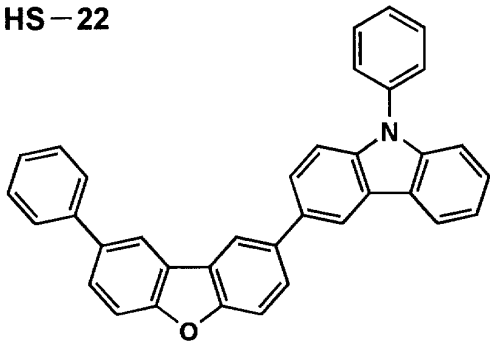
HS-21



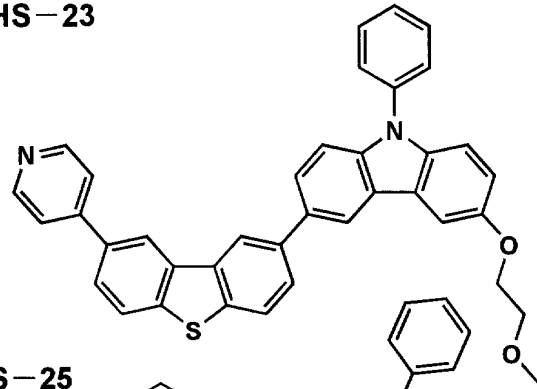
【 0 0 5 9 】

【化 1 1】

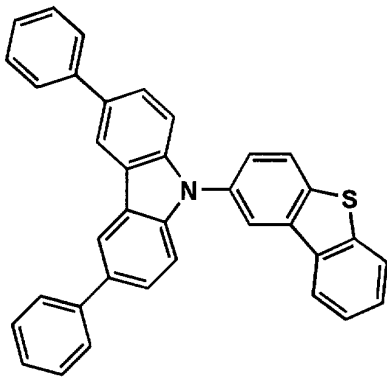
HS-22



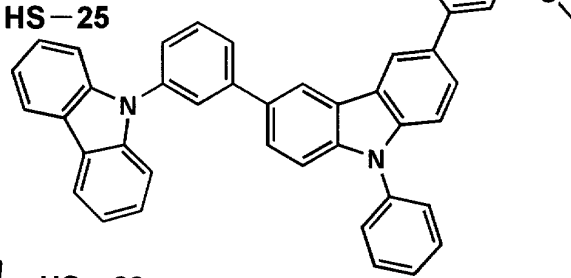
HS-23



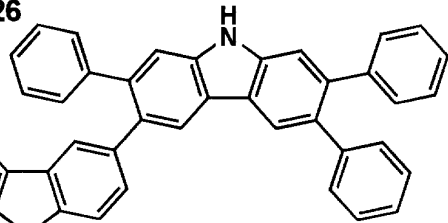
HS-24



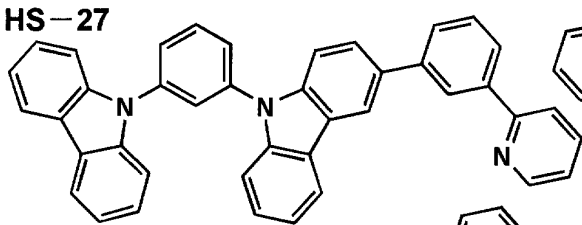
HS-25



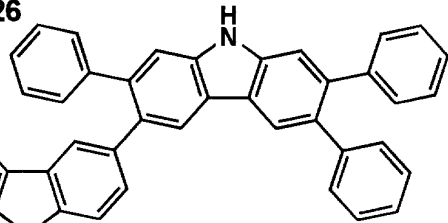
HS-26



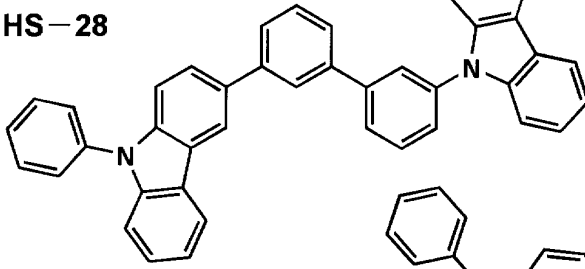
HS-27



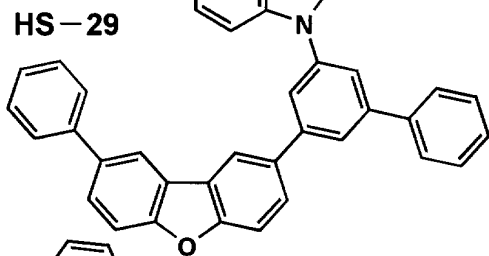
HS-28



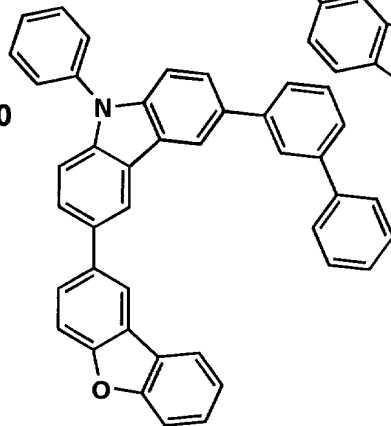
HS-28



HS-29



HS-30



10

20

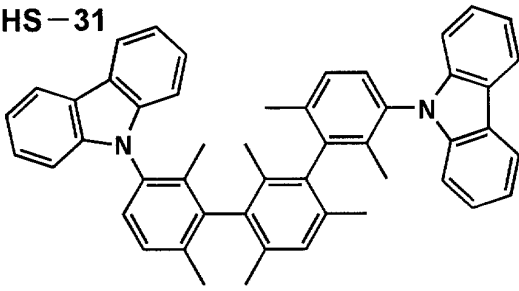
30

40

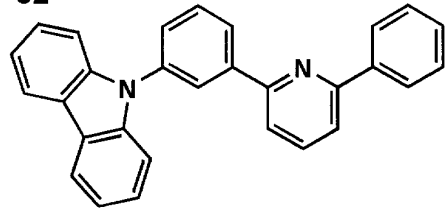
【 0 0 6 0 】

【化 1 2】

HS-31

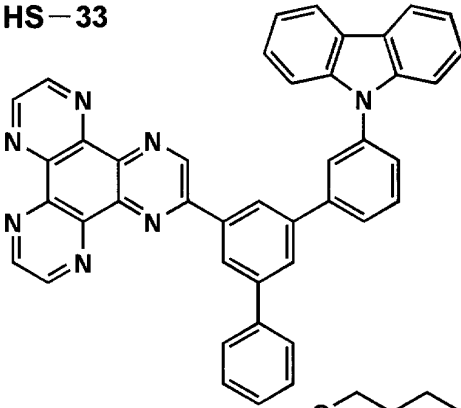


HS-32

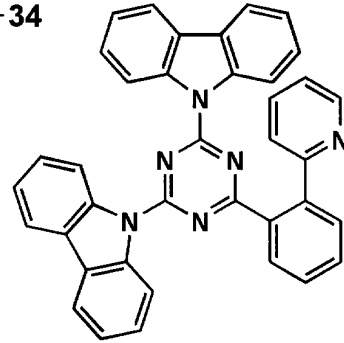


10

HS-33

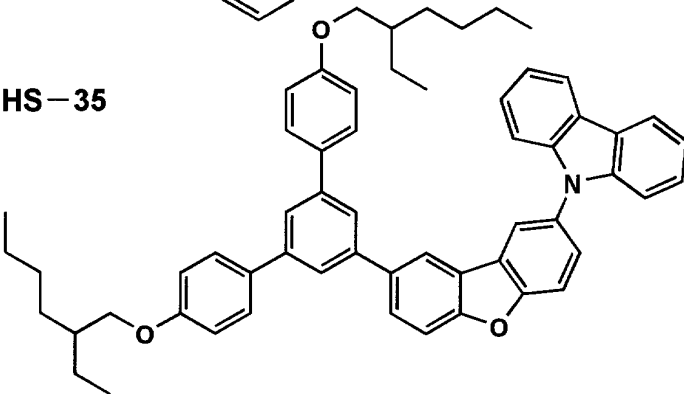


HS-34

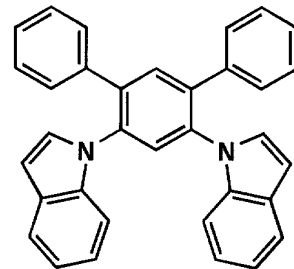


20

HS-35

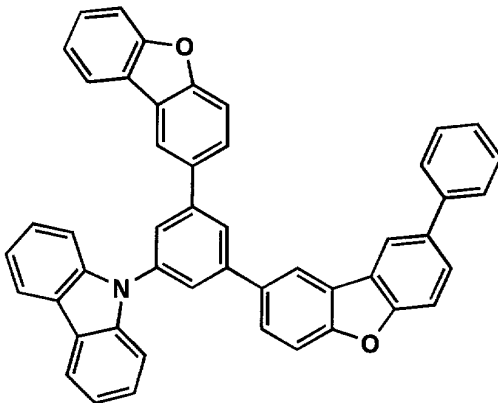


HS-36

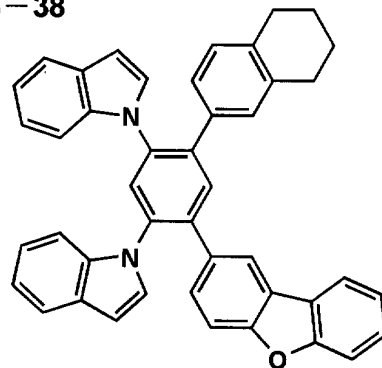


30

HS-37



HS-38

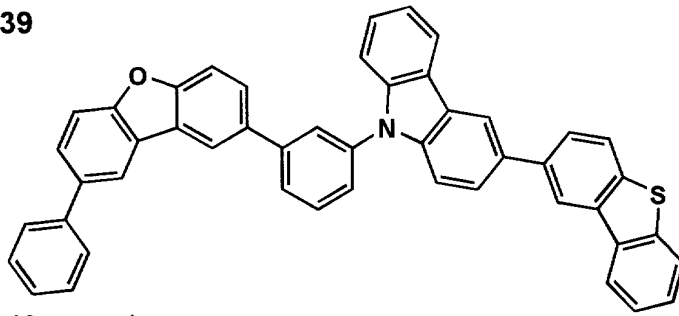


40

【 0 0 6 1】

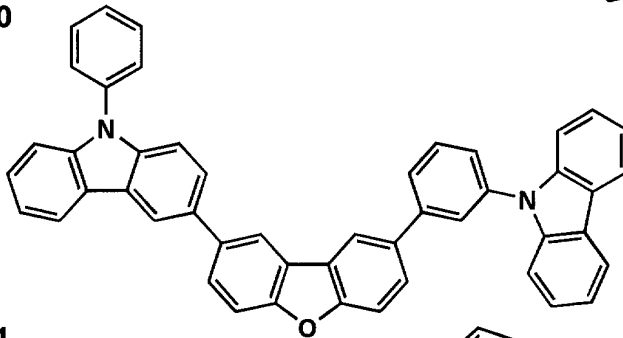
【化 1 3】

HS-39

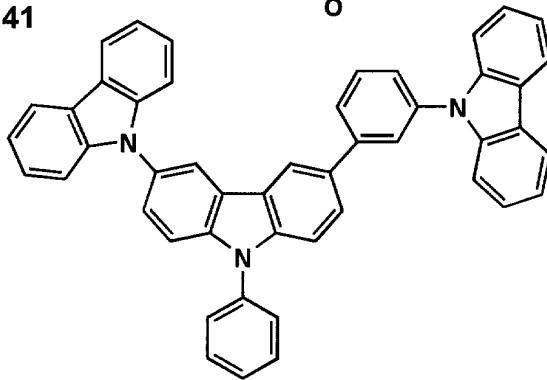


10

HS-40

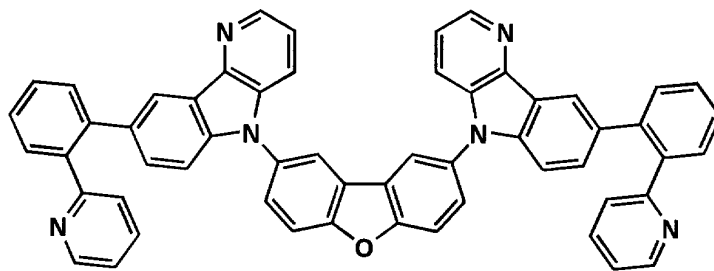


HS-41



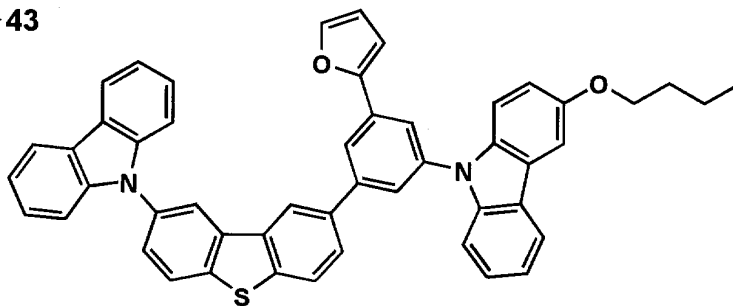
20

HS-42



30

HS-43

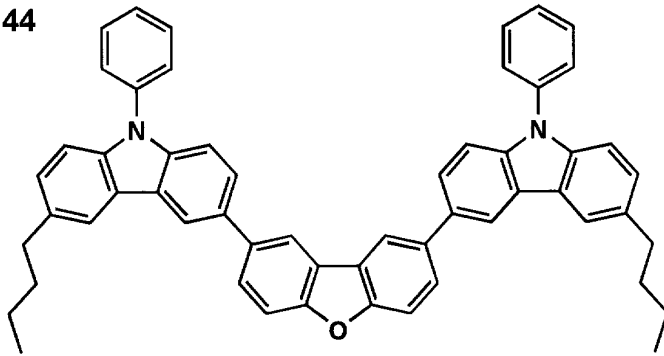


40

【 0 0 6 2】

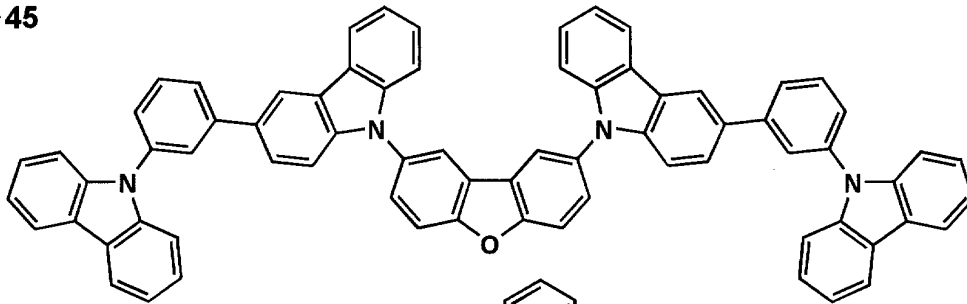
【化 1 4】

HS-44



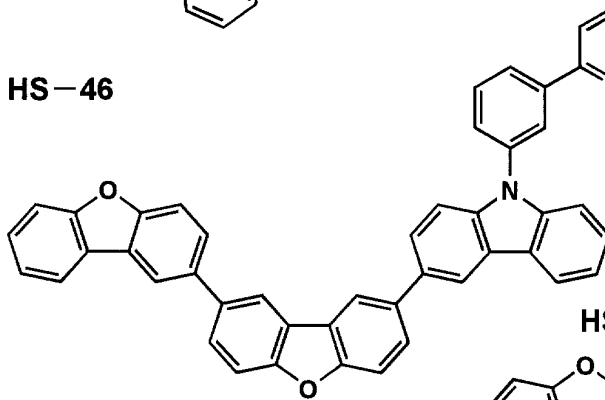
10

HS-45

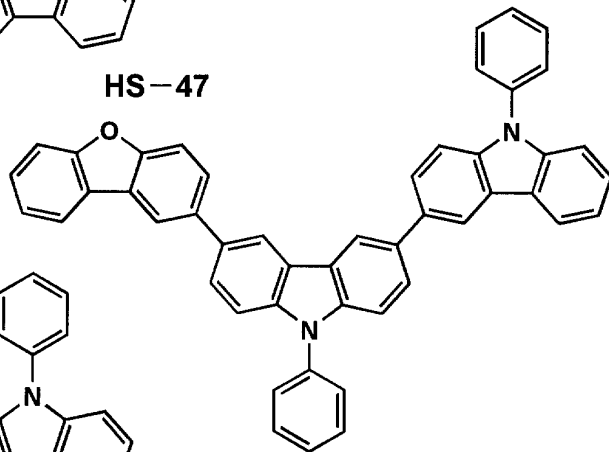


20

HS-46

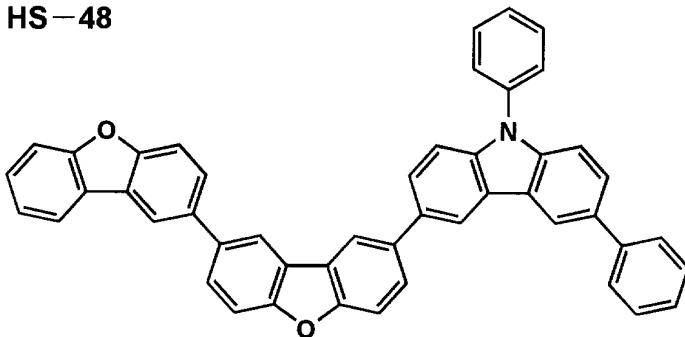


HS-47



30

HS-48

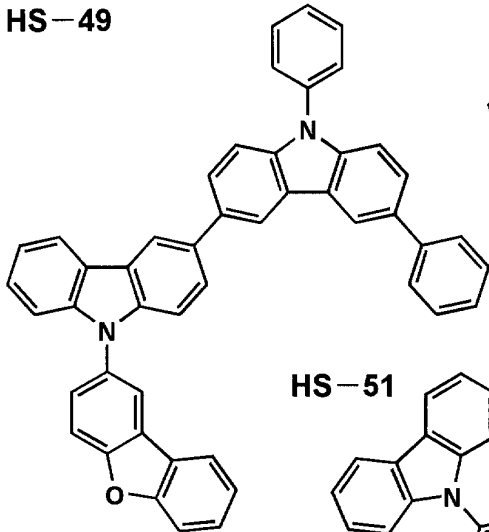


40

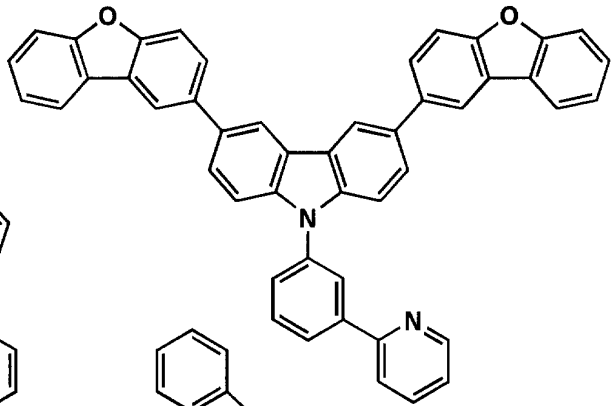
【 0 0 6 3 】

【化 1 5】

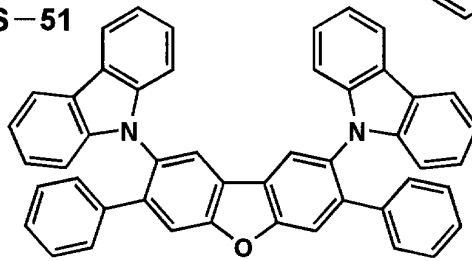
HS-49



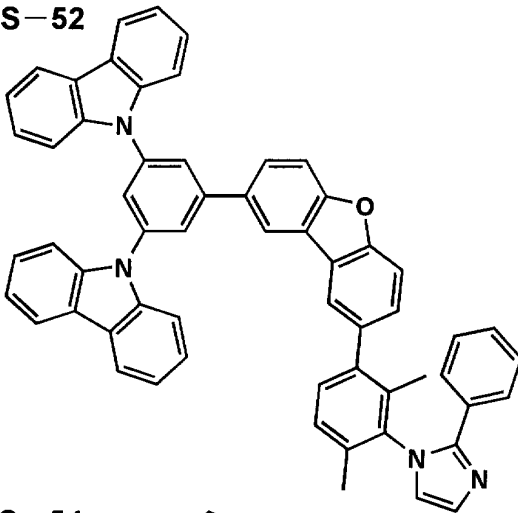
HS-50



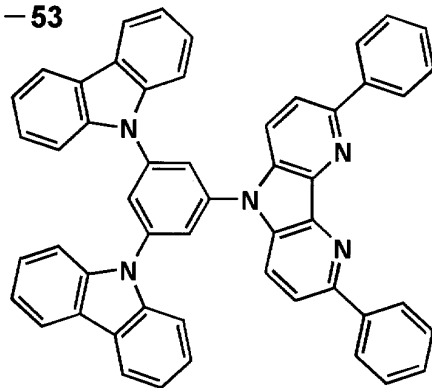
HS-51



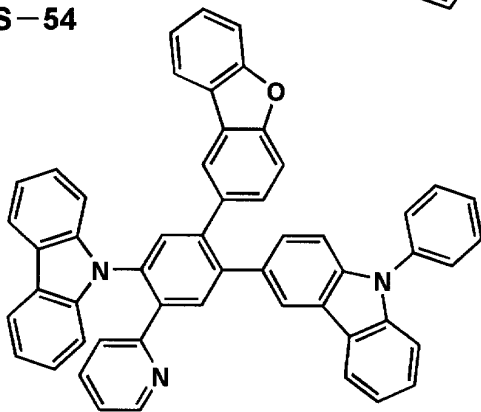
HS-52



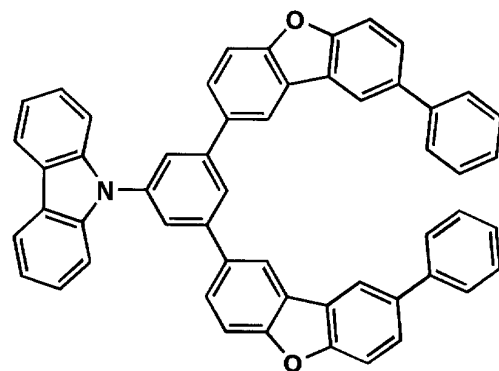
HS-53



HS-54



HS-55



10

20

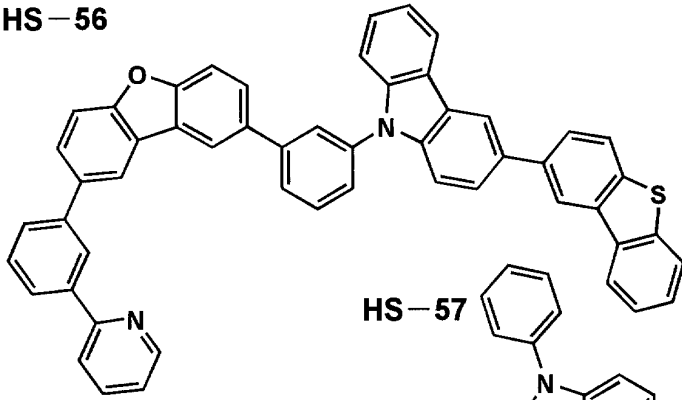
30

40

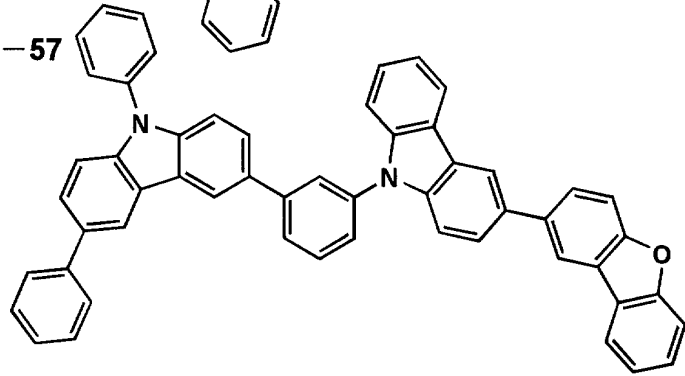
【 0 0 6 4】

【化 1 6】

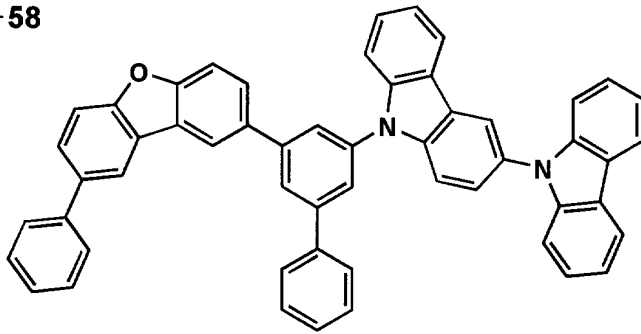
HS-56



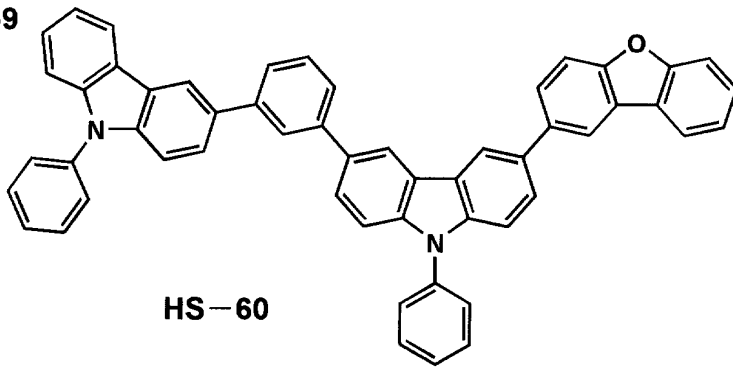
HS-57



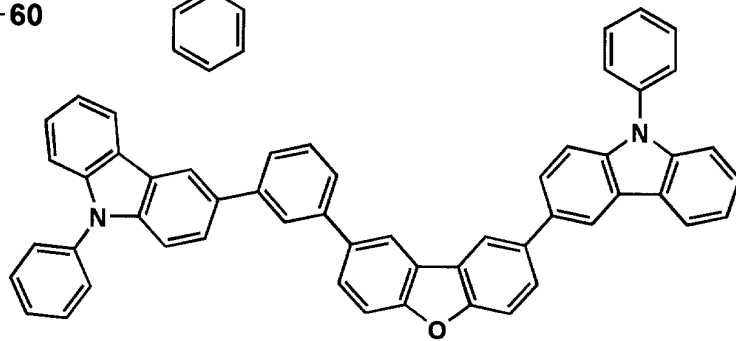
HS-58



HS-59



HS-60



10

20

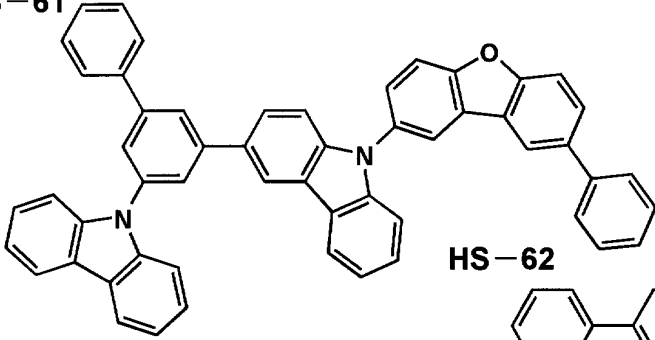
30

40

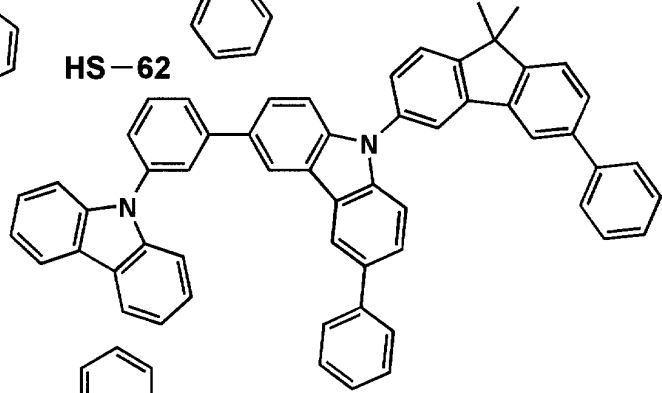
【 0 0 6 5】

【化 17】

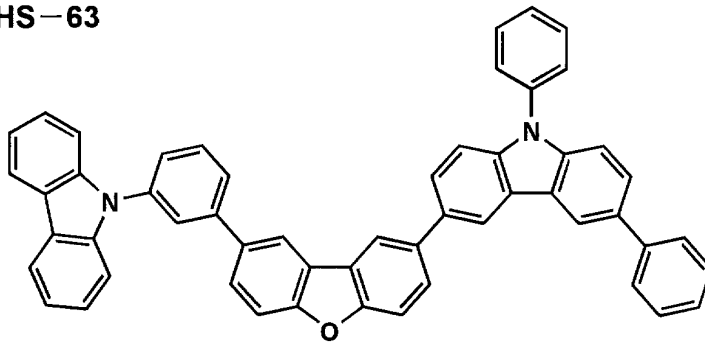
HS-61



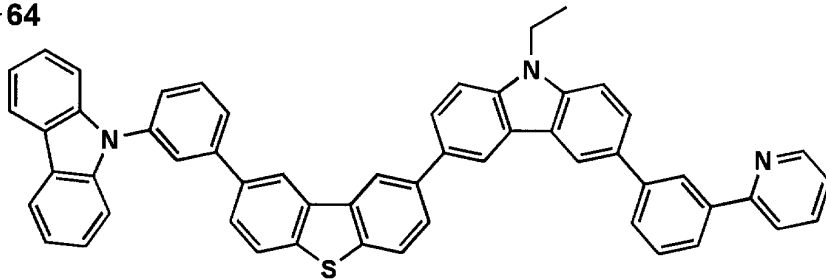
HS-62



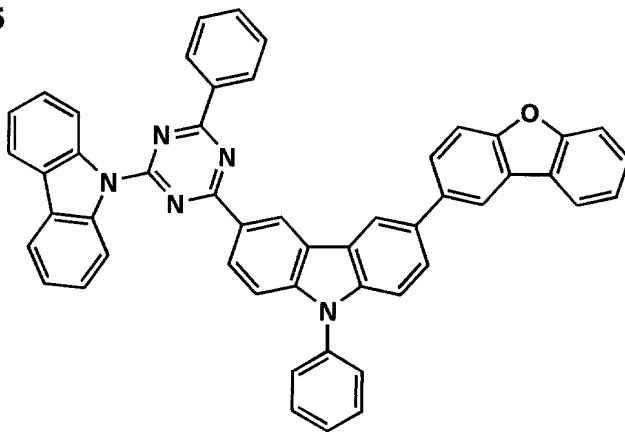
HS-63



HS-64



HS-65



10

20

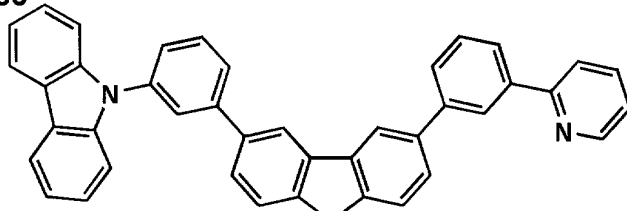
30

40

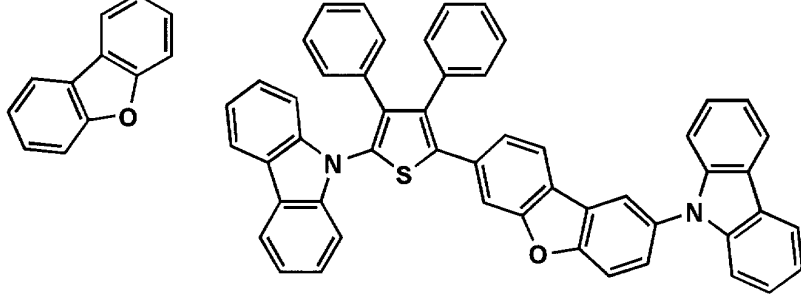
【 0 0 6 6 】

【化 1 8】

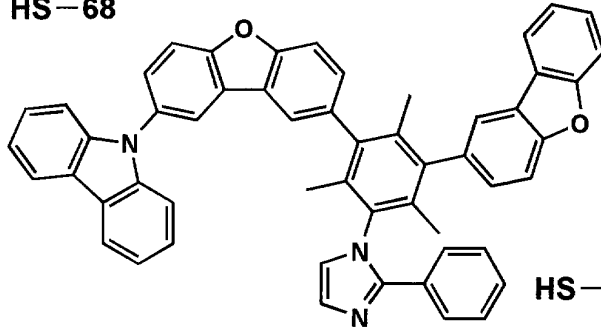
HS-66



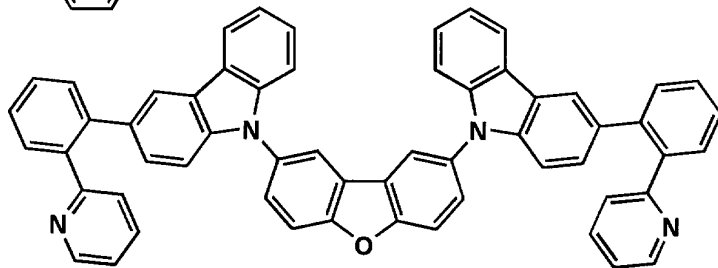
HS-67



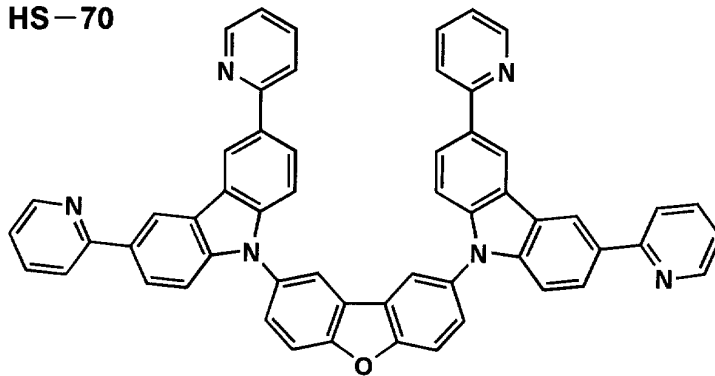
HS-68



HS-69



HS-70



【 0 0 6 7 】

10

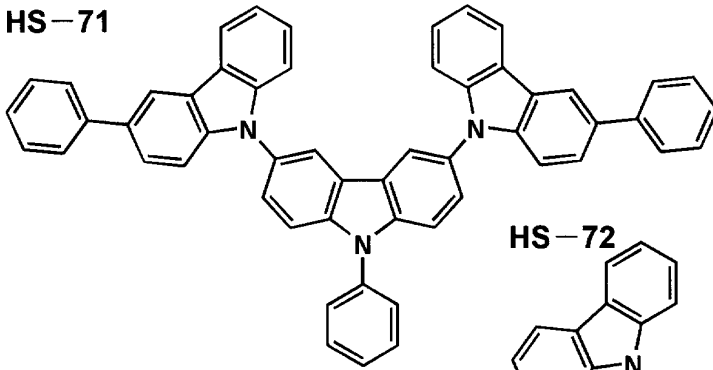
20

30

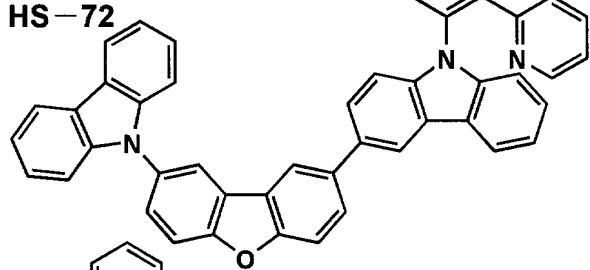
40

【化 19】

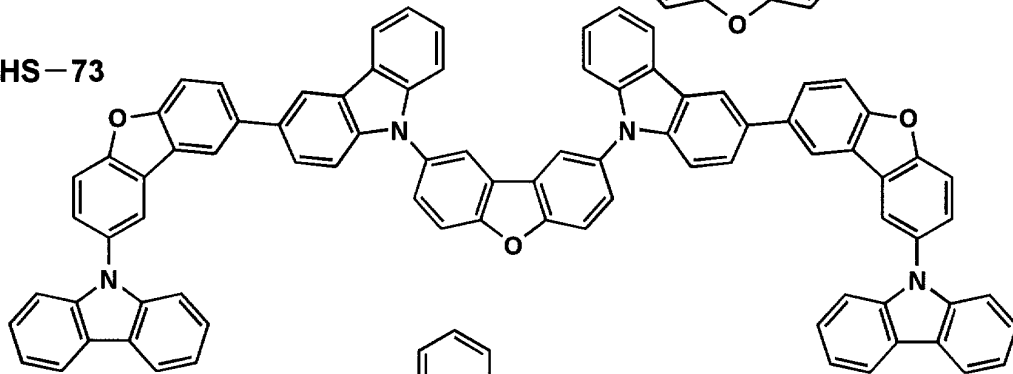
HS-71



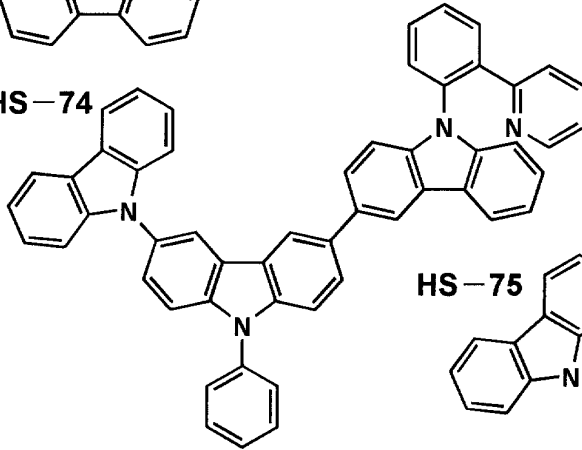
HS-72



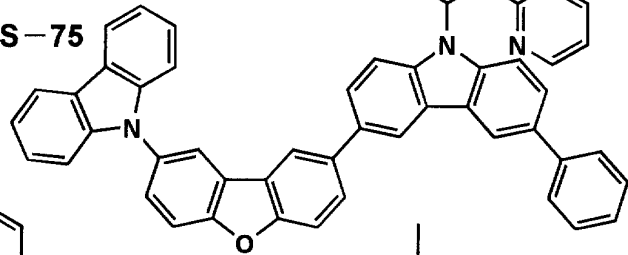
HS-73



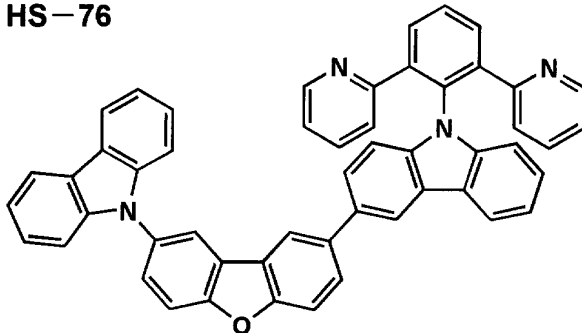
HS-74



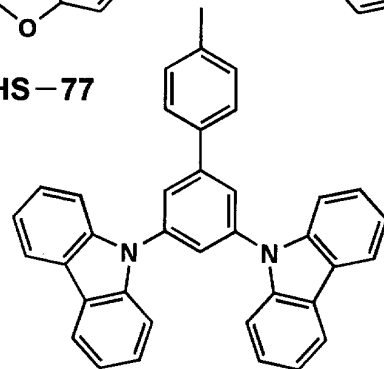
HS-75



HS-76



HS-77



10

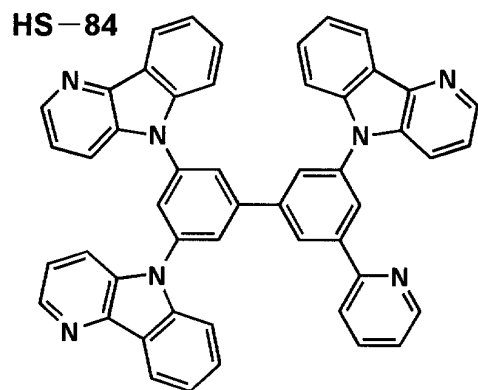
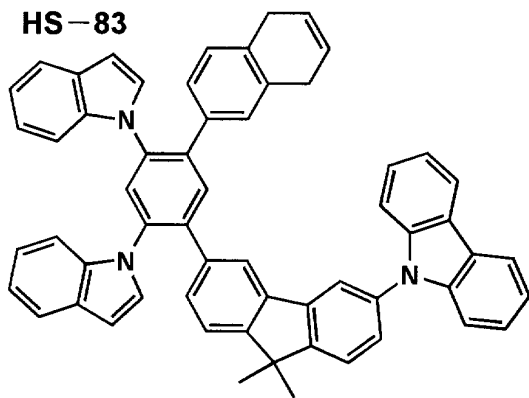
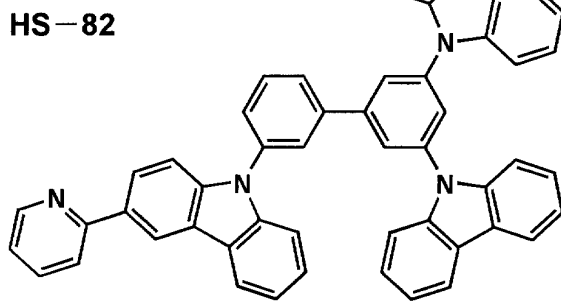
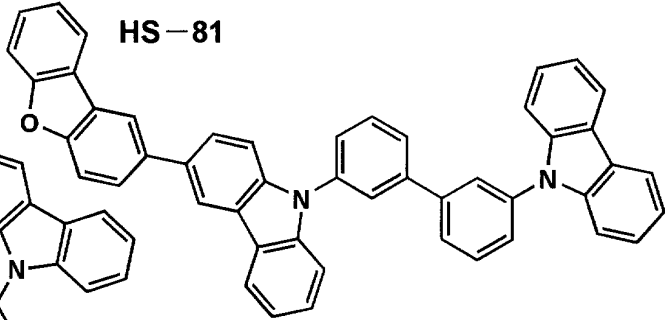
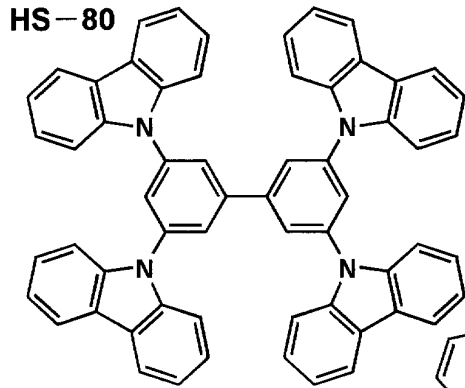
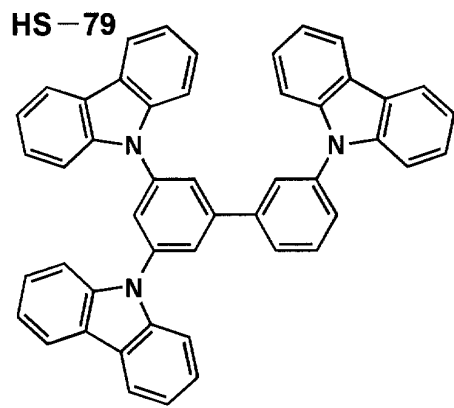
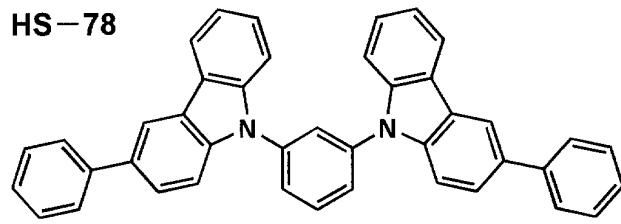
20

30

40

【 0 0 6 8 】

【化 2 0】



10

20

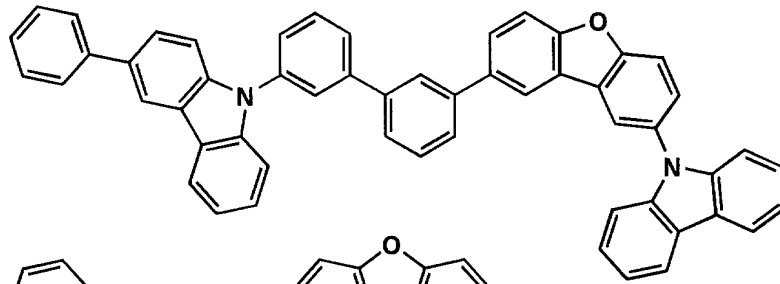
30

40

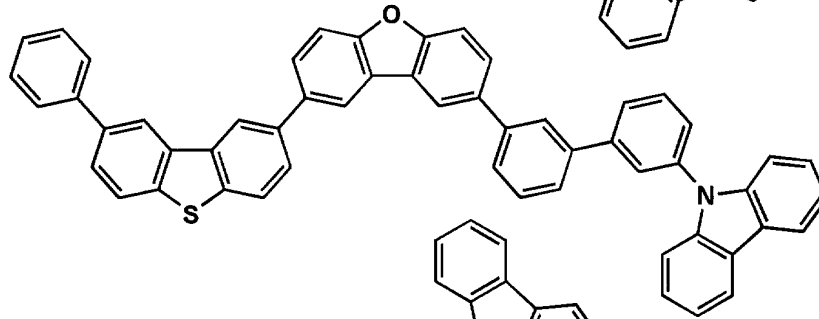
【 0 0 6 9 】

【化 2 1】

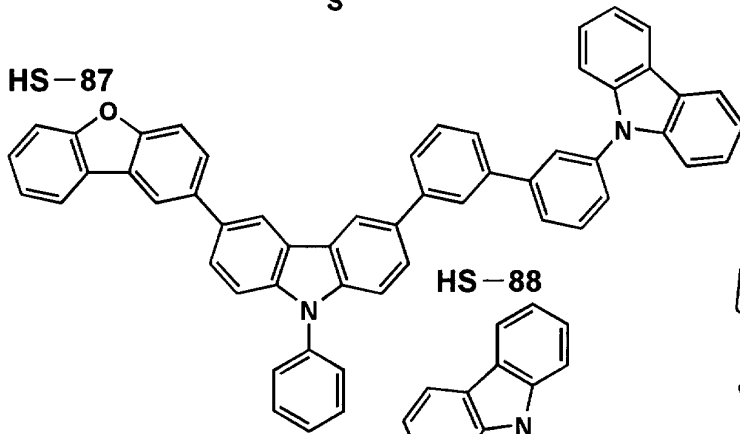
HS-85



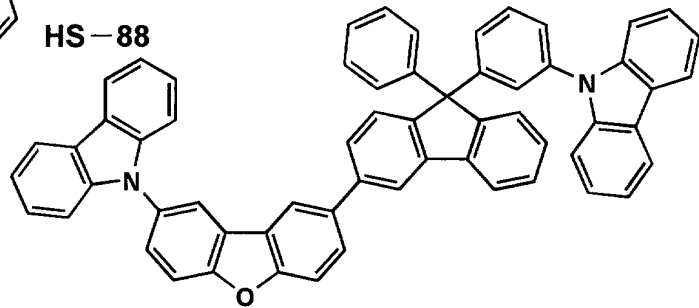
HS-86



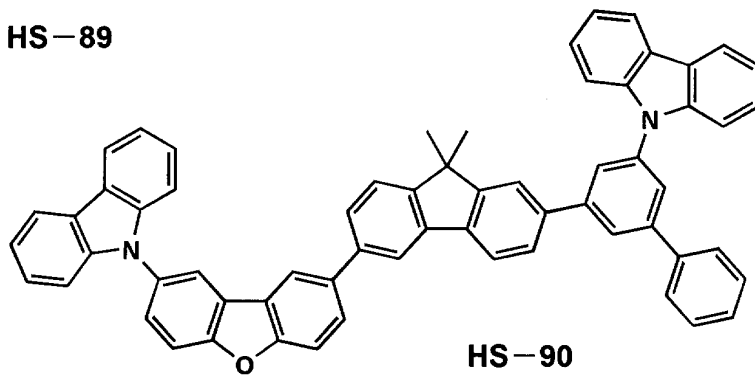
HS-87



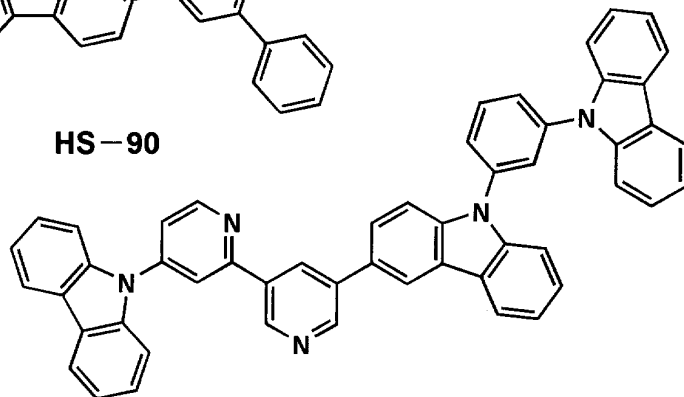
HS-88



HS-89



HS-90



10

20

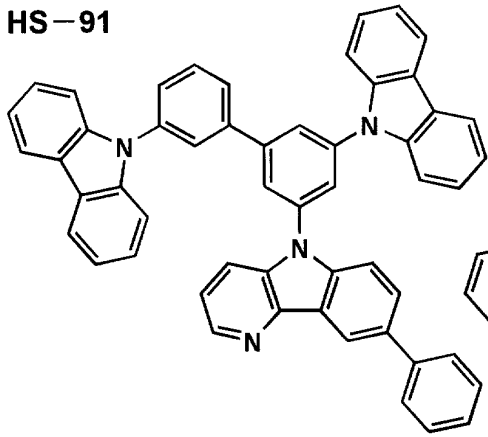
30

40

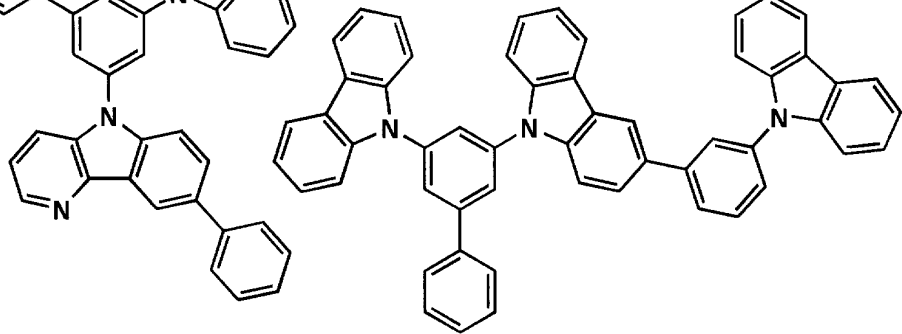
【 0 0 7 0 】

【化 2 2】

HS-91

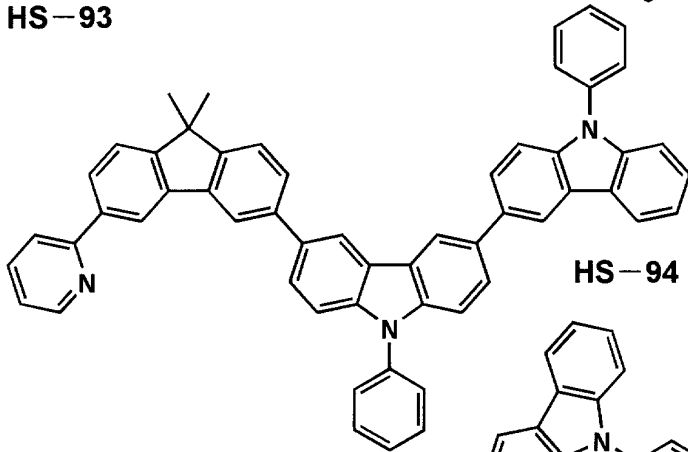


HS-92



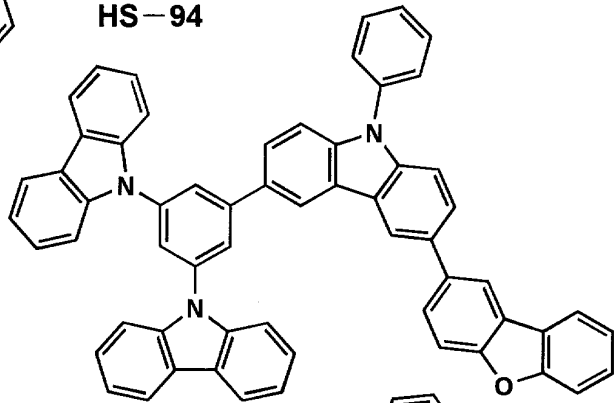
10

HS-93



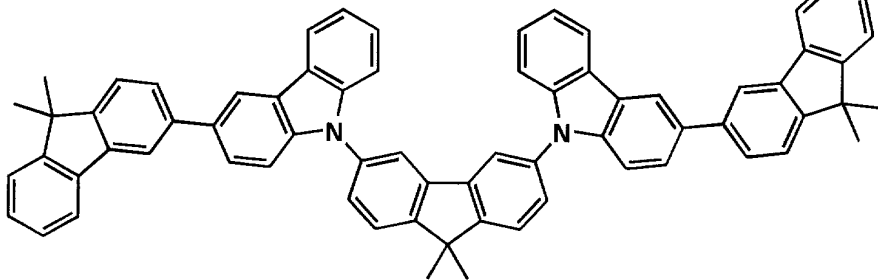
20

HS-94



30

HS-95

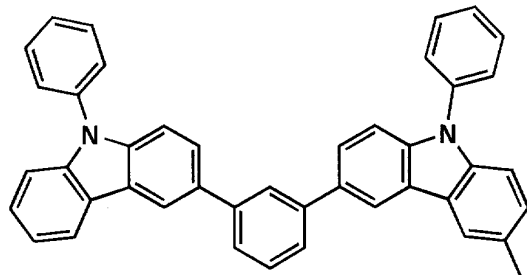


40

【 0 0 7 1 】

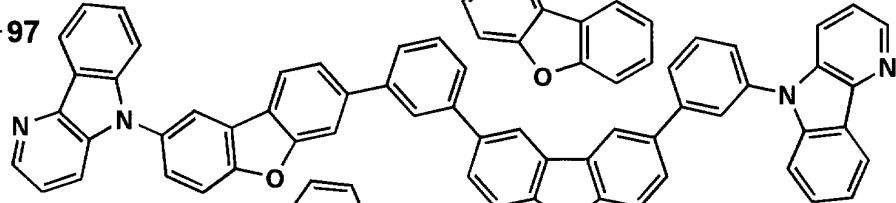
【化 2 3】

HS-96

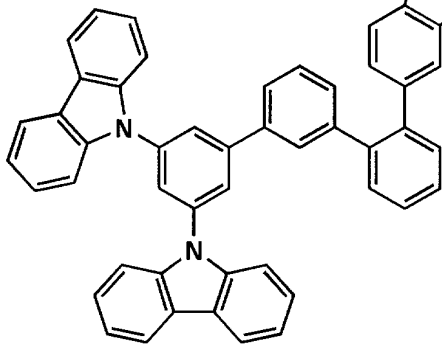


10

HS-97

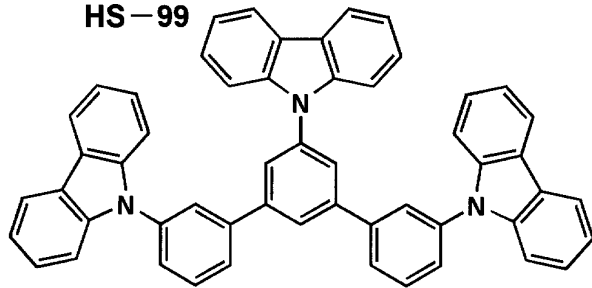


HS-98



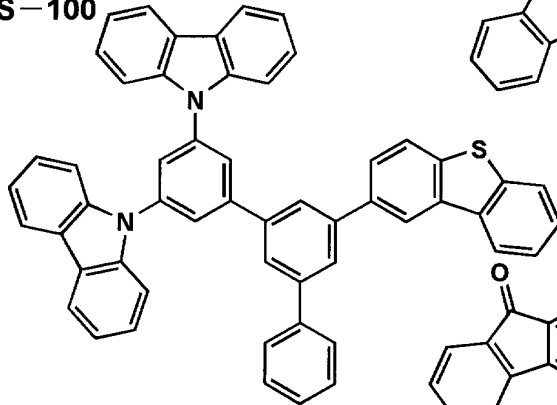
20

HS-99

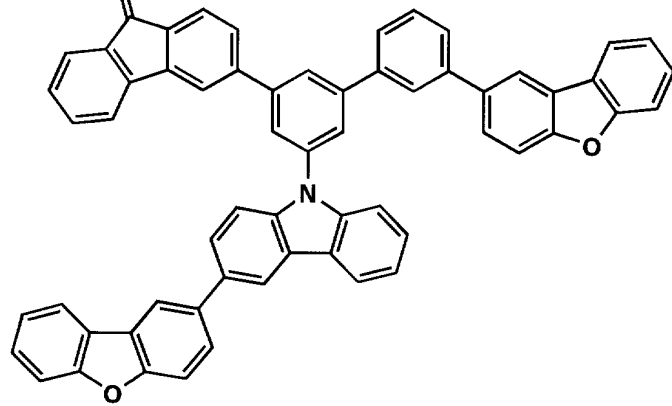


30

HS-100



HS-101

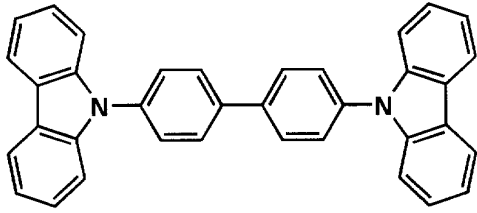


40

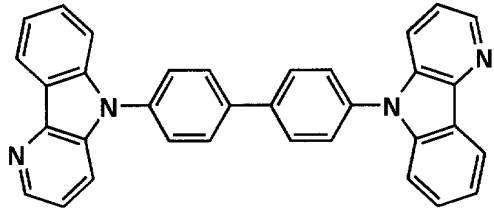
【 0 0 7 2 】

【化 2 4】

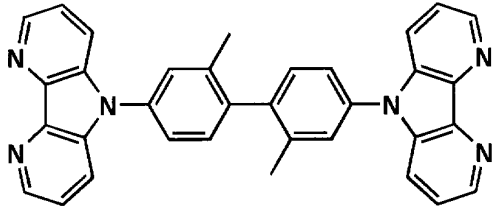
HS-102



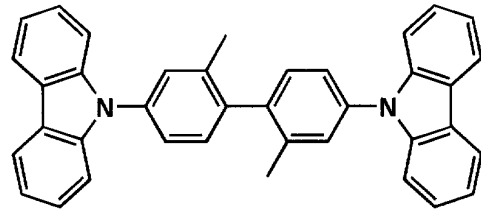
HS-103



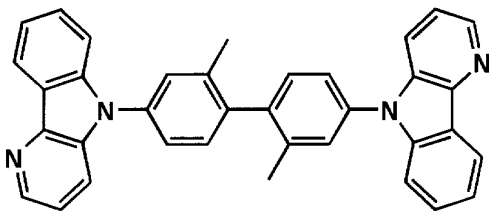
HS-104



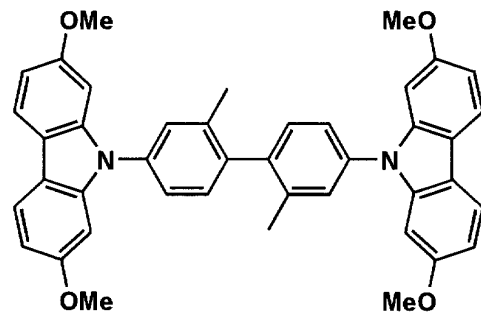
HS-105



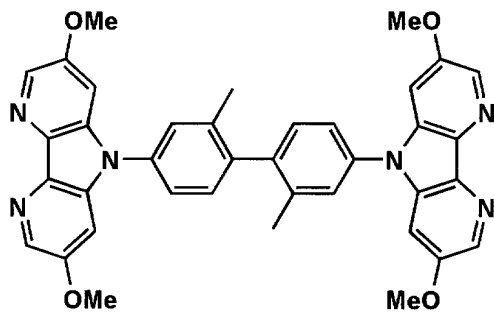
HS-106



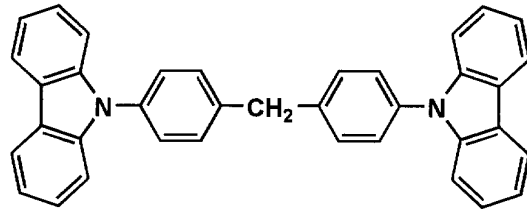
HS-107



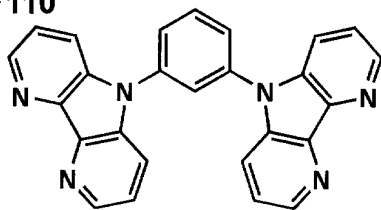
HS-108



HS-109



HS-110



10

20

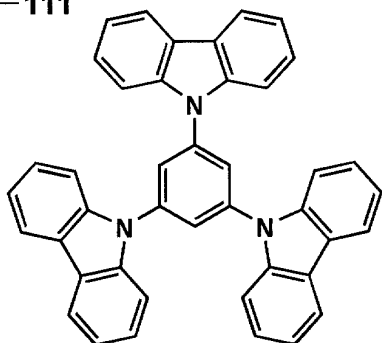
30

40

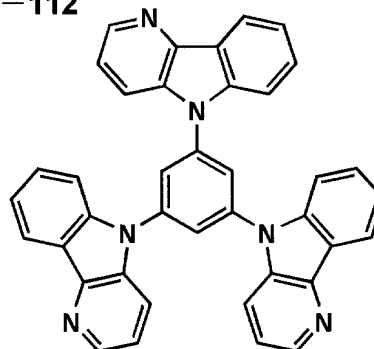
【 0 0 7 3 】

【化 2 5】

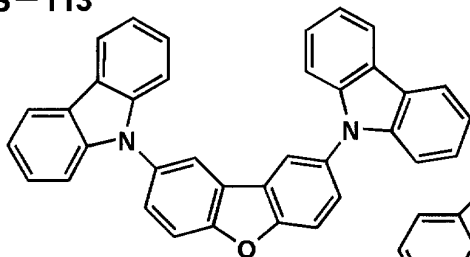
HS-111



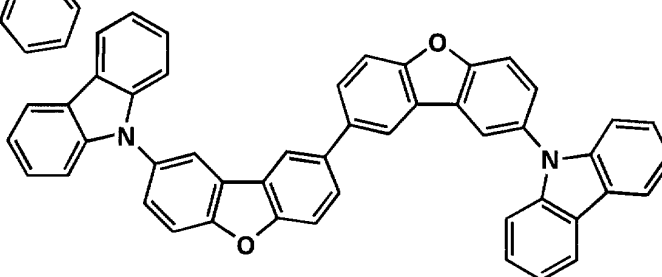
HS-112



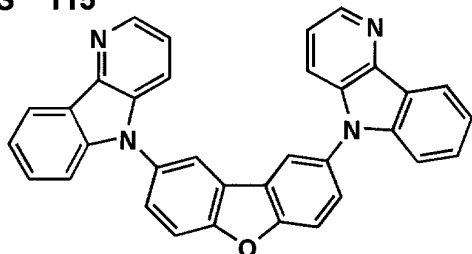
HS-113



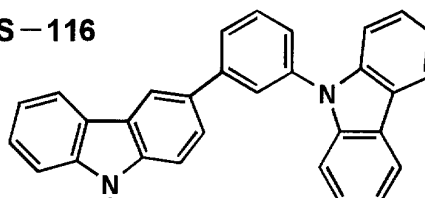
HS-114



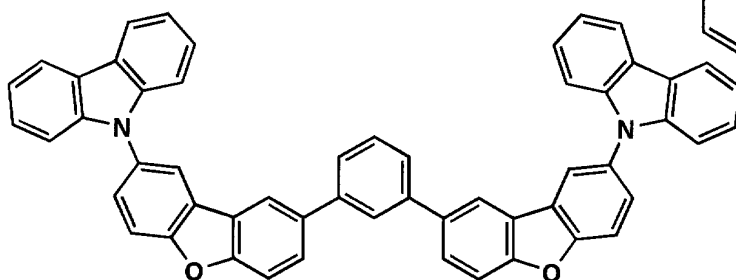
HS-115



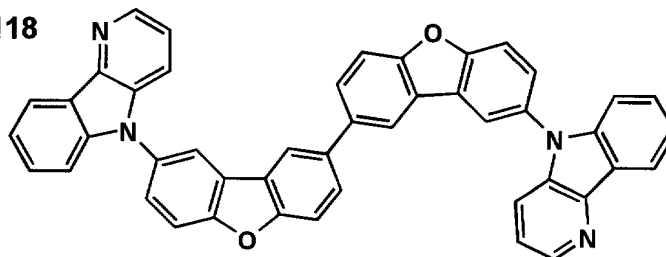
HS-116



HS-117



HS-118



【0074】

本発明に係る一般式(2)で表される化合物は、特開2007-288035号公報、Chem. Mater. 2008, 20, 5951、実験化学講座第5版(日本化学会編)等に記載の公知の方法を参照して合成することができる。

10

20

30

40

50

【0075】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子材料は、アルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を前記一般式(1)で表される高分子化合物に対して0.01~50質量%含有することが好ましい。

【0076】

本発明に係るアルカリ金属とは、周期表において第1族に属する元素(水素・リチウム・ナトリウム・カリウム・ルビジウム・セシウム・フランシウム)の内、水素を除いた元素を指す。アルカリ土類金属とは、周期表の第2族に属する典型元素(ベリリウム・マグネシウム・カルシウム・ストロンチウム・バリウム・ラジウム)を指す。

【0077】

本発明に係るアルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物とは、前記アルカリ金属、またはアルカリ土類金属元素を含む、その塩、錯体、もしくは酸化物等を指す。

【0078】

本発明では、電子輸送層と隣接する陰極の界面にアルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を含有することが好ましい。その態様として、陰極にアルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を含有する、もしくは電子輸送層にアルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物を含有することが好ましい。

【0079】

《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/陰極からなる素子の製造方法について説明する。

【0080】

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形成させ、陽極を作製する。

【0081】

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、電子輸送層等の有機化合物を含有する薄膜を形成させる。

【0082】

ここで、湿式法としては、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、層毎に異なる製膜法を適用してもよい。

【0083】

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1 μ m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。

【0084】

また、順序を逆にして、陰極、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。

【0085】

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2V~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。

【0086】

本発明の有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施しても構わない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

【0087】

《有機EL素子の層構成》

10

20

30

40

50

次に、本発明の有機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。

【0088】

- (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

《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。

【0089】

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

【0090】

本発明の有機EL素子の発光層には、ホスト化合物とゲスト材料としての発光ドーパントの少なくとも1種を含有することが好ましく、ホスト化合物と3種以上の発光ドーパントを含有することが更に好ましい。以下に発光層に含まれるホスト化合物（発光ホスト等とも言う）と発光ドーパントについて説明する。

【0091】

(ホスト化合物)

本発明に係るホスト化合物について説明する。

【0092】

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未満の化合物である。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。

【0093】

本発明に係る前記一般式(2)で表される化合物は、本発明に係るホスト化合物としても好ましく用いられる。

【0094】

ホスト化合物としては、公知のホスト化合物を単独で用いてもよく、または複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種用いることで電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、後述する発光ドーパント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。

【0095】

また、本発明に用いられる発光ホストとしては、従来公知の低分子量化合物でも、繰り返し単位を持つ高分子量化合物でもよく、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量化合物(蒸着重合性発光ホスト)でもよい。

【0096】

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

【0097】

10

20

30

40

50

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。

【0098】

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

【0099】

(発光ドーパント)

本発明に係る発光ドーパントについて説明する。

【0100】

本発明の有機EL素子はリン光発光性であるため、本発明に係る発光ドーパントとしては、少なくともリン光発光性ドーパントを含有するものである。

20

【0101】

(リン光発光性ドーパント)

本発明に係るリン光発光性ドーパントについて説明する。

【0102】

本発明に係るリン光発光性ドーパントは、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が、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

30

【0103】

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発光性ドーパントは、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。

【0104】

リン光発光性ドーパントの発光は原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こって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発光性ドーパントに移動させることでリン光発光性ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光発光性ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光発光性ドーパント上でキャリアの再結合が起こり、リン光発光性ドーパ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、リン光発光性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。

40

【0105】

リン光発光性ドーパントは、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。

【0106】

本発明に係るリン光発光性ドーパントとしては、好ましくは元素の周期表で8~10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

50

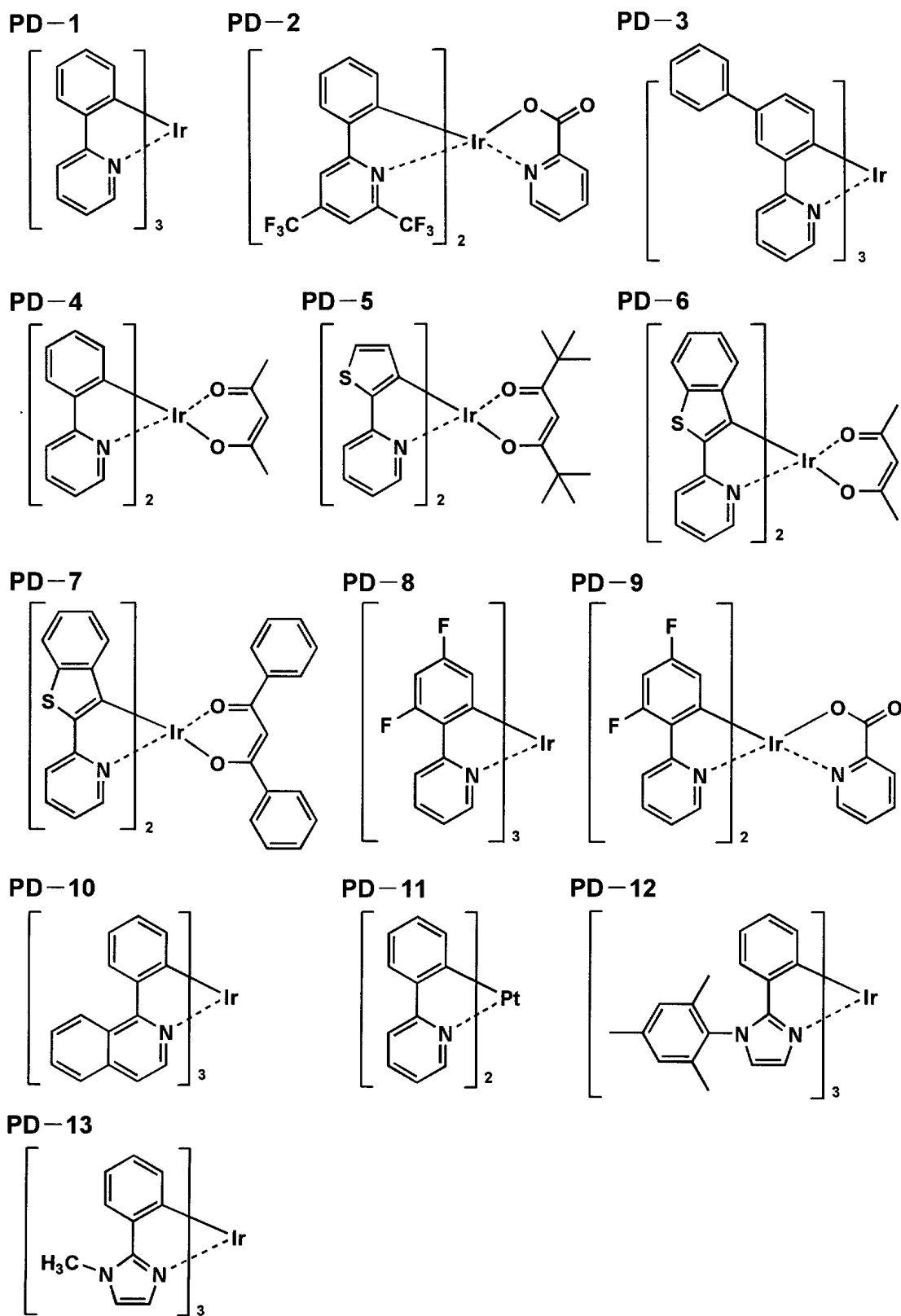
合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

【 0 1 0 7 】

以下、本発明の有機 E L 素子の発光層の形成に用いてもよい発光ドーパントの具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

【 0 1 0 8 】

【化 2 6】



10

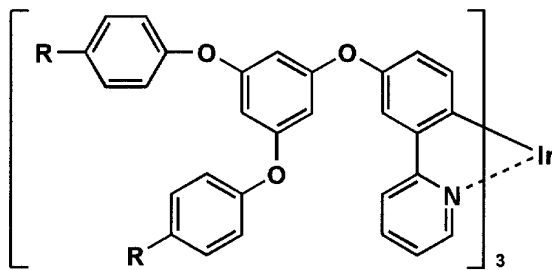
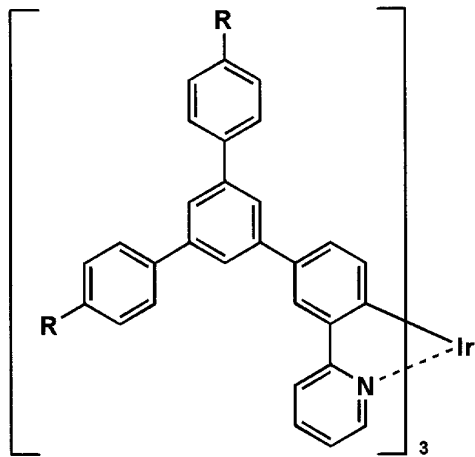
20

30

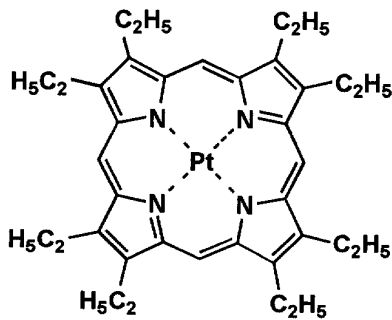
40

【 0 1 0 9 】

【化 2 7】

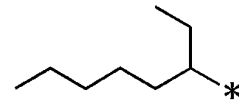


PD-24

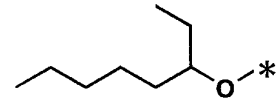


PD-14 ; R=H

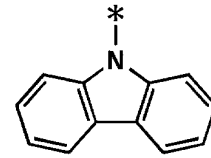
PD-15 ; R=



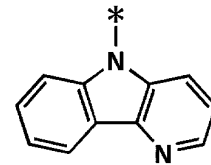
PD-16 ; R=



PD-17 ; R=

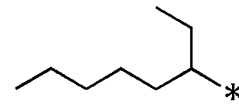


PD-18 ; R=

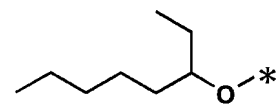


PD-19 ; R=H

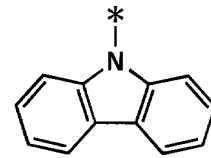
PD-20 ; R=



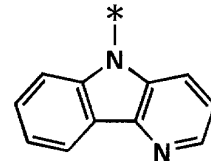
PD-21 ; R=



PD-22 ; R=

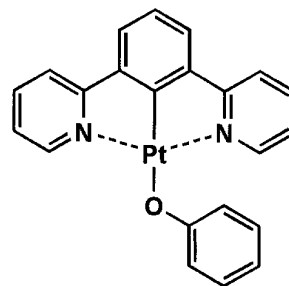


PD-23 ; R=



(*は結合位置を表す)

PD-25



【 0 1 1 0 】

《電荷注入層：電子注入層、正孔注入層》

本発明に係る電荷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

10

20

30

40

50

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。

【0111】

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。

【0112】

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

10

【0113】

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の化合物バッファ層、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

【0114】

《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。

【0115】

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。

30

【0116】

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

【0117】

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。

【0118】

正孔阻止層には、前述のホスト化合物として挙げたアザカルバゾール誘導体を含有することが好ましい。

40

【0119】

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。

【0120】

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0.3eV以上大きいことが好ましい。

【0121】

50

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

【0122】

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

10

【0123】

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

【0124】

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

20

【0125】

《電荷輸送層：電子輸送層、正孔輸送層》

本発明に係る電荷輸送層としては、電子輸送層、正孔輸送層等が挙げられる。以下、本発明に係る電子輸送層、正孔輸送層について詳細に説明する。

【0126】

《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。

30

【0127】

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。

40

【0128】

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。

【0129】

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

50

エニル) - 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。

10

【0130】

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。

【0131】

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。

20

【0132】

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、5 nm ~ 5 μm の範囲であることが好ましく、更に好ましくは 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。

【0133】

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。

30

【0134】

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。

【0135】

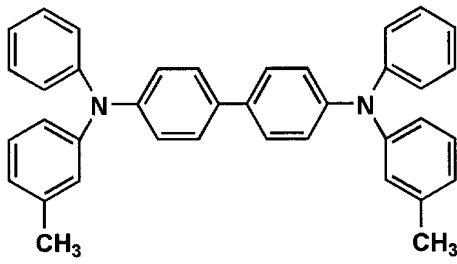
以下、本発明の有機 EL 素子の正孔輸送層の形成に好ましく用いられる化合物の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

40

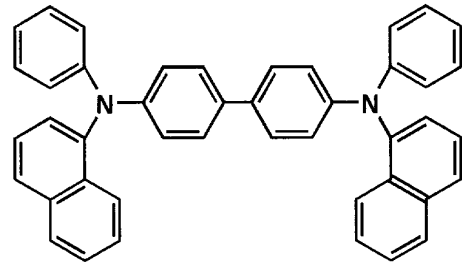
【0136】

【化 2 8】

HT-1

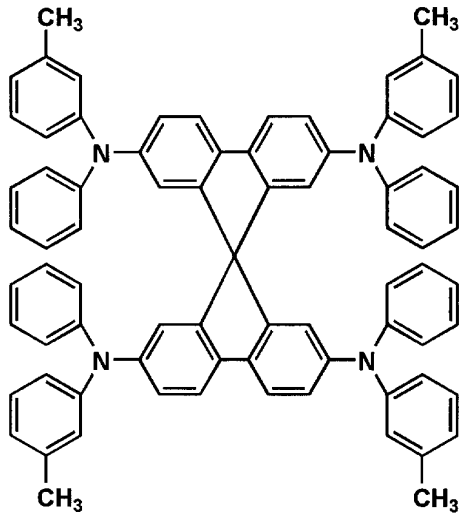


HT-2

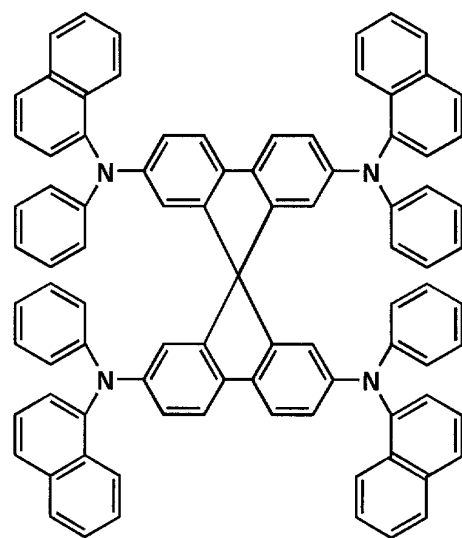


10

HT-3

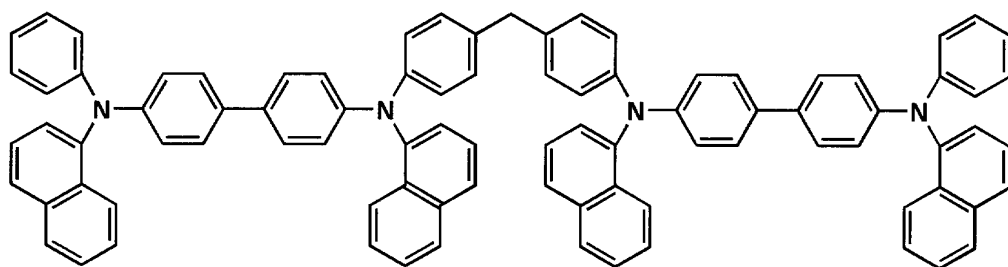


HT-4



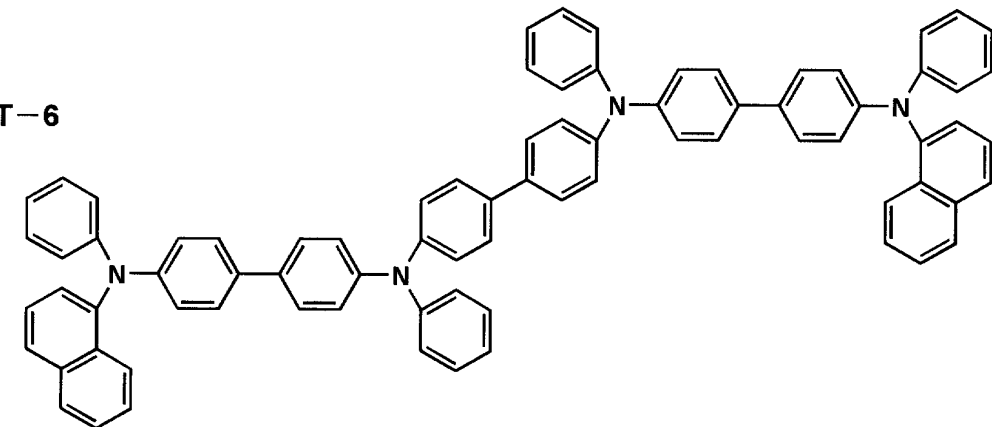
20

HT-5



30

HT-6



40

【 0 1 3 7】

《電子輸送層》

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

50

【 0 1 3 8 】

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。

【 0 1 3 9 】

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。

10

【 0 1 4 0 】

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。

【 0 1 4 1 】

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、

20

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。

【 0 1 4 2 】

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。

【 0 1 4 3 】

また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様にn型 - Si、n型 - SiC等の無機半導体も、電子輸送材料として用いることができる。

30

【 0 1 4 4 】

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。

【 0 1 4 5 】

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。

【 0 1 4 6 】

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

40

【 0 1 4 7 】

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。

【 0 1 4 8 】

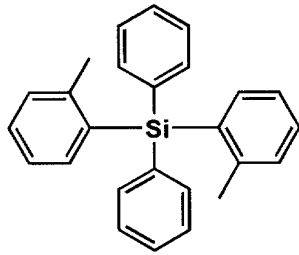
以下、本発明の有機EL素子の電子輸送層の形成に好ましく併用される化合物（電子輸送材料）の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

50

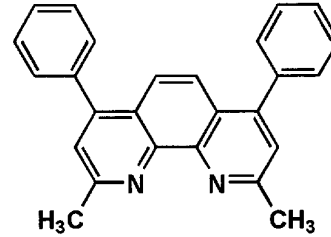
【 0 1 4 9 】

【 化 2 9 】

ET-1

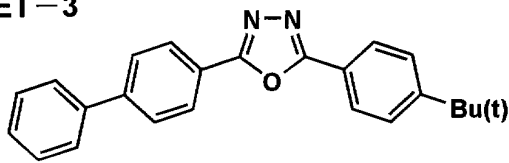


ET-2

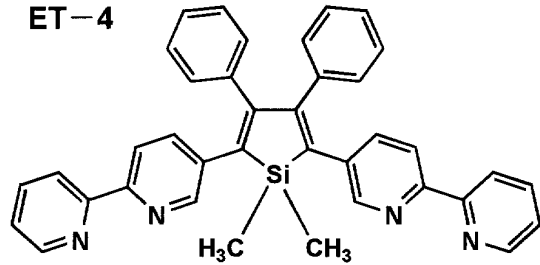


10

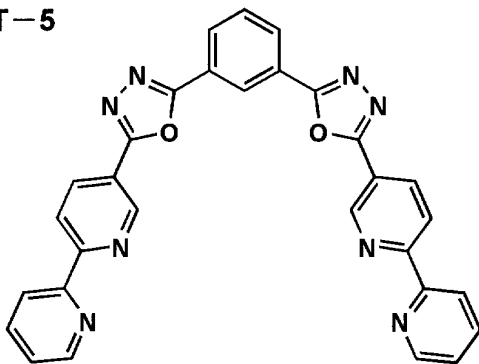
ET-3



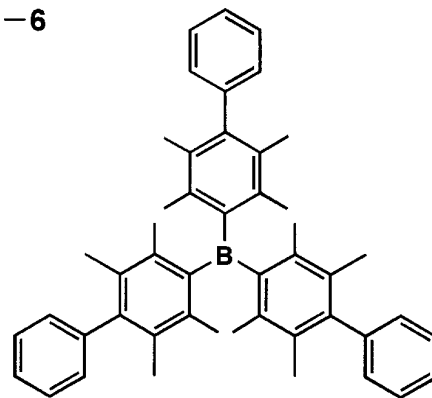
ET-4



ET-5



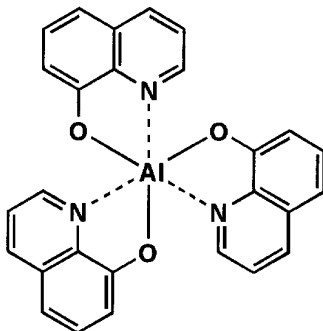
ET-6



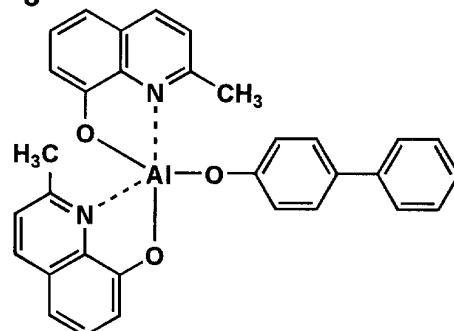
20

30

ET-7



ET-8



40

【 0 1 5 0 】

《 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サイド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In₂O₃-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。

【 0 1 5 1 】

50

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。

【0152】

あるいは、有機導電性化合物のように塗布可能な物質を用いる場合には、印刷方式、コーティング方式等湿式成膜法を用いることもできる。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また陽極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましい。

【0153】

更に膜厚は材料にもよるが、10~1000 nmの範囲が好ましく、更に好ましくは10~200 nmの範囲である。

【0154】

《陰極》

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。

【0155】

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。

【0156】

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。

【0157】

陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は10 nm~5 μmの範囲が好ましく、更に好ましくは50~200 nmの範囲で選ばれる。

【0158】

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。

【0159】

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

【0160】

《基板》

本発明の有機EL素子に用いることのできる基板(以下、基材、支持基板等とも言う)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。基板側から光を取り出す場合には、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。

【0161】

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

10

20

30

40

50

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、アートン（JSR製）あるいはアペル（三井化学製）といったシクロオレフィン系樹脂等を挙げられる。

【0162】

樹脂フィルムの上表面には、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、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{MPa})$ 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。

【0163】

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。

【0164】

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。

【0165】

不透明な基板としては、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。

【0166】

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 $\times 100$ である。

【0167】

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。

【0168】

《封止》

本発明の有機EL素子の封止手段としては、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。

【0169】

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。

【0170】

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

10

20

30

40

50

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1種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。

【0171】

本発明においては、有機EL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。

10

【0172】

更には、ポリマーフィルムは、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ ml/m}^2/24 \text{ h}$ 以下、JIS K 7129 - 1992に準拠した方法で測定された、水蒸気透過度(2.5 ± 0.5 、相対湿度(90 ± 2)%RH)が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g/(m}^2/24 \text{ h)}$ 以下のものが好ましい。

【0173】

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。

【0174】

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。

20

【0175】

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

30

【0176】

また、有機層を挟み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、基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑制する機能を有する材料であればよく、例えば、酸化珪素、二酸化珪素、窒化珪素等を用いることができる。

【0177】

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CVD法、熱CVD法、コーティング法等を用いることができる。

40

【0178】

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。

【0179】

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

50

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

【0180】

《保護膜、保護板》

有機層を挟み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はないため、このような保護膜、保護板を設けることが好ましい。これに使用することができる材料としては、前記封止に用いたのと同様なガラス板、ポリマー板・フィルム、金属板・フィルム等を用いることができるが、軽量且つ薄膜化ということからポリマーフィルムを用いることが好ましい。

10

【0181】

《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内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。

20

【0182】

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）、有機EL素子の側面等に反射面を形成する方法（特開平1-220394号公報）、基板と発光体の間に中間の屈折率を持つ平坦層を導入し、反射防止膜を形成する方法（特開昭62-172691号公報）、基板と発光体の間に基板よりも低屈折率を持つ平坦層を導入する方法（特開2001-202827号公報）、基板、透明電極層や発光層のいずれかの層間（含む、基板と外界間）に回折格子を形成する方法（特開平11-283751号公報）等がある。

30

【0183】

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。

【0184】

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有機EL素子を得ることができる。

40

【0185】

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。

【0186】

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凡そ1.5以下であることが好ましく、更に好ましくは1.35以下であることが好ましい。

【0187】

50

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。

【0188】

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。

【0189】

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内、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。

10

【0190】

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。

【0191】

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。

20

【0192】

回折格子を導入する位置としては、前述のように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。

【0193】

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

【0194】

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

【0195】

《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する、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。

30

【0196】

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

40

【0197】

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、住友スリーエム製輝度上昇フィルム（BEF）等を用いることができる。

【0198】

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

【0199】

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

50

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。

【0200】

《用途》

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

【0201】

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ニングを施してもよい。パターニングする場合は、電極のみをパターニングしてもよいし、電極と発光層をパターニングしてもよいし、素子全層をパターニングしてもよく、素子の作製においては、従来公知の方法を用いることができる。

【0202】

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。

【0203】

また、本発明に係る有機EL素子が白色素子の場合には、白色とは、2度視野角正面輝度を上記方法により測定した際に、 1000cd/m^2 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。

【0204】

《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。

【0205】

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。

【0206】

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、スピコート法、印刷法である。

【0207】

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。

【0208】

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通りである。

【0209】

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。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0210】

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。

【0211】

10

20

30

40

50

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。

【0212】

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。

【0213】

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。

【0214】

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。

【0215】

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。

【0216】

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。

【0217】

図2は表示部Aの模式図である。

【0218】

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。

【0219】

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。

【0220】

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）。

【0221】

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。

【0222】

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。

【0223】

次に、画素の発光プロセスを説明する。

【0224】

図3は画素の模式図である。

【0225】

画素は有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10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。

【0226】

10

20

30

40

50

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11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11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11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13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

【0227】

画像データ信号の伝達により、コンデンサ13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12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12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10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10に電流が供給される。

10

【0228】

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11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13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12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10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12が駆動して有機EL素子10が発光する。

【0229】

20

即ち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10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11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10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。

【0230】

ここで、有機EL素子10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13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。

【0231】

30

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。

【0232】

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。

【0233】

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。

【0234】

40

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なく、製造コストの低減が計れる。

【0235】

《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。

【0236】

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、レーザ発振をさせることにより上記用途に使用してもよい。

50

【 0 2 3 7 】

また、本発明の有機 E L 素子は照明用や露光光源のような 1 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。

【 0 2 3 8 】

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 E L 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。

【 0 2 3 9 】

また、本発明の有機 E L 材料は照明装置として、実質白色の発光を生じる有機 E L 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。

【 0 2 4 0 】

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のいずれでもよいが、本発明の白色有機 E L 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。

【 0 2 4 1 】

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。

【 0 2 4 2 】

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 E L 装置と異なり、素子自体が発光白色である。

【 0 2 4 3 】

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、C F（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。

【 0 2 4 4 】

《本発明の照明装置の一態様》

本発明の有機 E L 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。

【 0 2 4 5 】

本発明の有機 E L 素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み 300 μm のガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成製ラックストラック LC0629B）を適用し、これを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。

【 0 2 4 6 】

図 5 は照明装置の概略図を示し、本発明の有機 E L 素子 101 はガラスカバー 102 で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機 E L 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。）。

【 0 2 4 7 】

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 E L 層、

10

20

30

40

50

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。

【実施例】

【0248】

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0249】

実施例1

《有機EL素子1-1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。

10

【0250】

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

【0251】

この正孔輸送層上に、40mgのHS-117と2mgのPD-1を脱水メシチレン3mlに溶解した溶液を、1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により成膜した。150℃で1時間加熱乾燥し、膜厚40nmの発光層を設けた。

20

【0252】

この発光層上に、15mgのPCz-1を脱水1,1,1,3,3,3-ヘキサフルオロイソプロパノール3mlに溶解した溶液を、1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により成膜した。120℃で1時間加熱乾燥し、膜厚20nmの電子輸送層を設けた。

【0253】

これを真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。陰極バッファ層としてフッ化リチウム1nm及び陰極としてアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

30

【0254】

《有機EL素子1-2～1-17の作製》

有機EL素子1-1の作製において、電子輸送層に用いたPCz-1を下記表1に示した化合物に変更した以外は全く同様にして、有機EL素子1-2～1-17を作製した。

【0255】

【表 1】

有機EL素子	電子輸送層材料		備 考
	高分子化合物		
	構造	数平均分子量	
1-1	PCz-1	3.5×10^3	本発明
1-2	PCz-3	2.6×10^3	本発明
1-3	PCz-4	9.5×10^3	本発明
1-4	PCz-5	5.3×10^3	本発明
1-5	PCz-8	2.7×10^4	本発明
1-6	PCz-8	1.3×10^5	本発明
1-7	PCz-9	1.2×10^4	本発明
1-8	PCz-13	1.7×10^4	本発明
1-9	PCz-15	4.1×10^3	本発明
1-10	PCz-16	8.5×10^3	本発明
1-11	PCz-17	1.3×10^4	本発明
1-12	PCz-19	4.3×10^3	本発明
1-13	PCz-21	3.8×10^3	本発明
1-14	PCz-23	2.6×10^3	本発明
1-15	PCz-27	3.1×10^3	本発明
1-16	Ar-PCz-5-H	2.2×10^4	本発明
1-17	POXD	1.8×10^4	比 較

10

20

30

【0256】

《有機EL素子1-1～1-17の評価》

得られた有機EL素子1-1～1-17を評価するに際しては、作製後の各有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚み300 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5、図6に示すような照明装置を形成して評価した。

40

【0257】

〔外部取り出し量子効率〕

作製した有機EL素子について、23、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm²の一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。

【0258】

〔発光寿命〕

23、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm²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、測定には同様に分光放射輝度

50

計CS-1000(コニカミノルタセンシング製)を用いた。

【0259】

〔駆動電圧〕

温度23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で発光開始の電圧を測定した。なお、発光開始の電圧は、輝度50cd/m²以上となったときの電圧値を測定した。輝度の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。

【0260】

〔高温保存性〕

作製した有機EL素子について、乾燥窒素ガス雰囲気下で80℃、60時間保存後に、前述の外部取り出し量子効率と全く同様にして測定を行った。(高温保存後の外部取り出し量子効率)/(外部取り出し量子効率)を算出し、これを高温保存性として用いた。

【0261】

有機EL素子1-1~1-17の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性の測定結果は、有機EL素子1-17を100とした時の相対評価を行った結果を表2に示す。

【0262】

【表2】

有機EL素子	外部取り出し量子効率	発光寿命	駆動電圧	高温保存性	備考
1-1	106	450	93	250	本発明
1-2	107	810	98	280	本発明
1-3	106	650	95	310	本発明
1-4	105	630	94	250	本発明
1-5	109	890	98	320	本発明
1-6	106	450	96	240	本発明
1-7	104	710	97	305	本発明
1-8	104	530	95	290	本発明
1-9	108	820	93	270	本発明
1-10	105	480	96	260	本発明
1-11	108	620	98	300	本発明
1-12	103	720	94	310	本発明
1-13	109	880	93	270	本発明
1-14	105	750	97	240	本発明
1-15	107	830	95	270	本発明
1-16	107	460	96	300	本発明
1-17	100	100	100	100	比較

【0263】

本発明に係る高分子化合物は、外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性ともに優れており、特に高温保存性に優れた電子輸送材料であることが明らかである。

【0264】

実施例2

《有機EL素子2-5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シド)を100nm成膜した基板(NHテクノグラス製NA-45)にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

【0265】

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ェン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer製、Baytron PA14083)を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピンコート法により成膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。

【0266】

この正孔輸送層上に、40mgのHS-117と2mgのPD-1を脱水メシチレン3mlに溶解した溶液を、1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により成膜した。150℃で1時間加熱乾燥し、膜厚40nmの発光層を設けた。

【0267】

この発光層上に、15mgのPCz-13及び3mgのフッ化セシウム(アルカリ金属化合物)を脱水1,1,1,3,3,3-ヘキサフルオロイソプロパノール3mlに溶解した溶液(ドープ)を、1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により成膜した。120℃で1時間加熱乾燥し、膜厚20nmの電子輸送層を設けた。

10

【0268】

これを真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。アルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子2-5を作製した。

【0269】

《有機EL素子2-1~2-4、及び2-6~2-15の作製》

有機EL素子2-5の作製において、電子輸送層に用いた材料を下記表3に示した化合物に変更した以外は全く同様にして、有機EL素子2-1~2-4、及び2-6~2-15を作製した。

20

【0270】

【表 3】

有機EL素子	電子輸送層材料				備 考
	高分子化合物		ドーパ		
	構造	数平均分子量	※ 1	添加量 (高分子化合物に対しての質量%)	
2-1	PCz-13	1.7×10^4	CsF	0	本発明
2-2	PCz-13	1.7×10^4	CsF	1	本発明
2-3	PCz-13	1.7×10^4	CsF	5	本発明
2-4	PCz-13	1.7×10^4	CsF	10	本発明
2-5	PCz-13	1.7×10^4	CsF	20	本発明
2-6	PCz-13	1.7×10^4	CsF	40	本発明
2-7	PCz-13	1.7×10^4	CsF	50	本発明
2-8	PCz-13	1.7×10^4	CsF	60	本発明
2-9	PCz-13	1.7×10^4	LiF	20	本発明
2-10	PCz-13	1.7×10^4	CaF ₂	20	本発明
2-11	PCz-13	1.7×10^4	KF	20	本発明
2-12	PCz-13	1.7×10^4	NaF	20	本発明
2-13	PCz-13	1.7×10^4	Ca(AcAc) ₂	20	本発明
2-14	PCz-13	1.7×10^4	CsI	20	本発明
2-15	POXD	1.8×10^4	CsF	20	比 較

※ 1 : アルカリ金属化合物またはアルカリ土類金属化合物

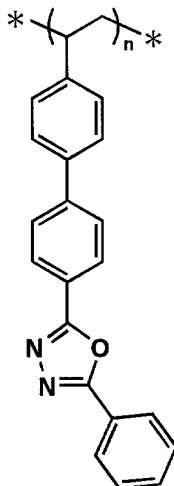
【 0 2 7 1 】

なお、表 3 中、P O X D、A c A c は以下の構造である。

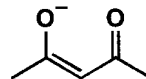
【 0 2 7 2 】

【 化 3 0 】

POXD



AcAc



10

20

30

40

50

【 0 2 7 3 】

《有機EL素子2-1～2-15の評価》

得られた有機EL素子2-1～2-15の評価は、前述の有機EL素子1-1の場合と全く同様にして行った。有機EL素子2-1～2-15の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性の測定結果は、有機EL素子2-15を100とした時の相対評価を行った結果を表4に示す。

【 0 2 7 4 】

【表4】

有機EL素子	外部取り出し量子効率	発光寿命	駆動電圧	高温保存性	備考
2-1	102	420	100	240	本発明
2-2	108	800	97	260	本発明
2-3	106	680	94	255	本発明
2-4	109	750	93	310	本発明
2-5	108	900	92	295	本発明
2-6	106	600	90	270	本発明
2-7	108	500	90	215	本発明
2-8	103	150	87	110	本発明
2-9	102	320	98	130	本発明
2-10	106	610	93	320	本発明
2-11	107	800	91	280	本発明
2-12	104	460	90	200	本発明
2-13	108	400	95	130	本発明
2-14	103	130	99	160	本発明
2-15	100	100	100	100	比較

10

20

【 0 2 7 5 】

上記の素子構成形態においても、本発明に係る電子輸送材料が外部取り出し量子効率、発光寿命、高温保存性に優れていることが明らかである。更には、アルカリ金属化合物あるいはアルカリ土類金属化合物を本発明に係る電子輸送材料にドーピングすることで、駆動電圧の低下も認められ、よりいっそう好適に使用することが可能である。

30

【 0 2 7 6 】

実施例3

《有機EL素子3-1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成膜した基板（NHテクノグラス製NA-45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板を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。

40

【 0 2 7 7 】

この透明支持基板上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer製、Baytron P A1 4083）を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピンコート法により成膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚30nmの正孔輸送層を設けた。

【 0 2 7 8 】

この正孔輸送層上に、40mgのBH-19と2mgのPD-1を脱水メシチレン3mlに溶解した溶液を、1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により成膜した。150℃で1時間加熱乾燥し、膜厚40nmの発光層を設けた。

【 0 2 7 9 】

50

この発光層上に、15 mgのPCz-13を脱水1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロイソプロパノール3 mlに溶解した溶液を1000 rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜し、膜厚20 nmの第一電子輸送層を設けた。更に1 mgのフッ化セシウムを2 mlの脱水メタノールに溶解し、5000 rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜し、第一電子輸送層の上層一部がフッ化セシウムでドーブされた第二電子輸送層を形成した。

【0280】

120 で1時間加熱乾燥し、これを真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。アルミニウム110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子3-1を作製した。

10

【0281】

前述と同様の手順で、有機EL素子2-15を100とした時の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性に対する相対評価を行ったところ、それぞれ110、1020、94、320であった。このことから、電子輸送層形成時の電子輸送材料溶液への混合、あるいは電子輸送層形成後の後ドーブ、いずれの製造方法によっても好適に使用することができることが分かる。

【0282】

実施例4

《有機EL素子4-1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ド）を100 nm成膜した基板（NHテクノグラス製NA-45）にパターンニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。

20

【0283】

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製、Baytron PA14083）を純水で70%に希釈した溶液を3000 rpm、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30 nmの正孔輸送層を設けた。

【0284】

この正孔輸送層上に、20 mgのPCz-1と2 mgのPD-1をトルエン2 mlに溶解した溶液を、1500 rpm、30秒の条件下、スピコート法により成膜した。120 で1時間加熱乾燥し、膜厚40 nmの発光層を設けた。これを真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。

30

【0285】

次いで、電子輸送層として、ET-8（ビス(2-メチル-8-キノラート)-p-フェニルフェノートアルミニウム錯体；BALq）を30 nm、陰極バッファ層としてフッ化リチウム1 nm及び陰極としてアルミニウム110 nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子4-1を作製した。

【0286】

《有機EL素子4-2～4-5の作製》

有機EL素子4-1の作製において、発光層に用いたPCz-1、PD-1を下記表5に示した化合物に変更した以外は全く同様にして、有機EL素子4-2～4-5を作製した。

40

【0287】

【表 5】

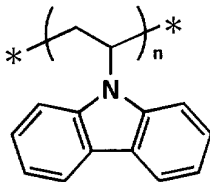
有機EL素子	ホスト化合物	
	高分子化合物	
	構造	数平均分子量
4-1	PCz-1	3.5×10^3
4-2	PCz-8	1.3×10^5
4-3	PCz-17	6.5×10^3
4-4	PCz-21	3.8×10^3
4-5	PVK	8.4×10^4

10

【0288】

【化31】

PVK



20

【0289】

有機EL素子4-1～4-5の外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性の測定を前述の方法と全く同様にして行った。結果は、有機EL素子4-5を100とした時の相対評価により示した。結果を表6に示す。

30

【0290】

【表6】

有機EL素子	外部取り出し量子効率	発光寿命	駆動電圧	高温保存性	備考
4-1	104	320	99	150	本発明
4-2	106	350	97	220	本発明
4-3	103	420	97	185	本発明
4-4	110	390	98	245	本発明
4-5	100	100	100	100	比較

40

【0291】

本発明に係る高分子化合物を発光層におけるホスト化合物として使用した場合も、外部取り出し量子効率、発光寿命、駆動電圧、高温保存性に優れていることが明らかである。

【0292】

実施例5

《フルカラー表示装置の作製》

(青色発光有機EL素子)

実施例1に記載の有機EL素子1-6の作製において、PD-1をPD-12に変更した以外は同様にして、青色発光有機EL素子1-6Bを作製した。

50

【 0 2 9 3 】

(緑色発光有機 E L 素子)

緑色発光有機 E L 素子として、実施例 1 で作製した有機 E L 素子 1 - 6 を用いた。

【 0 2 9 4 】

(赤色発光有機 E L 素子)

実施例 1 の有機 E L 素子 1 - 6 の作製において、P D - 1 を P D - 1 0 に変更した以外は同様にして、赤色発光有機 E L 素子 1 - 6 R を作製した。

【 0 2 9 5 】

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

10

20

【 0 2 9 6 】

該フルカラー表示装置を駆動することにより、発光効率が高い発光寿命の長いフルカラー動画表示が得られることを確認することができた。

【 0 2 9 7 】

実施例 6

《 白色発光照明装置の作製 》

実施例 1 で作製した有機 E L 素子 1 - 6 の作製において、P D - 1 を P D - 1、P D - 1 0、P D - 1 2 に変更した以外は同様にして、白色発光有機 E L 素子 1 - 6 W を作製した。

【 0 2 9 8 】

得られた有機 E L 素子 1 - 6 W を実施例 1、2 と同様に非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は、発光効率が高く発光寿命の長い白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。

30

【 符号の説明 】

【 0 2 9 9 】

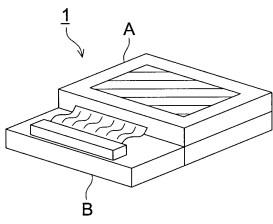
- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- 7 電源ライン
- 1 0 有機 E L 素子
- 1 1 スwitchingトランジスタ
- 1 2 駆動トランジスタ
- 1 3 コンデンサ
- A 表示部
- B 制御部
- 1 0 7 透明電極付きガラス基板
- 1 0 6 有機 E L 層
- 1 0 5 陰極
- 1 0 2 ガラスカバー

40

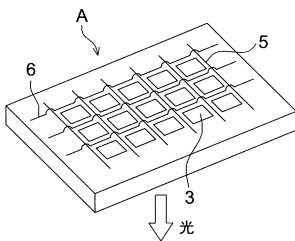
50

- 108 窒素ガス
- 109 捕水剤

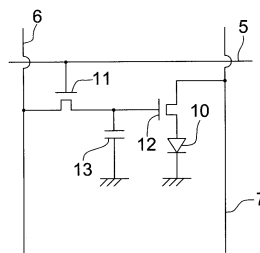
【図1】



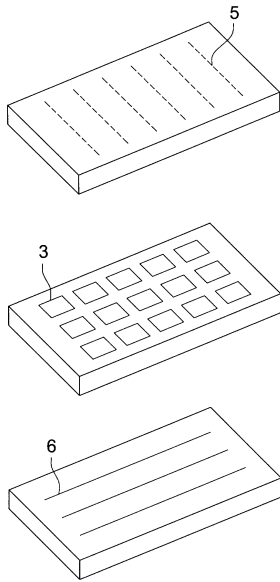
【図2】



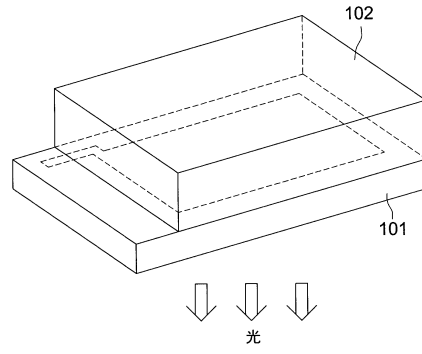
【図3】



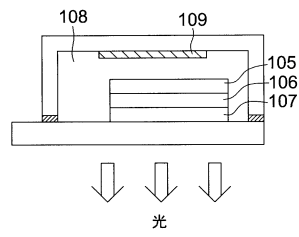
【図4】



【図5】



【図6】



フロントページの続き

審査官 川口 聖司

(56)参考文献 特開2008-060034(JP,A)
特開2010-065087(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H01L 51/50 - 51/56
CAplus/REGISTRY(STN)