

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5593696号
(P5593696)

(45) 発行日 平成26年9月24日(2014.9.24)

(24) 登録日 平成26年8月15日(2014.8.15)

| | | |
|-------------------------|--------------|-------|
| (51) Int.Cl. | F I | |
| HO 1 L 51/50 (2006.01) | HO 5 B 33/14 | B |
| HO 5 B 33/10 (2006.01) | HO 5 B 33/10 | |
| CO 9 K 11/06 (2006.01) | HO 5 B 33/22 | B |
| CO 7 F 15/00 (2006.01) | CO 9 K 11/06 | 6 6 0 |
| CO 7 D 209/86 (2006.01) | CO 9 K 11/06 | 6 9 0 |

請求項の数 20 (全 137 頁) 最終頁に続く

| | | | |
|---------------|------------------------------|-----------|---------------------|
| (21) 出願番号 | 特願2009-540027 (P2009-540027) | (73) 特許権者 | 000001270 |
| (86) (22) 出願日 | 平成20年10月28日(2008.10.28) | | コニカミノルタ株式会社 |
| (86) 国際出願番号 | PCT/JP2008/069519 | | 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 |
| (87) 国際公開番号 | W02009/060757 | (74) 代理人 | 110001254 |
| (87) 国際公開日 | 平成21年5月14日(2009.5.14) | | 特許業務法人光陽国際特許事務所 |
| 審査請求日 | 平成23年5月12日(2011.5.12) | (72) 発明者 | 安川 則子 |
| (31) 優先権主張番号 | 特願2007-290606 (P2007-290606) | | 日本国東京都日野市さくら町1番地コニカ |
| (32) 優先日 | 平成19年11月8日(2007.11.8) | | ミノルタテクノロジーセンター株式会社内 |
| (33) 優先権主張国 | 日本国(JP) | (72) 発明者 | 片倉 利恵 |
| 前置審査 | | | 日本国東京都日野市さくら町1番地コニカ |
| | | (72) 発明者 | ミノルタテクノロジーセンター株式会社内 |
| | | (72) 発明者 | ▲高▼ 秀雄 |
| | | | 日本国東京都日野市さくら町1番地コニカ |
| | | | ミノルタテクノロジーセンター株式会社内 |

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の製造方法

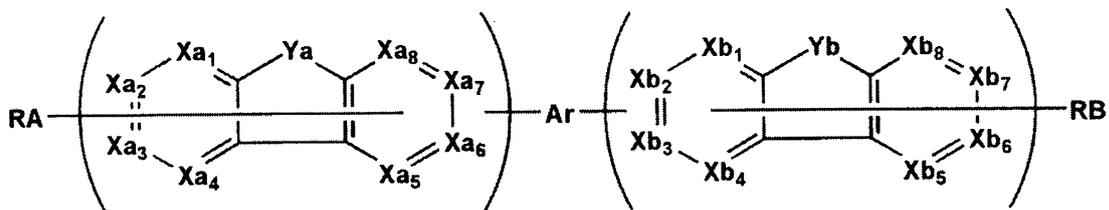
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

発光層、電子輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、下記一般式(1)で表される部分構造を有し、かつ常圧下、25℃におけるi s o - ブタノールに対する溶解度が0.05g/L以下である化合物、及び下記一般式(2)で表される金属錯体化合物を含有する前記発光層を形成する工程と、前記発光層上に、湿式法により前記電子輸送層を形成する工程と、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の製造方法。

【化1】

一般式(1)

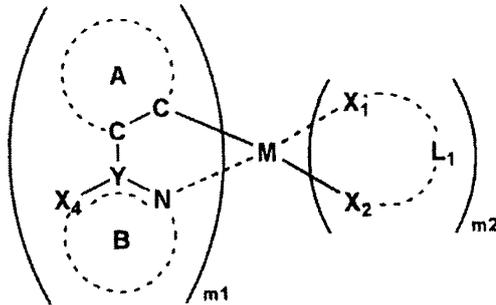


(一般式(1)中、Arは2価のアリーレン基を表し、YaはO, S, N - Raのいずれかを表し、YbはO, S, N - Rbのいずれかを表し、YaとYbは異なっていても同一でも良い。Ra及びRbは置換基又は結合手を表す。RA及びRBは芳香族炭化水素環基

、芳香族複素環基、アルキル基、アルケニル基又はアシルオキシ基を表し、 R_A 及び R_B が複数あるとき、それらは互いに異なっても同一でも良い。 $X_{a_1} \sim X_{a_8}$ 及び $X_{b_1} \sim X_{b_8}$ はC - R_{a_1} 又は窒素原子を表し、 R_{a_1} は水素原子、置換基又は結合手を表す。C - R_{a_1} が複数ある場合には、 R_{a_1} は各々異なっても同一でもよい。)

【化2】

一般式(2)



10

(一般式(2)中、 X_4 は炭素原子又は窒素原子を表し、かつ、置換基を有する芳香族炭化水素環基又は置換基を有する芳香族複素環基を有する。 Y は炭素原子又は窒素原子を表し、 A は6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。 B は5員又は6員の芳香族複素環を表す。 $X_1 - L_1 - X_2$ は2座の配位子を表し、 X_1 、 X_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。 L_1 は X_1 、 X_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 m_1 は1、2又は3の整数を表し、 m_2 は0、1又は2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2又は3である。中心金属である M は元素周期表における8~10族の金属を表す。)

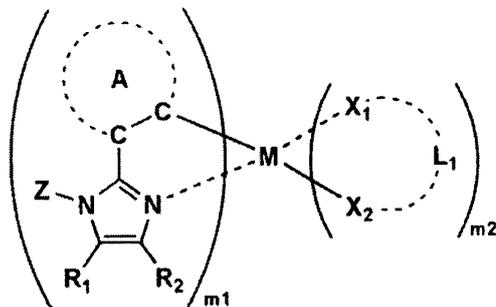
20

【請求項2】

前記一般式(2)が、下記一般式(3)で表され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の製造方法。

【化3】

一般式(3)



30

(一般式(3)中、 Z は置換基を有する芳香族炭化水素環基又は置換基を有する芳香族複素環基を表す。 A は6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。 $X_1 - L_1 - X_2$ は2座の配位子を表し、 X_1 、 X_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。 L_1 は X_1 、 X_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 m_1 は1、2又は3の整数を表し、 m_2 は0、1又は2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2又は3である。中心金属である M は元素周期表における8~10族の金属を表す。)

40

【請求項3】

前記一般式(3)の A がベンゼン環を表すことを特徴とする請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項4】

前記一般式(3)で表される金属錯体化合物が同一の配位子のみで構成されることを特徴

50

とする請求項 2 又は 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 5】

前記一般式(3)のMがイリジウム又はプラチナであることを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 6】

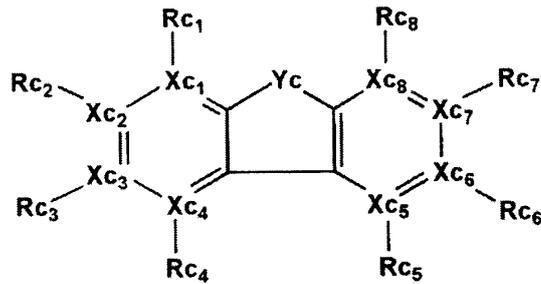
前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物の分子量が、700 ~ 3000であることを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 7】

前記一般式(1)におけるArが、下記一般式(4)で表されることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【化 4】

一般式(4)



(一般式(4)中、YcはO、S、N-Rcのいずれかを表し、Rcは置換基を表す。Xc₁ ~ Xc₈は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっても同一でも良い。Xc₁ ~ Xc₈のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合しているRc₁ ~ Rc₈は水素原子又は置換基を表す。Xc₁ ~ Xc₈のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合しているRc₁ ~ Rc₈はそれぞれ非共有電子対を表す。また、Rc及びRc₁ ~ Rc₈のうち少なくとも2つは連結に用いられる。)

【請求項 8】

前記一般式(4)におけるXc₁ ~ Xc₈が全て炭素原子であ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の製造方法。

【請求項 9】

YcがO又はN-Rcであることを特徴とする請求項 7 又は 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 10】

YcがN-Rcであることを特徴とする請求項 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 11】

前記一般式(4)におけるRc₃とRc₆が連結に用いられることを特徴とする請求項 7 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 12】

前記一般式(1)におけるArが、下記一般式(5)で表されることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

10

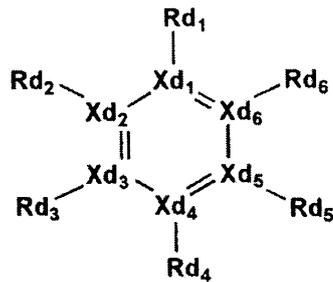
20

30

40

【化5】

一般式(5)



10

(一般式(5)中、 $Xd_1 \sim Xd_6$ は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっても同一でも良い。 $Xd_1 \sim Xd_6$ のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合している $Rd_1 \sim Rd_6$ は水素原子又は置換基を表す。 $Xd_1 \sim Xd_6$ のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合している $Rd_1 \sim Rd_6$ はそれぞれ非共有電子対を表す。また、 $Rd_1 \sim Rd_6$ のうち少なくとも2つは連結に用いられる。)

【請求項13】

前記一般式(5)における $Xd_1 \sim Xd_6$ が全て炭素原子であることを特徴とする請求項12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

20

【請求項14】

前記一般式(5)における Rd_1 と Rd_3 が連結に用いられることを特徴とする請求項12又は13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項15】

前記一般式(1)における Ya が $N-Ra$ を表すことを特徴とする請求項1～14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の製造方法。

【請求項16】

前記一般式(1)における Ra が Ar との連結に用いられることを特徴とする請求項15に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項17】

前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料をアルコール類を含む溶剤に溶解した溶液を塗布することを特徴とする請求項1～16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の製造方法。

30

【請求項18】

前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料を n -ブタノールに溶解した溶液を塗布することを特徴とする請求項1～16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の製造方法。

【請求項19】

前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料を iso -ブタノールに溶解した溶液を塗布することを特徴とする請求項1～16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の製造方法。

40

【請求項20】

前記発光層を形成する工程では、発光層を湿式法で形成することを特徴とする請求項1～19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の製造方法。

【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。

【背景技術】

【0002】

50

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

【0003】

一方、有機 EL 素子は、発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子 (エキシトン) を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出 (蛍光・燐光) を利用して発光する素子である。電極と電極の間は厚さわずか $0.1 \mu\text{m}$ 程度であり、なおかつその発光が数 V ~ 数十 V 程度の比較的低い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次世代の平面ディスプレイや照明として注目されている。

10

【0004】

低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機 EL 素子の開発のため、例えば、特許第 3093796 号公報には、スチルベン誘導体、ジスチルアリーレン誘導体又はトリスチルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーブし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術が開示され、特開昭 63-264692 号公報には、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーブした有機発光層を有する素子が開示されており、特開平 3-255190 号公報には、8-ヒドロキシ

20

【0005】

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

【0006】

ところが、M. A. Baldo et al., nature, 395 巻、151 ~ 154 ページ (1998 年) により、プリンストン大より、励起三重項からのリン光発光を用いる有機 EL 素子の報告がされて以来、M. A. Baldo et al., nature, 403 巻、17 号、750 ~ 753 ページ (2000 年)、米国特許第 6,097,147 号明細書により、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている。

30

【0007】

更に、最近発見されたリン光発光を利用する有機 EL 素子では、以前の蛍光発光を利用する素子に比べ原理的に約 4 倍の発光効率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。例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123 巻、4304 ページ (2001 年) には、多くの化合物がイリジウム錯体系等の重金属錯体を中心に合成検討がなされている。

40

【0008】

他方、製造コスト、生産性の点では、有機 EL 素子の構成は、透明電極と対抗電極に有機層が挟まれただけの単純なものであり、平面ディスプレイの代表である液晶ディスプレイに比べ、部品点数が圧倒的に少ないため、製造コストも低く抑えられるはずであるが、現状では必ずしもそうではなく、性能的にもコスト的にも液晶ディスプレイに大きく水をあけられている。特にコストに対しては、生産性の悪さがその要因と考えられる。

【0009】

現在商品化されている有機 EL の殆どが、低分子材料を蒸着して成膜する、いわゆる蒸着法で製造されている。この蒸着法は精製が容易な低分子化合物を有機 EL 材料として用いることができる (高純度材料が得やすい) こと、更に積層構造を作るのが容易なことか

50

ら、効率、寿命という面で非常に優れているが、反面、 10^{-4} Pa以下という高真空条件下で蒸着を行うため、成膜する装置に制約が加わり、実際には小さい面積の基板にしか適用できず、更に複数層積層するとなると成膜に時間がかかりスループットが低いことが欠点である。特に照明用途や大面積の電子ディスプレイに適用する場合は問題となり、有機EL素子がそのようなアプリケーションに実用されていないひとつの原因となっている。

【0010】

一方、有機化合物層をスピンコート、インクジェット、印刷、スプレーといった湿式法プロセスで製造する塗布法は、常圧で薄膜を作製することができ、更に大面積に均一な膜を作製するのに適している。しかし高い発光効率、長寿命を同時に達成するためには、複数の機能層を積層することが望ましい。塗布法を用いて複数の層を積層するためには下層が上層の塗布液に溶解しないことが条件だが、数十nmオーダーという非常に薄い膜であるがために、難溶性の溶剤を用いて上層を塗布しても下層の膜の溶け出し、又は溶媒によって界面が乱れてしまうという問題が生じる。このような下層材料の上層へのコンタミや界面の乱れは、素子の発光効率の低下や素子寿命の劣化を引き起こすため、改善の必要がある。

10

【0011】

上記問題を解決するため、例えば高分子材料を用いることが提案されている。しかし一般的に高分子材料は精製が難しく、特に有機エレクトロルミネッセンス素子のごくわずかな不純物が素子の発光寿命を大きく低下させる原因になるため、適用が難しい。

20

【0012】

また高分子材料を用いない方法として、低分子材料を用い有機EL素子の構成層を製膜した後に、これを高分子量化するという技術がある。例えば、分子内にビニル基を2つ有する2官能性のトリフェニルアミン誘導体が開示されており、その化合物を用い製膜した後に、紫外線照射により3次元架橋されたポリマーを形成することができる(例えば、特許文献1参照。)。2つ以上のビニル基を有する材料を複数の層に添加する技術が開示され、重合反応についても、陰極を積層する前の有機層製膜時点で紫外線や熱の照射で行う方法(例えば、特許文献2参照。)、リン光ドープメントの末端にビニル基を有する材料と、同様にビニル基を有するモノマーの混合物にラジカル発生剤であるAIBN(アゾイソブチロニトリル)を添加して製膜時に重合反応を進行させる製造方法(例えば、特許文献3参照。)、また、同一層内の2分子間でディールスアルダー反応を起こさせて架橋させる製造方法(例えば、特許文献4参照。))等が挙げられる。

30

【0013】

しかしながら、上記のように、低分子材料を高分子量化(樹脂化)するための紫外線照射や高温での加熱処理は、酸化物の生成や材料の劣化などの原因となり、特に発光層においては素子寿命に悪影響を与えるという問題があった。

【特許文献1】特開平5-271166号公報

【特許文献2】特開2001-297882号公報

【特許文献3】特開2003-73666号公報

【特許文献4】特開2003-86371号公報

40

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

本発明はかかる課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、高い発光効率を示し、且つ長寿命化した有機EL素子材料、それを用いた有機EL素子、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】

【0015】

本発明の上記目的は、下記の構成により達成された。

【0016】

50

1. 発光層、電子輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であつて、

下記一般式(1)で表される部分構造を有し、かつ常圧下、25℃における*iso*-ブタノールに対する溶解度が0.05g/L以下である化合物、及び下記一般式(2)で表される金属錯体化合物を含有する前記発光層を形成する工程と、

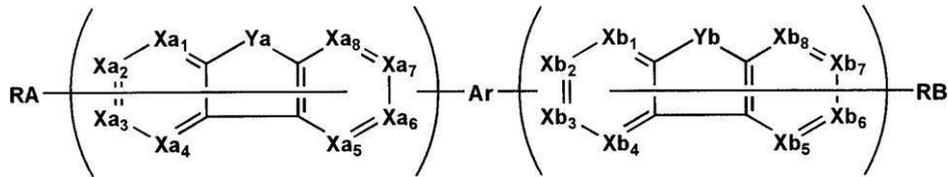
前記発光層上に、湿式法により前記電子輸送層を形成する工程と、

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の製造方法。

【0017】

【化1】

一般式(1)



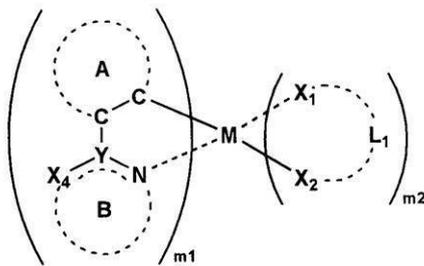
【0018】

(一般式(1)中、Arは2価のアリーレン基を表し、YaはO, S, N-Raのいずれかを表し、YbはO, S, N-Rbのいずれかを表し、YaとYbは異なっても同一でも良い。Ra及びRbは置換基又は結合手を表す。RA及びRBは芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、アルキル基、アルケニル基又はアシルオキシ基を表し、RA及びRBが複数あるとき、それらは互いに異なっても同一でも良い。Xa₁~Xa₈及びXb₁~Xb₈はC-Ra₁又は窒素原子を表し、Ra₁は水素原子、置換基又は結合手を表す。C-Ra₁が複数ある場合には、Ra₁は各々異なっても同一でもよい。)

【0019】

【化2】

一般式(2)



【0020】

(一般式(2)中、X₄は炭素原子又は窒素原子を表し、かつ、置換基を有する芳香族炭化水素環基又は置換基を有する芳香族複素環基を有する。Yは炭素原子又は窒素原子を表し、Aは6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。Bは5員又は6員の芳香族複素環を表す。X₁-L₁-X₂は2座の配位子を表し、X₁、X₂は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。L₁はX₁、X₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。m₁は1、2又は3の整数を表し、m₂は0、1又は2の整数を表すが、m₁+m₂は2又は3である。中心金属であるMは元素周期表における8~10族の金属を表す。)

2. 前記一般式(2)が、下記一般式(3)で表されることを特徴とする前記1に記載

10

20

30

40

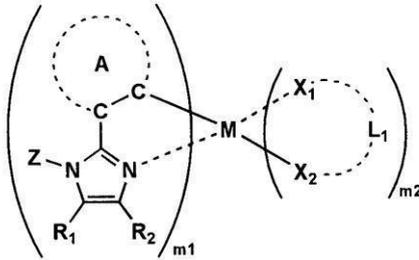
50

の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0021】

【化3】

一般式(3)



10

【0022】

(一般式(3)中、Zは置換基を有する芳香族炭化水素環基又は置換基を有する芳香族複素環基を表す。Aは6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。X₁-L₁-X₂は2座の配位子を表し、X₁、X₂は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。L₁はX₁、X₂と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。m₁は1、2又は3の整数を表し、m₂は0、1又は2の整数を表すが、m₁+m₂は2又は3である。中心金属であるMは元素周期表における8~10族の金属を表す。)

20

3. 前記一般式(3)のAがベンゼン環を表すことを特徴とする前記2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0023】

4. 前記一般式(3)で表される金属錯体化合物が同一の配位子のみで構成されることを特徴とする前記2又は3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0024】

5. 前記一般式(3)のMがイリジウム又はプラチナであることを特徴とする前記2~4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0025】

6. 前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物の分子量が、700~3000であることを特徴とする前記1~5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

30

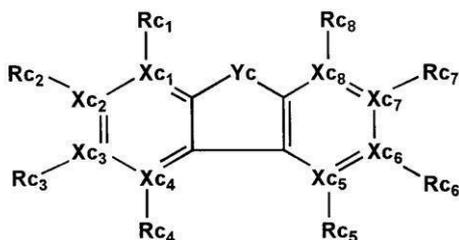
【0026】

7. 前記一般式(1)におけるArが、下記一般式(4)で表されることを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0027】

【化4】

一般式(4)



40

【0028】

50

(一般式(4)中、YcはO, S, N-Rcのいずれかを表し、Rcは置換基を表す。Xc₁~Xc₈は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっても同一でも良い。Xc₁~Xc₈のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合しているRc₁~Rc₈は水素原子又は置換基を表す。Xc₁~Xc₈のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合しているRc₁~Rc₈はそれぞれ非共有電子対を表す。また、Rc及びRc₁~Rc₈のうち少なくとも2つは連結に用いられる。)

8. 前記一般式(4)におけるXc₁~Xc₈が全て炭素原子であ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の製造方法。

【0029】

9. YcがO又はN-Rcであることを特徴とする前記7又は8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

10

【0030】

10. YcがN-Rcであることを特徴とする前記9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0031】

11. 前記一般式(4)におけるRc₃とRc₆が連結に用いられることを特徴とする前記7~10のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0032】

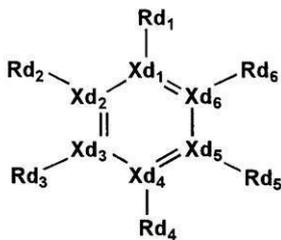
12. 前記一般式(1)におけるArが、下記一般式(5)で表されることを特徴とする前記1~6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

20

【0033】

【化5】

一般式(5)



30

【0034】

(一般式(5)中、Xd₁~Xd₆は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっても同一でも良い。Xd₁~Xd₆のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合しているRd₁~Rd₆は水素原子又は置換基を表す。Xd₁~Xd₆のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合しているRd₁~Rd₆はそれぞれ非共有電子対を表す。また、Rd₁~Rd₆のうち少なくとも2つは連結に用いられる。)

13. 前記一般式(5)におけるXd₁~Xd₆が全て炭素原子であることを特徴とする前記12に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

40

【0035】

14. 前記一般式(5)におけるRd₁とRd₃が連結に用いられることを特徴とする前記12又は13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0036】

15. 前記一般式(1)におけるYaがN-Raを表すことを特徴とする前記1~14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の製造方法。

【0037】

16. 前記一般式(1)におけるRaがArとの連結に用いられることを特徴とする前記15に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

50

17. 前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料をアルコール類を含む溶剤に溶解した溶液を塗布することを特徴とする前記1～16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の製造方法。

【0038】

18. 前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料をn-ブタノールに溶解した溶液を塗布することを特徴とする前記1～16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の製造方法。

【0039】

19. 前記電子輸送層を形成する工程では、電子輸送材料をiso-ブタノールに溶解した溶液を塗布することを特徴とする前記1～16のいずれか1項に記載の有機エレクト

10

【0040】

20. 前記発光層を形成する工程では、発光層を湿式法で形成することを特徴とする前記1～19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の製造方法。

【発明の効果】

【0044】

本発明により、高い発光効率を示し、且つ発光寿命が長い有機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ができる。

【図面の簡単な説明】

【0045】

20

【図1】有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。

【図2】照明装置の概略図である。

【図3】照明装置の断面図である。

【符号の説明】

【0046】

- 101 ガラス基板
- 102 ITO透明電極
- 103 隔壁
- 104 正孔注入層
- 105B、105G、105R 発光層
- 207 透明電極付きガラス基板
- 206 有機EL層
- 205 陰極
- 202 ガラスカバー
- 208 窒素ガス
- 209 捕水剤

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0047】

以下、本発明に係る各構成要素の詳細について、順次説明する。

【0048】

40

まず、本発明における一般式(1)で表される部分構造を有する化合物について説明する。

【0049】

湿式法で有機化合物層を積層する手段の1つとして、上層と下層に用いる溶剤に対する溶解度の差(Sp値の差)を利用する方法がある。例えばトルエン等の極性の低い溶剤に対する溶解性は高く、メタノール等の極性の高い溶剤に対する溶解性は低い材料を下層に用いることにより、上層を極性の高い溶剤で製膜することが可能である。

【0050】

しかし、極性が高い溶剤の代表であるメタノールやエタノールは沸点が低いために、成膜時の乾燥条件の制御が難しく膜厚のバラつきが発生しやすいという問題がある。また、

50

極性が非常に高い溶剤は水分を含みやすいため、薄膜内に水が残存し素子寿命の劣化を引き起こす一因となる。

【0051】

一方で炭素数の大きいヘキサノール等では、下層材料とのS p値の差が近づくため下層材料の溶け出しやすくなるという問題が生じる。また同時に沸点も高くなるため、成膜性は向上するが溶剤を完全に除去することが困難になる。

【0052】

以上のような問題を鑑みるに、上層に用いる溶剤としては成膜性がよく、かつ適度な極性を持つ溶剤が好ましく、1-ブタノールは要件を満たす好適な溶剤である。

【0053】

本発明における一般式(1)で表される部分構造を有する化合物は、常圧下、25度にて、iso-ブタノールに対する溶解度が、0.05g/L以下である。本発明において、一般式(1)で表される部分構造を有する化合物の、iso-ブタノールに対する溶解度の測定方法は、ごく一般的な方法でよく、溶解度測定の一例としては、25の環境下、iso-ブタノール100mlに一般式(1)で表される部分構造を有する化合物を5mg加えて、3時間攪拌する。ここで完全に一般式(1)で表される部分構造を有する化合物が溶解したか否かを目視で確認し、判断することができる。ここで使用するiso-ブタノールは、JIS試薬一級以上の純度のものであれば十分使用可能である。

【0054】

本発明に係る前記一般式(1)で表される部分構造について、以下説明する。

【0055】

一般式(1)中、Arは2価のアリーレン基を表し、2価のアリーレン基としては好ましくは、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基、3,6-カルバゾリレン基、3,8-ジベンゾフリル基を表す。YaはO, S, N-Raのいずれかを表し、YbはO, S, N-Rbのいずれかを表し、YaとYbは異なっても同一でも良い。Ra及びRbは置換基を表す。RA及びRBは置換基を表し、RA及びRBが複数あるとき、それらは互いに異なっても同一でも良い。Xa₁~Xa₈及びXb₁~Xb₈はC-Ra₁又は窒素原子を表し、Ra₁は水素原子、置換基又は結合手を表す。C-Ra₁が複数ある場合には、Ra₁は各々異なっても同一でもよい。

【0056】

Ra及びRb、またRA及びRB、またRa₁で表される置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素環基(芳香族炭素環基、アリール基等ともいい、例えば、フェニル基、p-クロロフェニル基、メシチル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、アントリル基、アズレニル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ピレニル基、ピフェニル基等)、芳香族複素環基(例えば、ピリジル基、ピリミジニル基、フリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、トリアゾリル基(例えば、1,2,4-トリアゾール-1-イル基、1,2,3-トリアゾール-1-イル基等)、オキサゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、イソチアゾリル基、フラザニル基、チエニル基、キノリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、カルボリニル基、ジアザカルバゾリル基(前記カルボリニル基のカルボリン環を構成する炭素原子の一つが窒素原子で置き換わったものを示す)、キノキサリニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、キナゾリニル基、フタラジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、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

10

20

30

40

50

デシルオキシ基等)、シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジ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又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)等が挙げられる。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。

【0057】

前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物の分子量は、700~3000であることが、精製が容易且つ高いTgを有する材料が得られることから好ましい。

【0058】

10

20

30

40

50

前記一般式(1)において、Arは、前記一般式(4)で表されることが好ましい。

【0059】

前記一般式(4)において、YcはO, S, N-Rcのいずれかを表し、Rcは置換基を表す。Xc₁~Xc₈は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっていても同一でも良い。Xc₁~Xc₈のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合しているRc₁~Rc₈は水素原子又は置換基を表す。Xc₁~Xc₈のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合しているRc₁~Rc₈はそれぞれ非共有電子対を表す。また、Rc及びRc₁~Rc₈のうち少なくとも2つは連結に用いられる。

【0060】

また、ここでRc及びRc₁~Rc₈で表される置換基としては、前記Ra及びRb、またRA及びRBで表される置換基と同義である。

10

【0061】

また、前記一般式(1)におけるArが一般式(4)で表されるとき、一般式(4)においては、Xc₁~Xc₈が全て炭素原子であることが好ましい。更に、一般式(4)において、Ycは、O又はN-Rcであることが好ましい。又、YcはN-Rcであることが更に好ましい。

【0062】

また、前記一般式(4)においては、Rc₃とRc₆が連結に用いられることが好ましい。Rc₃とRc₆が連結に用いられるとは、一般式(4)が、Rc₃とRc₆の置換位置を結合手とした二価の基を構成することを表す。

20

【0063】

前記一般式(1)におけるArは、また、前記一般式(5)で表されることが好ましい。

【0064】

一般式(5)において、Xd₁~Xd₆は炭素原子又は窒素原子を表し、各々異なっていても同一でも良い。Xd₁~Xd₆のいずれかが炭素原子である場合、その炭素原子に結合しているRd₁~Rd₆は水素原子又は置換基を表す。Xd₁~Xd₆のいずれかが窒素原子である場合、その窒素原子に結合しているRd₁~Rd₆はそれぞれ非共有電子対を表す。また、Rd₁~Rd₆のうち少なくとも2つは連結に用いられる。ここにおいて、Rd₁~Rd₆で表される置換基は前記Ra及びRb、またRA及びRBで表される置換基と同義である。

30

【0065】

また、一般式(5)においては、Xd₁~Xd₆が全て炭素原子であることが好ましい形態の1つである。

【0066】

また、前記一般式(1)におけるArが一般式(5)で表されるとき、一般式(5)においては、Rd₁とRd₃が連結に用いられることが好ましい。Rd₁とRd₃が連結に用いられるとは、一般式(5)が、Rd₁とRd₃の置換位置を結合手とした二価の基を構成することを表す。

【0067】

又、一方、前記一般式(1)におけるYaは、N-Raを表すことが好ましく、更に、RaはArとの連結に用いられることが好ましい。即ち、Raの置換位置においてArと結合することが好ましい。

40

【0068】

以下に、代表的な化合物について具体例を挙げる。

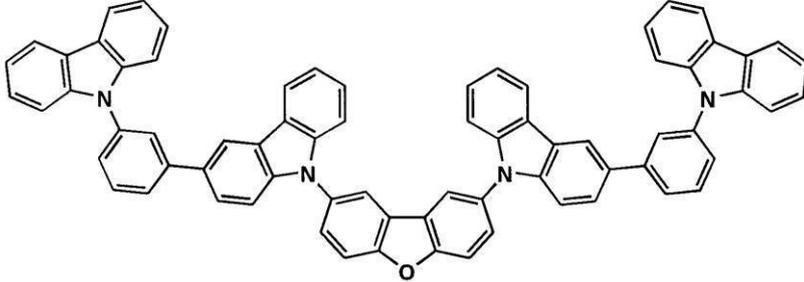
【0069】

【化6】

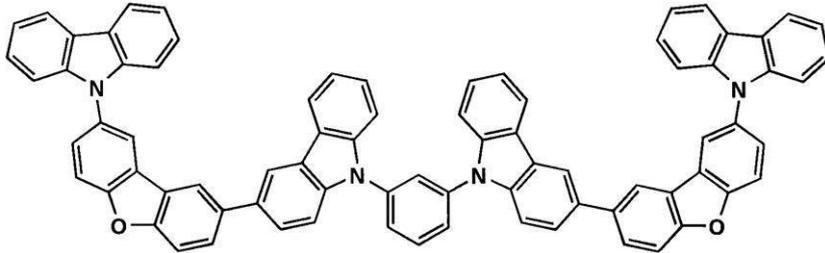
1-1



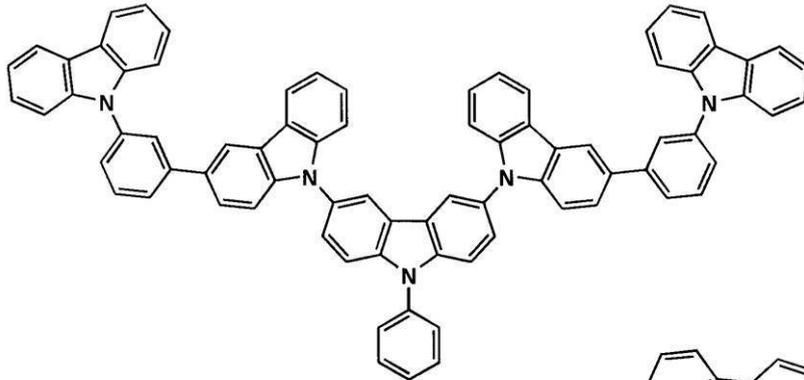
1-2



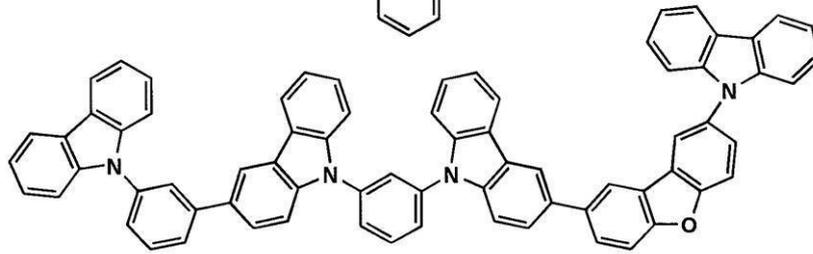
1-3



1-4



1-5



10

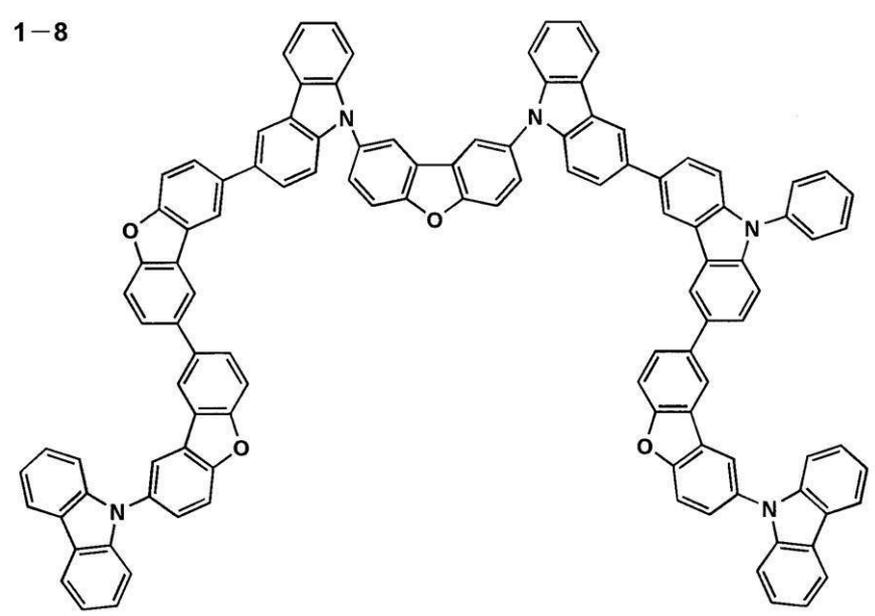
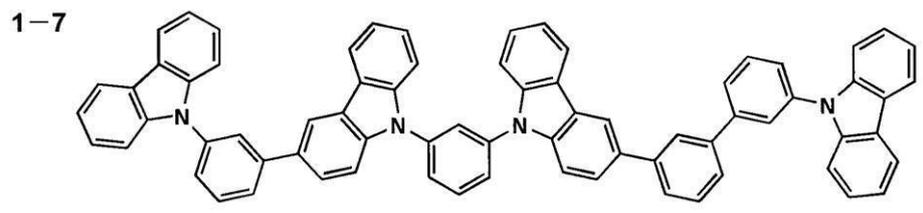
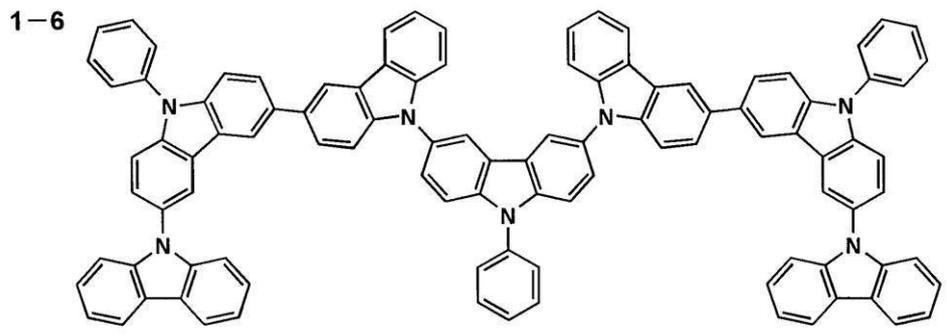
20

30

【0070】

40

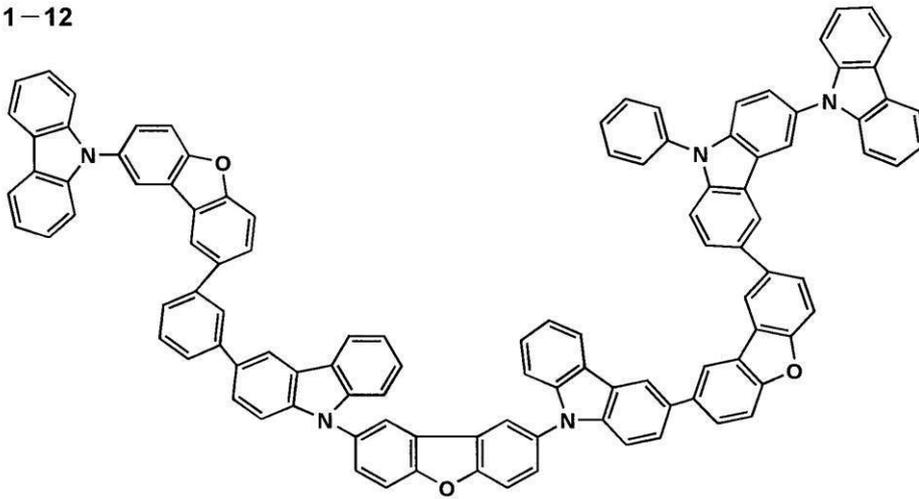
【化7】



【0071】

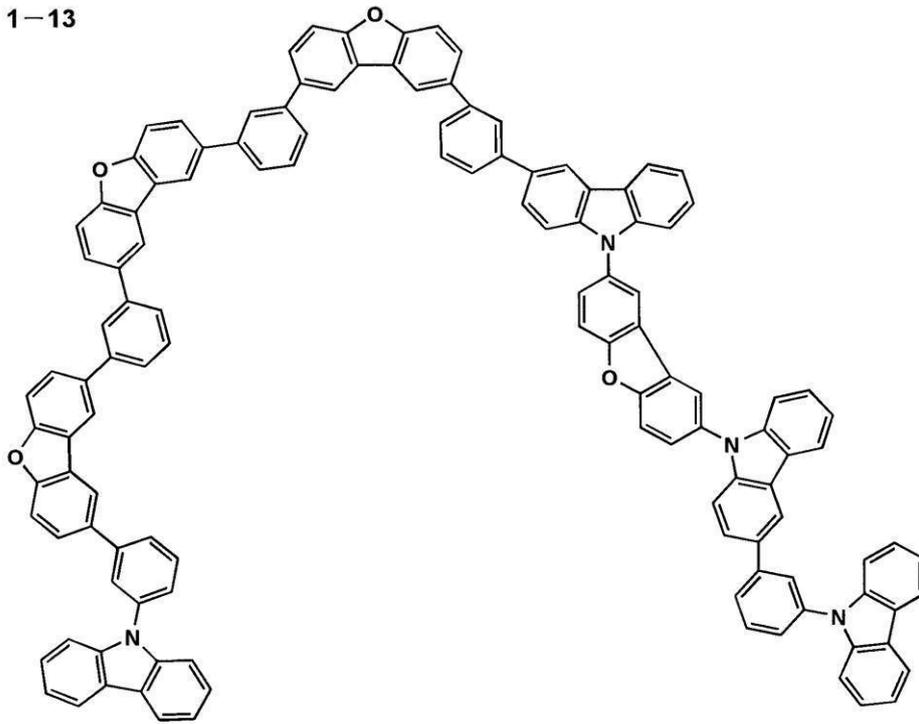
【化9】

1-12



10

1-13



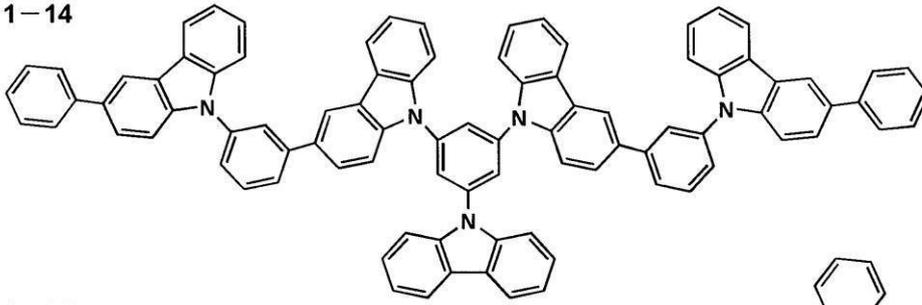
20

30

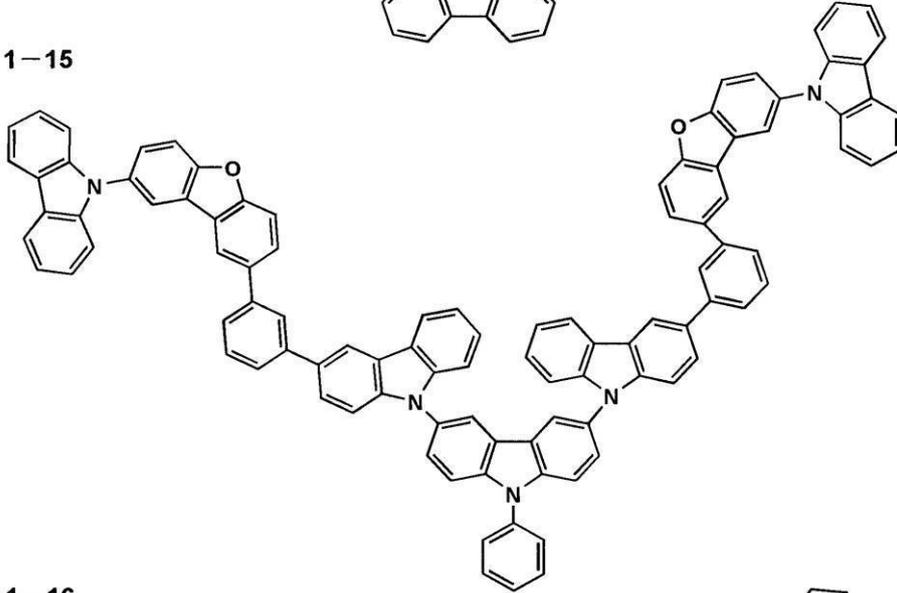
【0073】

【化 1 0】

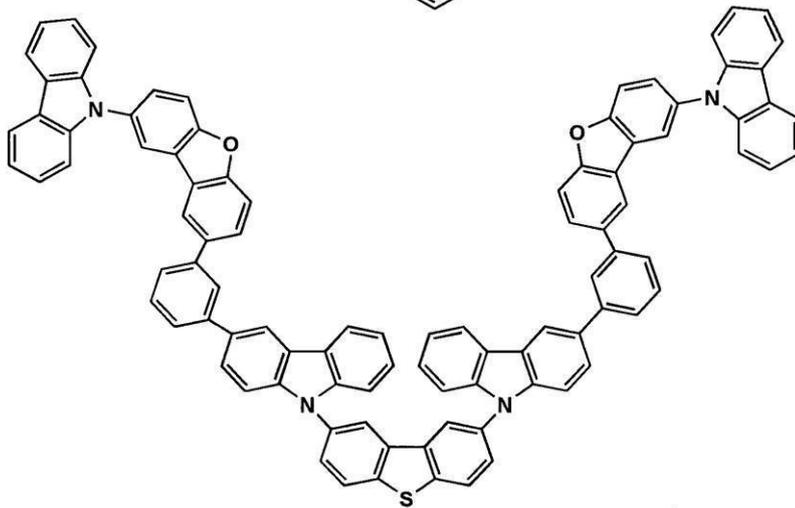
1-14



1-15



1-16



10

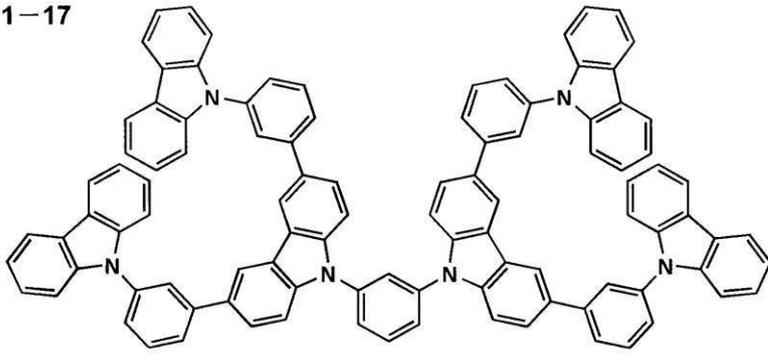
20

30

【 0 0 7 4 】

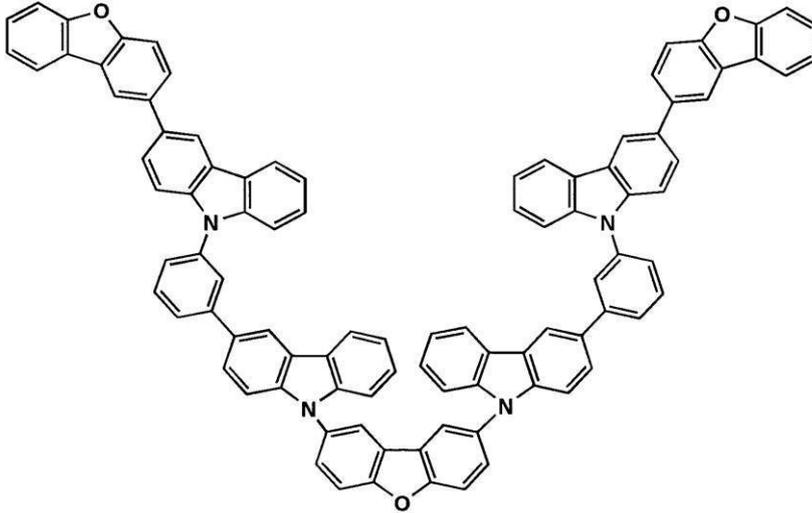
【化 1 1】

1-17



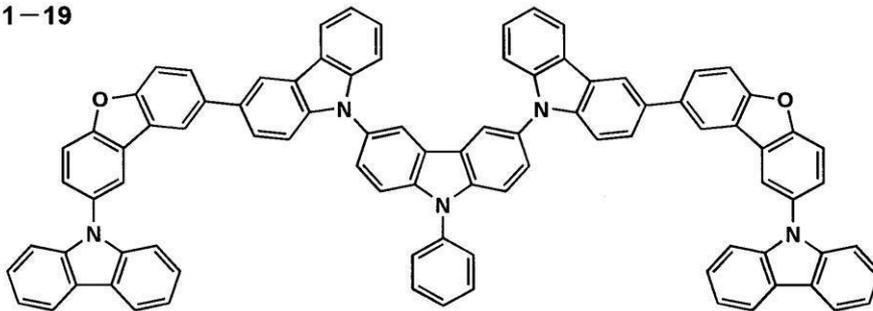
10

1-18



20

1-19

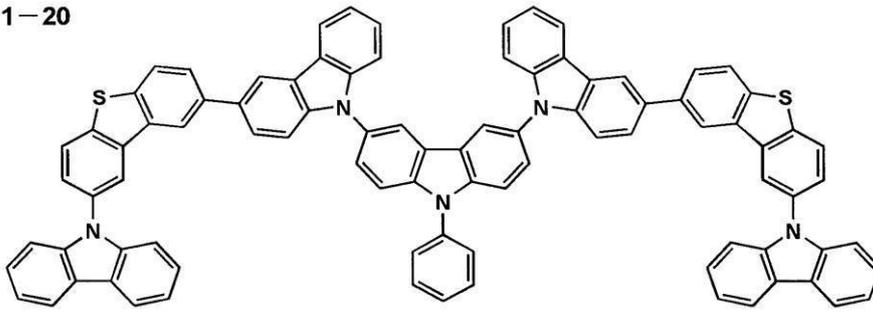


30

【 0 0 7 5 】

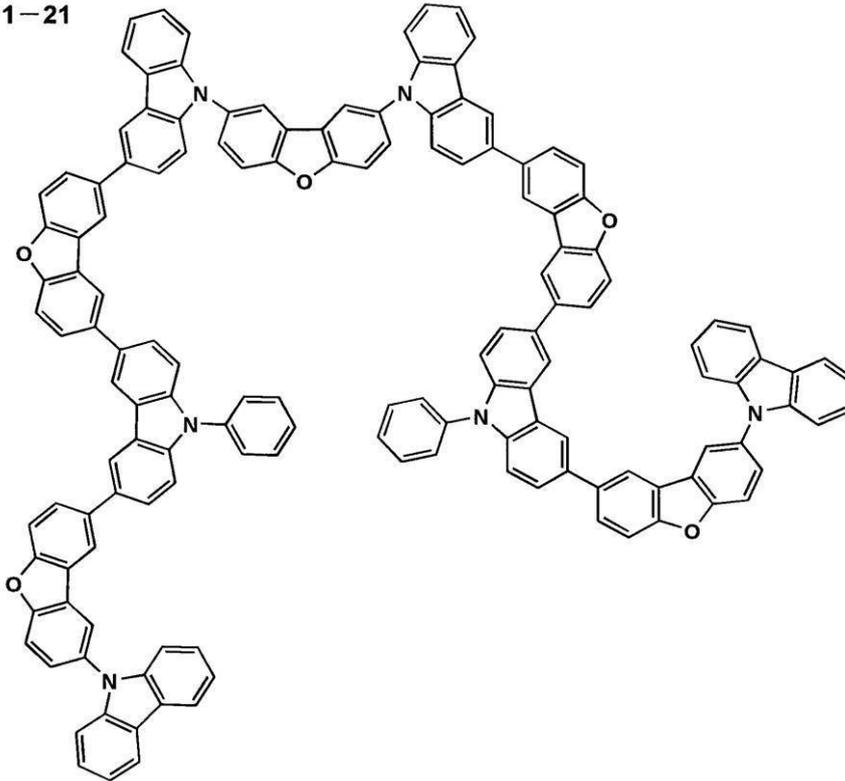
【化 1 2】

1-20



10

1-21



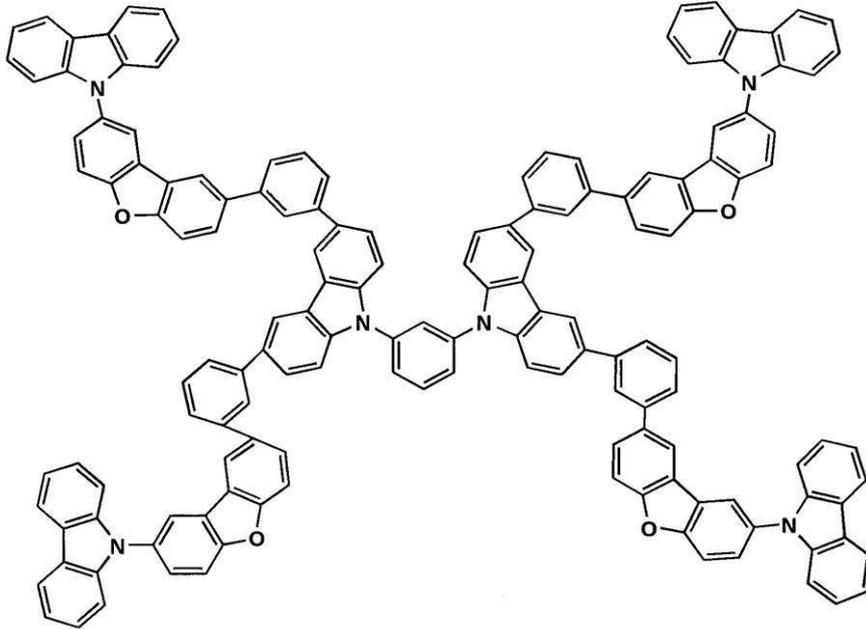
20

30

【 0 0 7 6 】

【化 1 3】

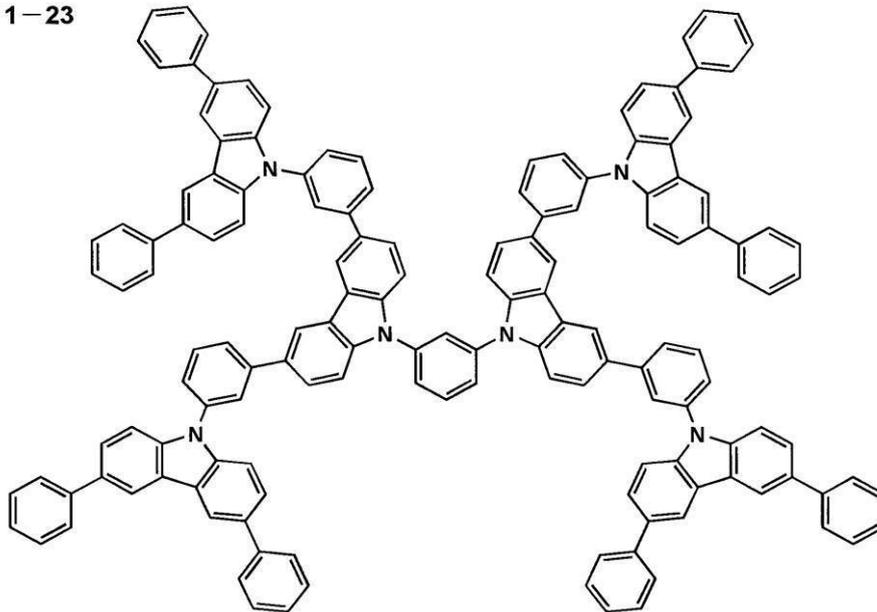
1-22



10

20

1-23

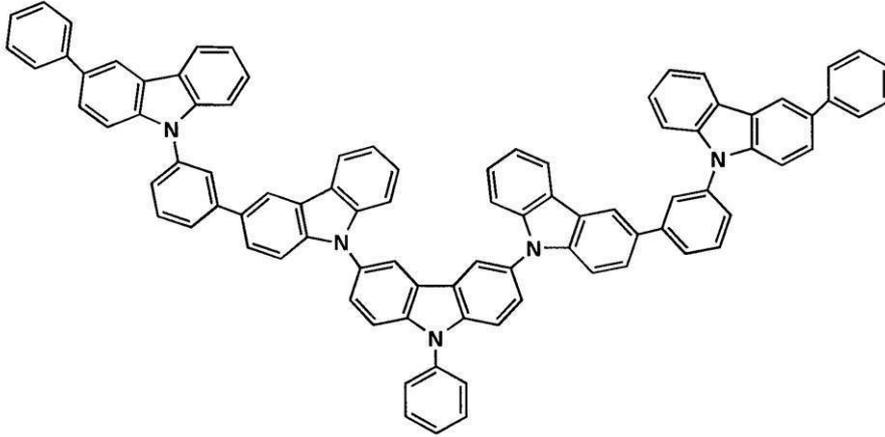


30

【 0 0 7 7 】

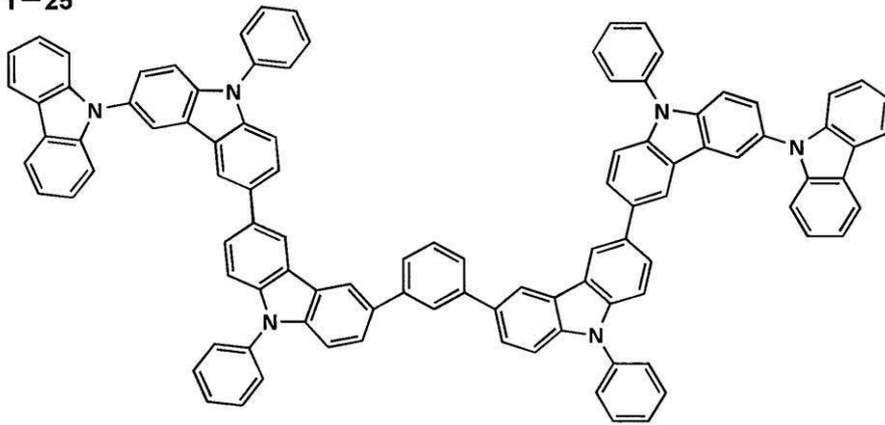
【化 1 4】

1-24



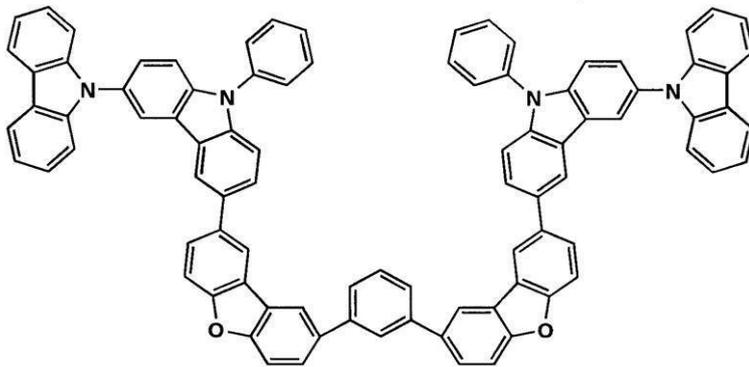
10

1-25



20

1-26

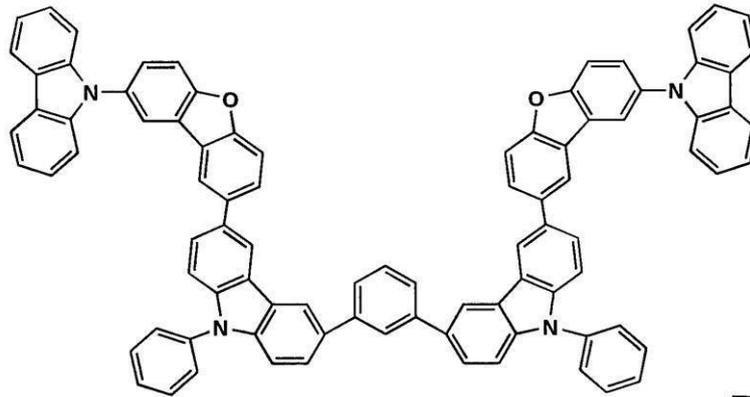


30

【 0 0 7 8 】

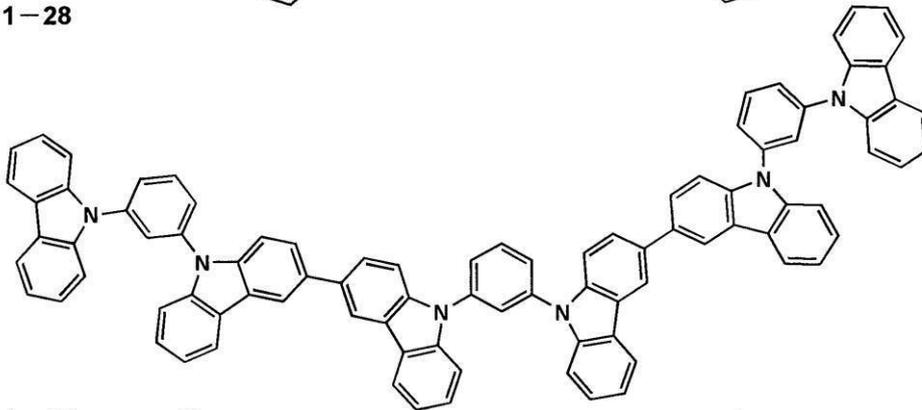
【化 1 5】

1-27



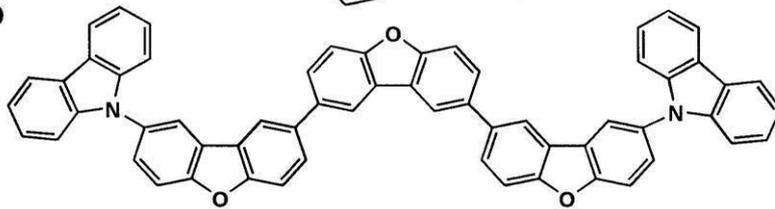
10

1-28



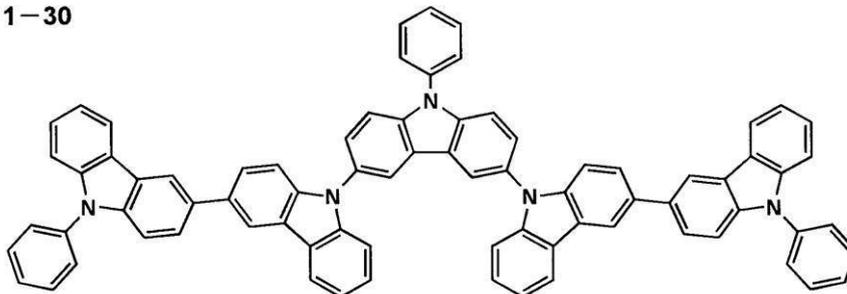
20

1-29



30

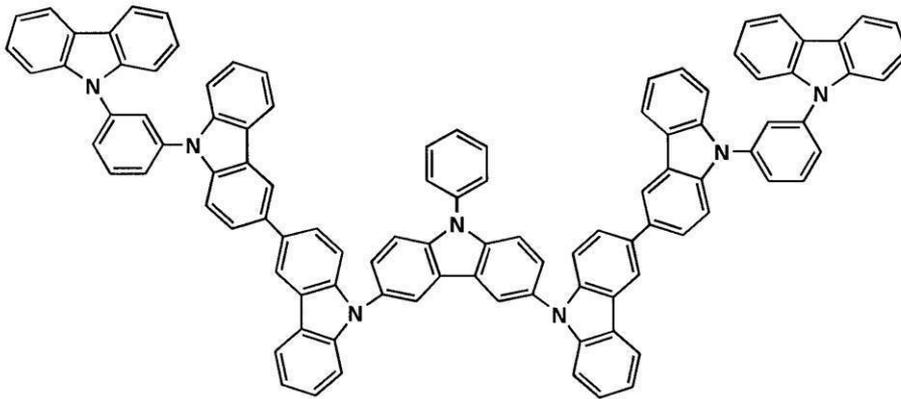
1-30



【 0 0 7 9 】

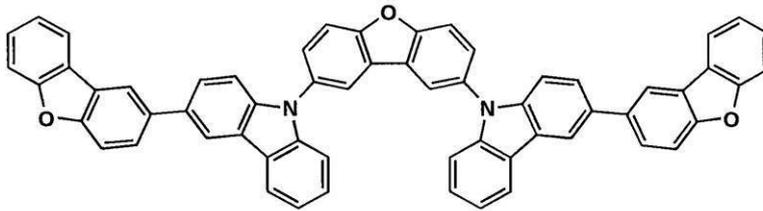
【化 1 6】

1-31



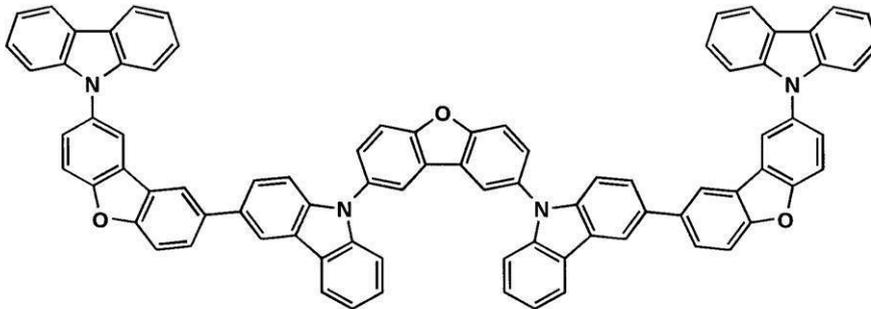
10

1-32



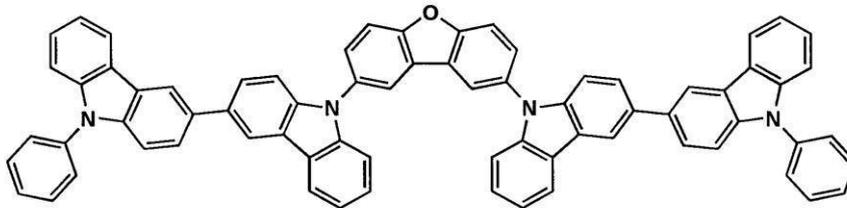
20

1-33



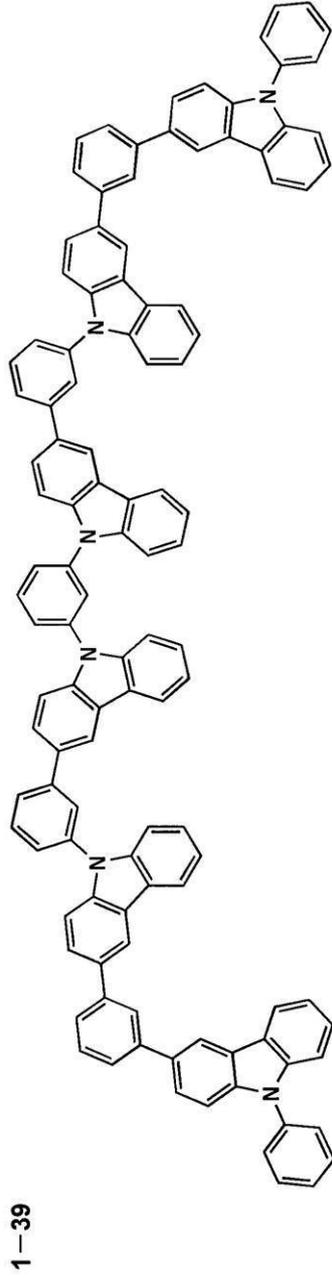
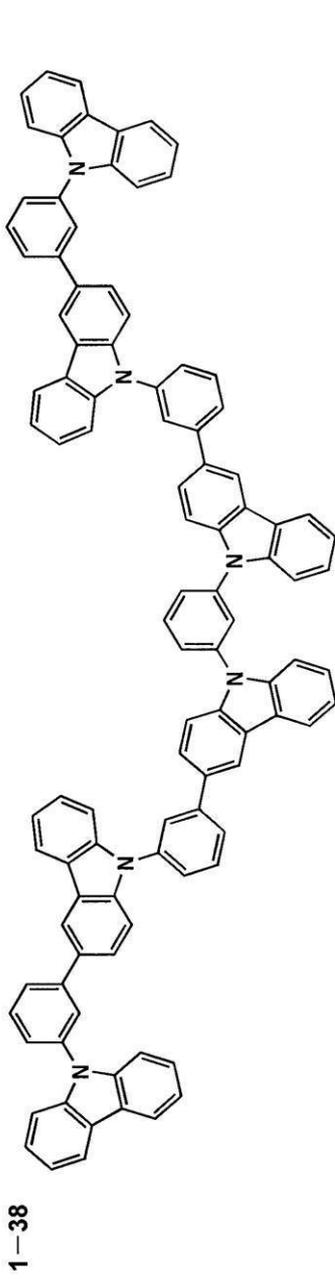
30

1-34



【 0 0 8 0 】

【化 1 8】



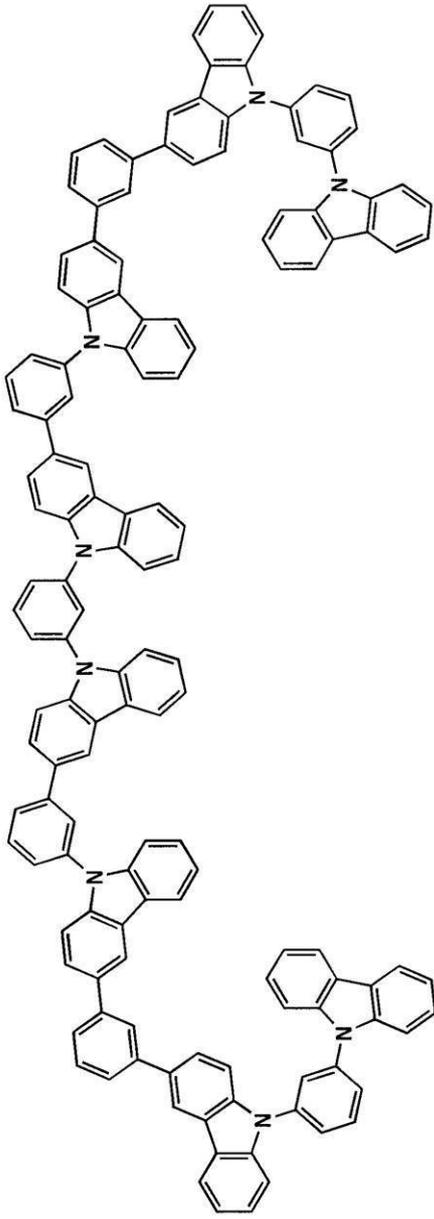
10

20

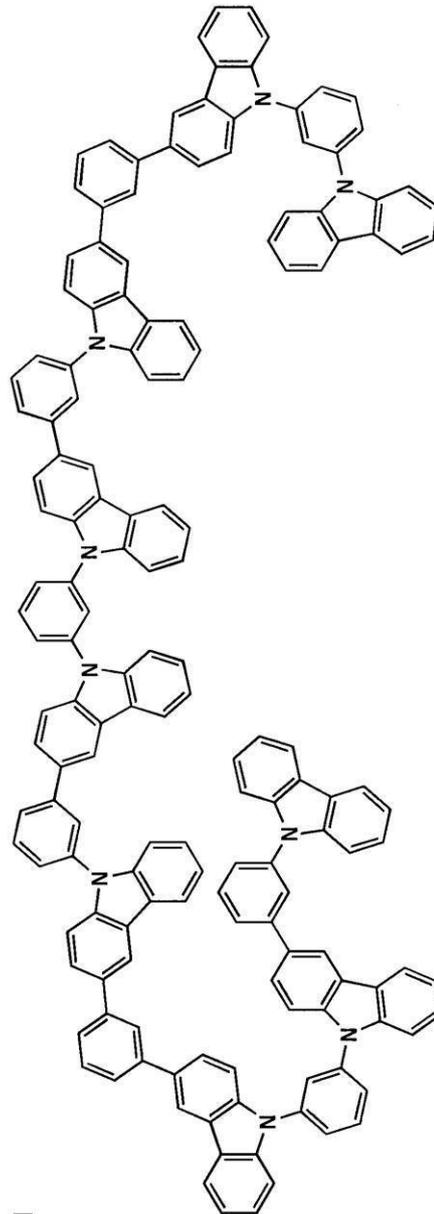
30

【 0 0 8 2 】

【化 1 9】



1-40



1-41

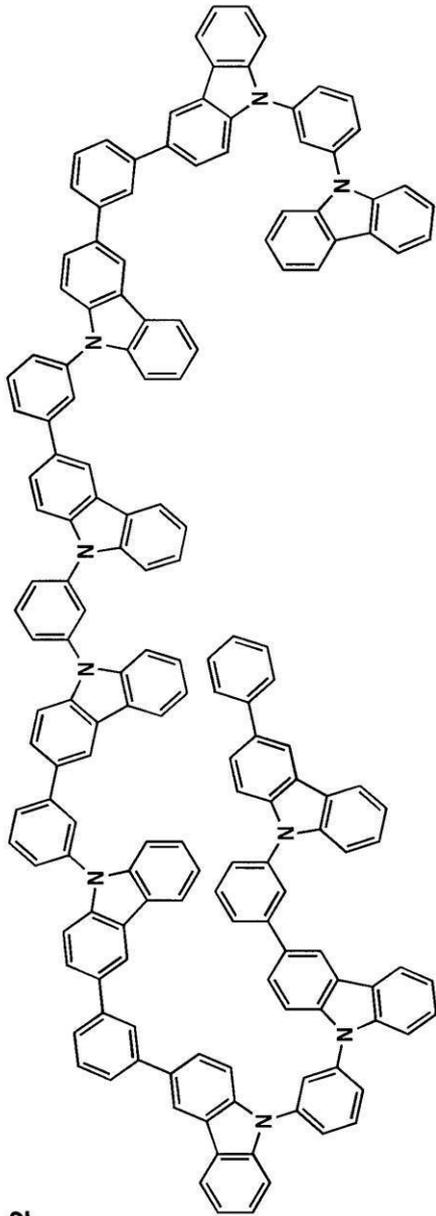
10

20

30

【 0 0 8 3 】

【化 2 0】



10

20

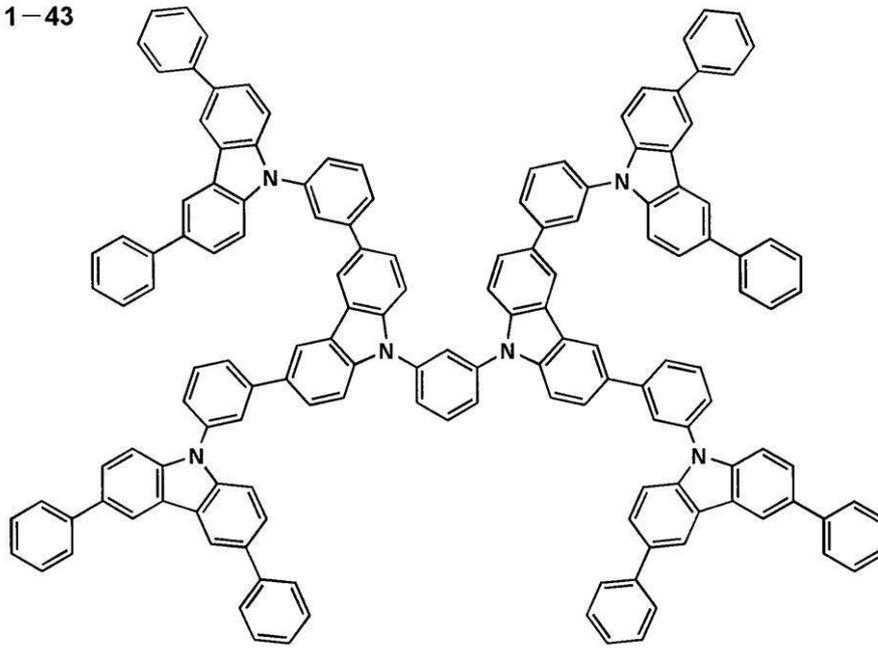
30

1-42

【 0 0 8 4 】

【化 2 1】

1-43

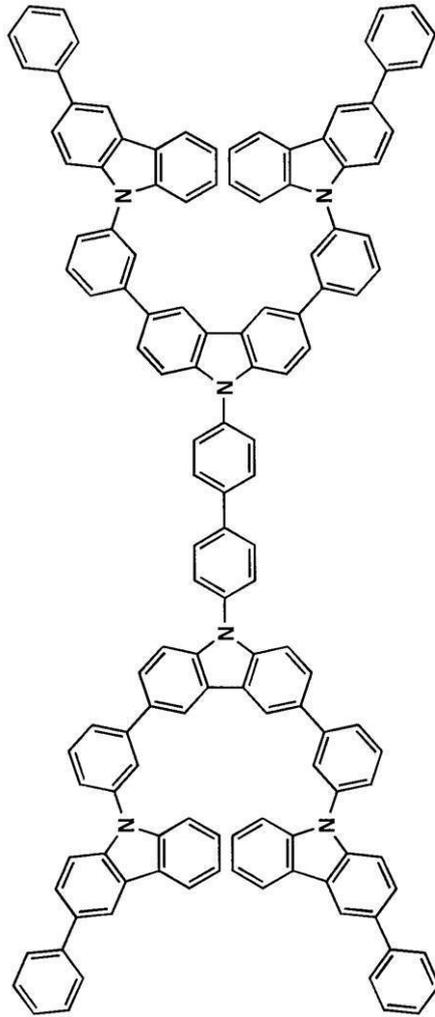


10

20

【 0 0 8 5 】

【化 2 2】



10

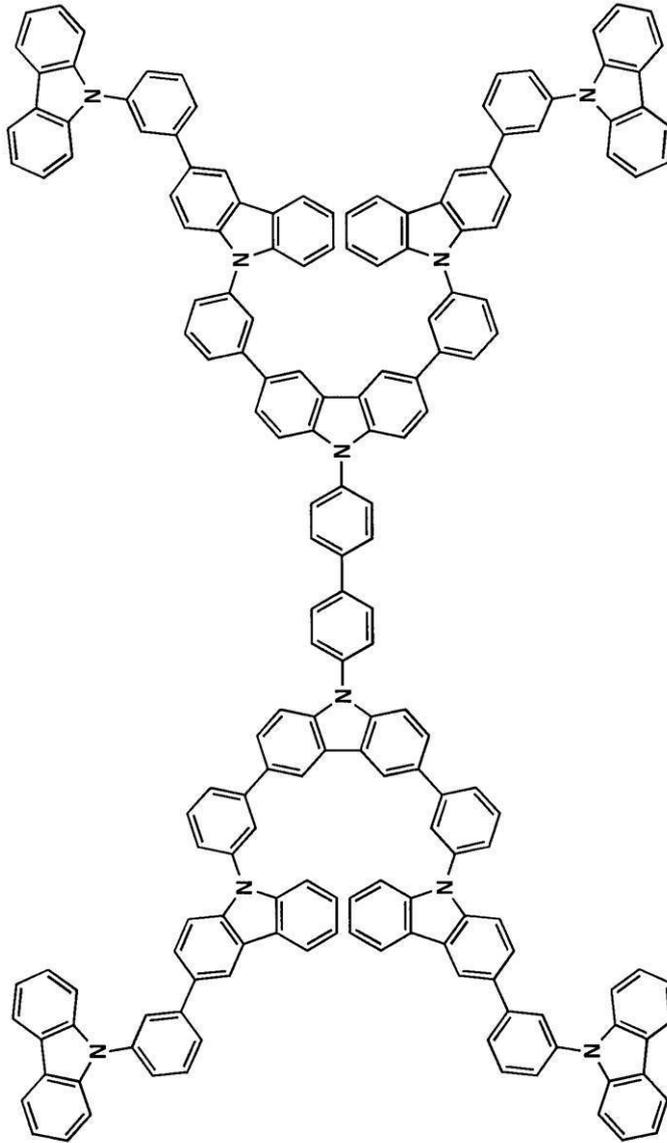
20

30

1-44

【 0 0 8 6 】

【化 2 3】



10

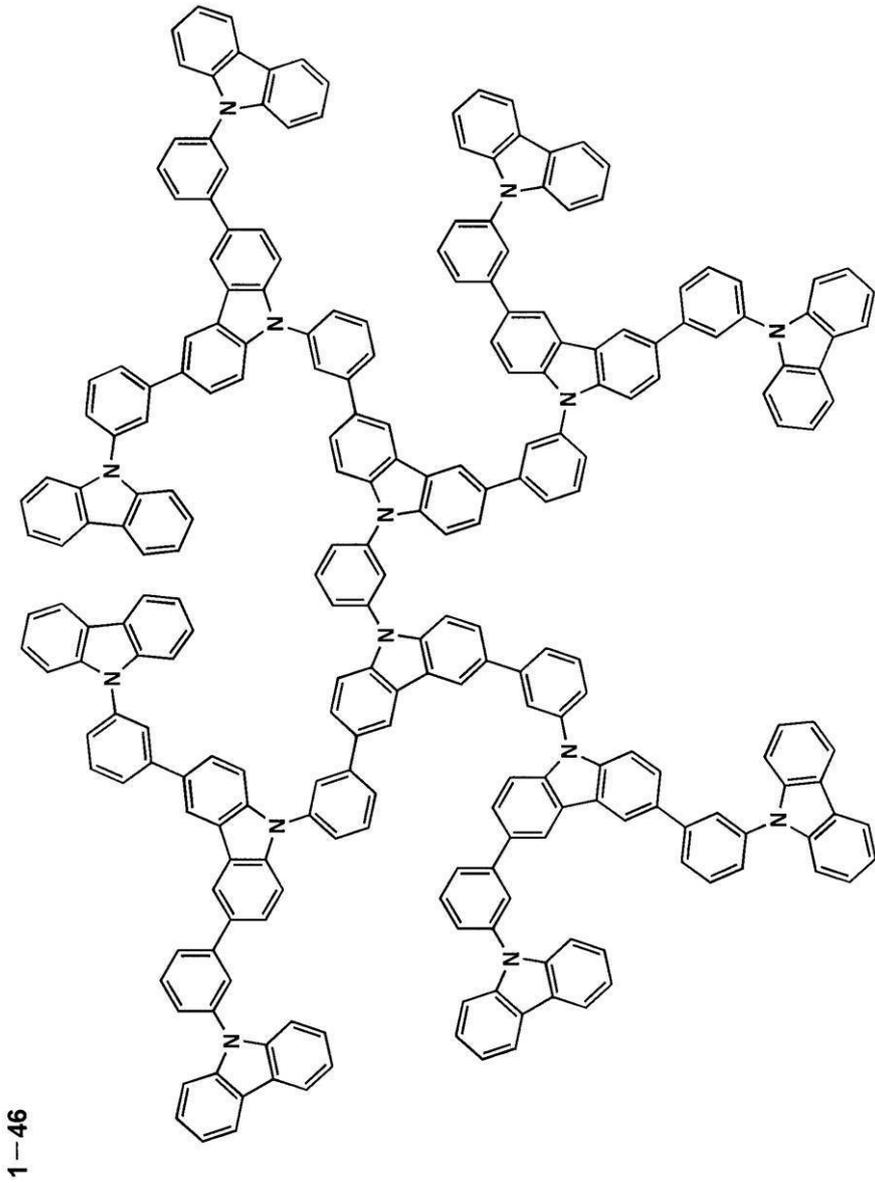
20

30

1-45

【 0 0 8 7 】

【化 2 4】



10

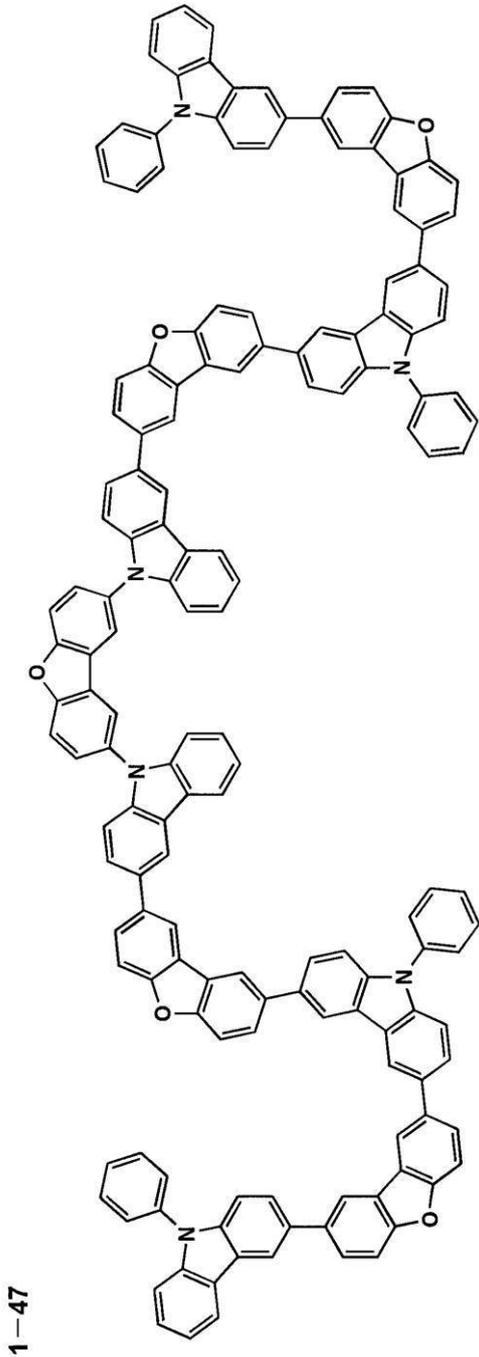
20

30

1-46

【 0 0 8 8 】

【化 2 5】



10

20

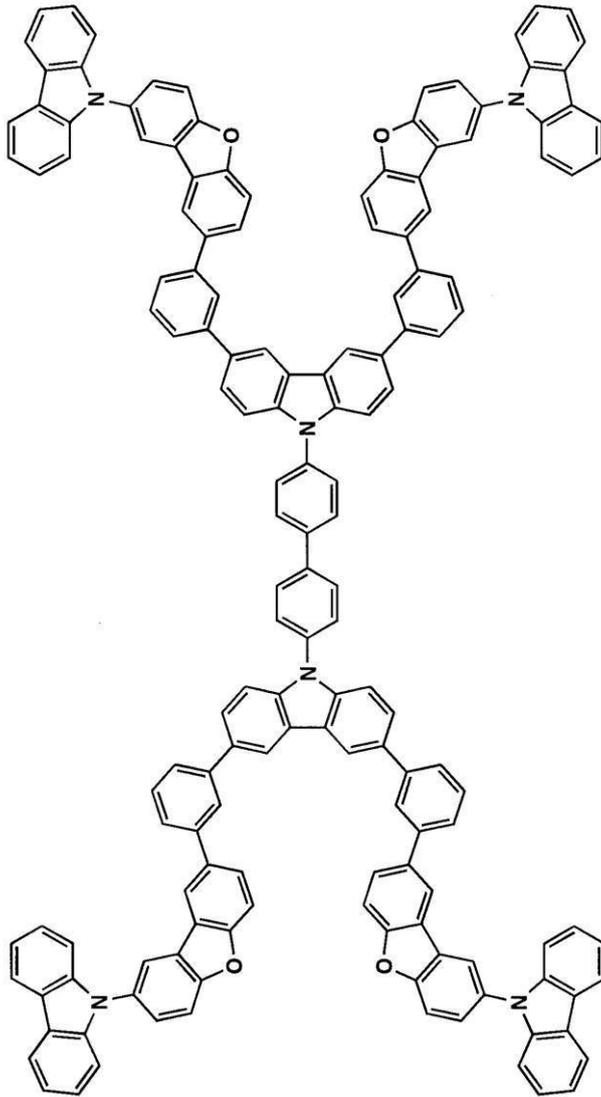
30

1-47

【 0 0 8 9 】

40

【化 2 6】



10

20

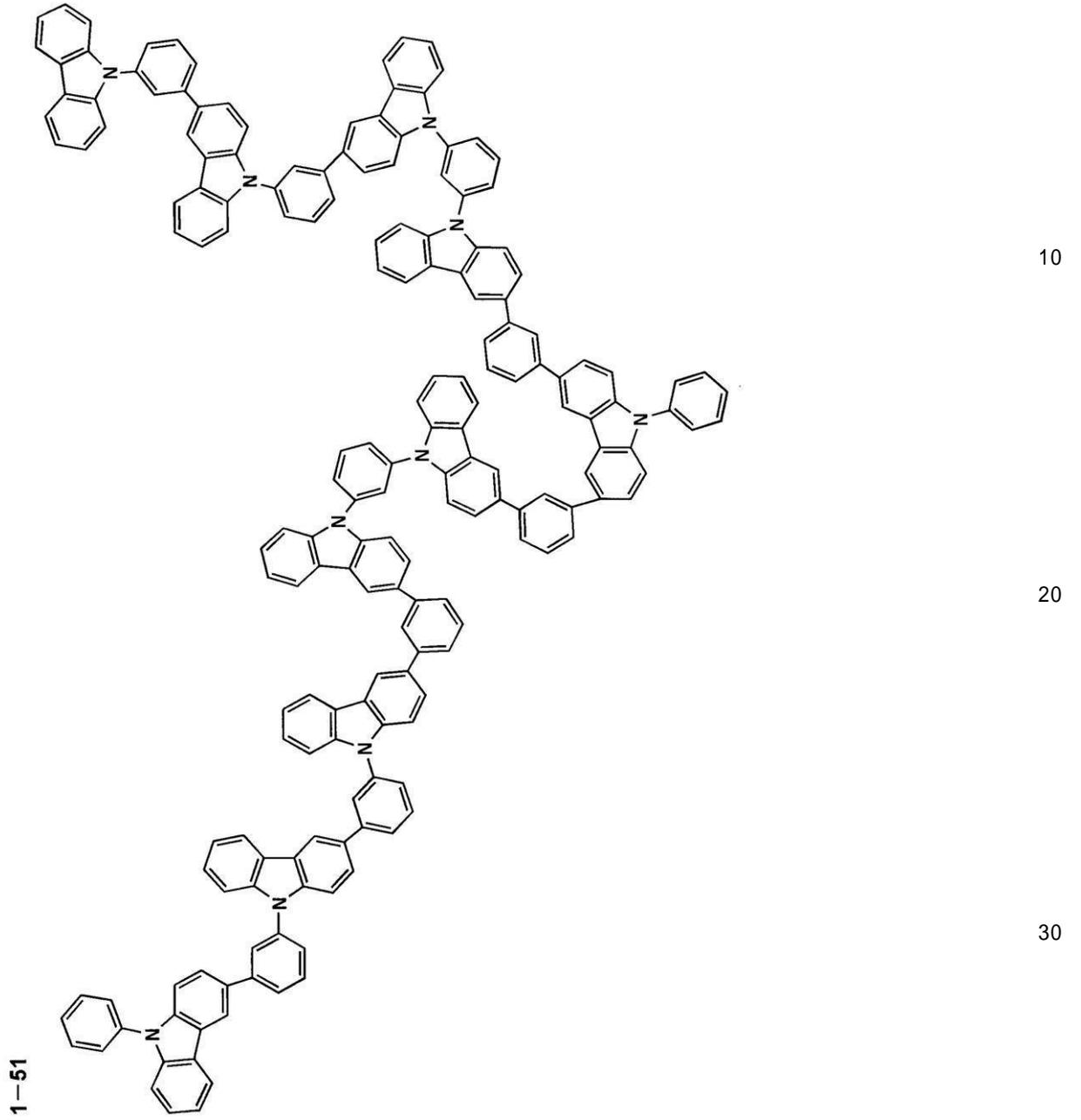
30

1-48

【 0 0 9 0 】

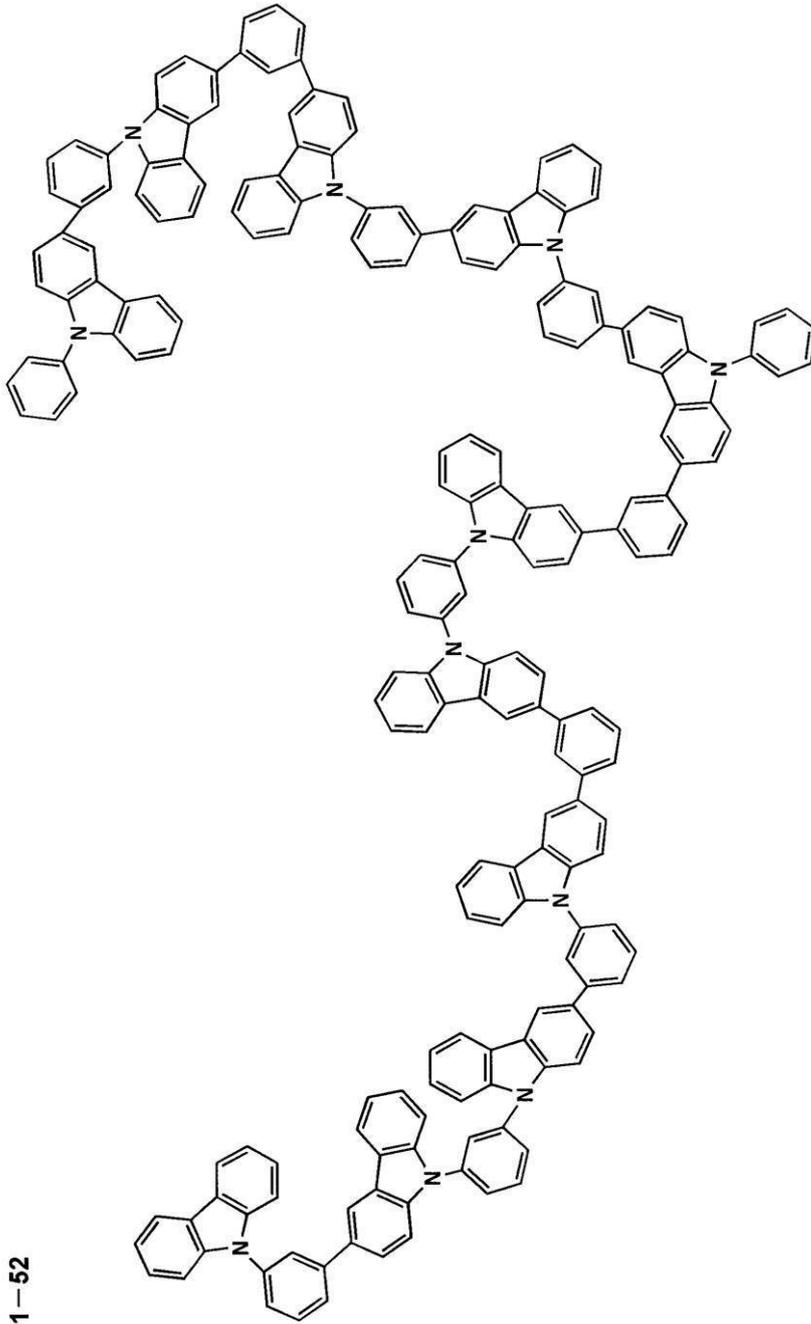
40

【化 2 8】



【 0 0 9 2 】

【化 2 9】



10

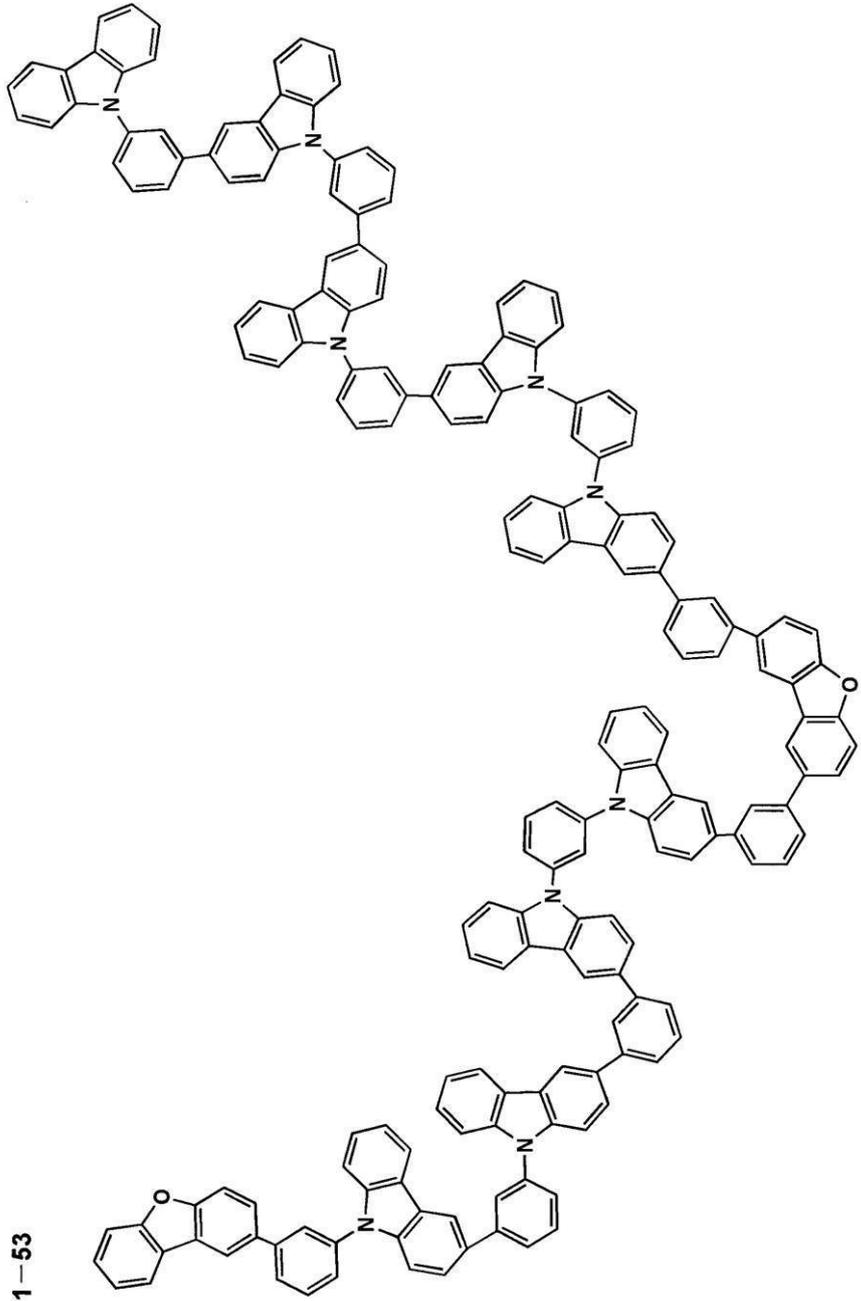
20

30

1-52

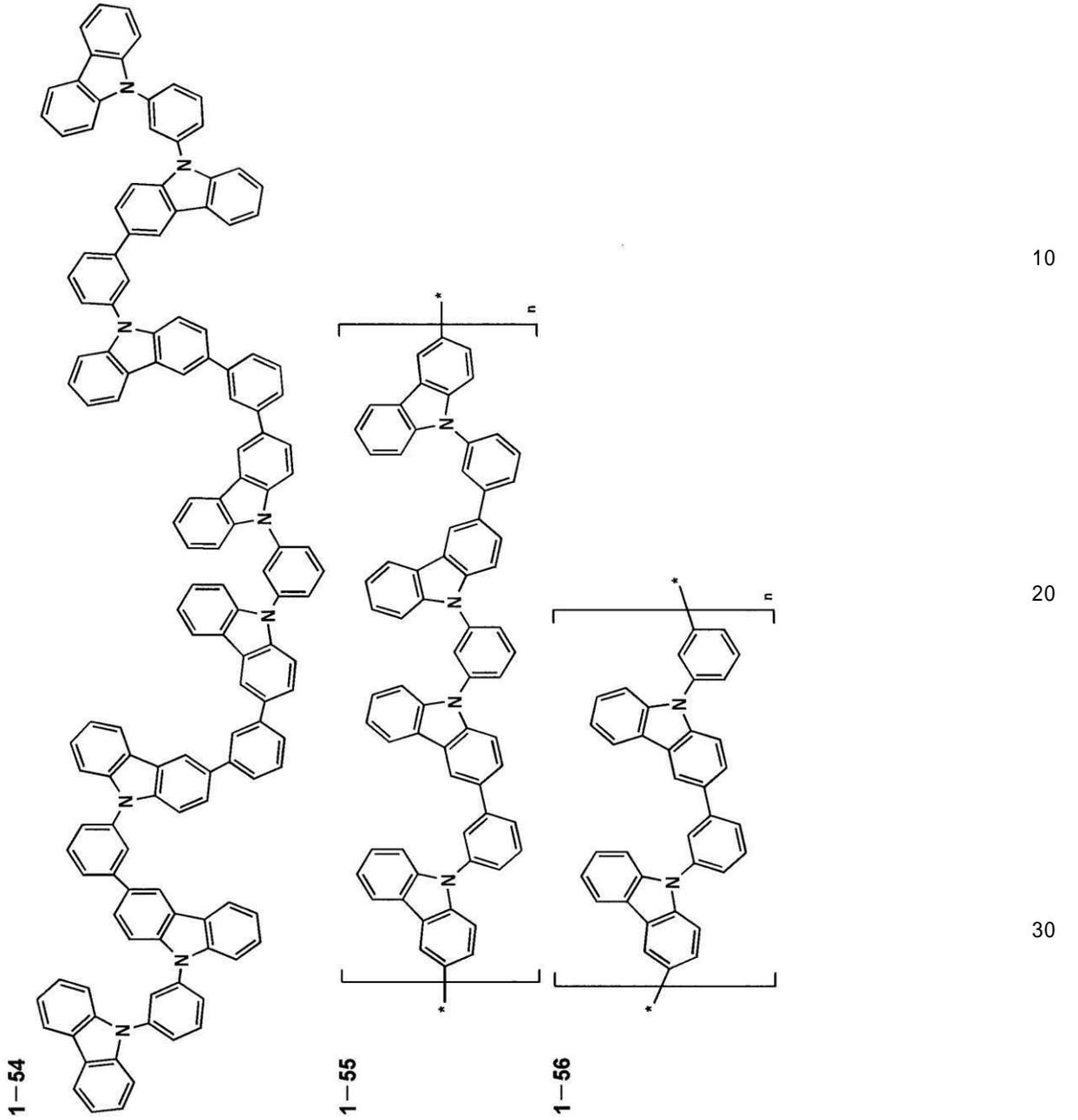
【 0 0 9 3 】

【化 3 0】



【 0 0 9 4 】

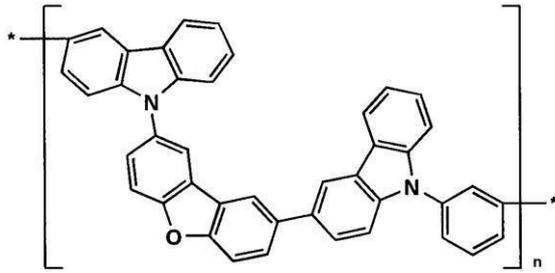
【化 3 1】



【 0 0 9 5 】

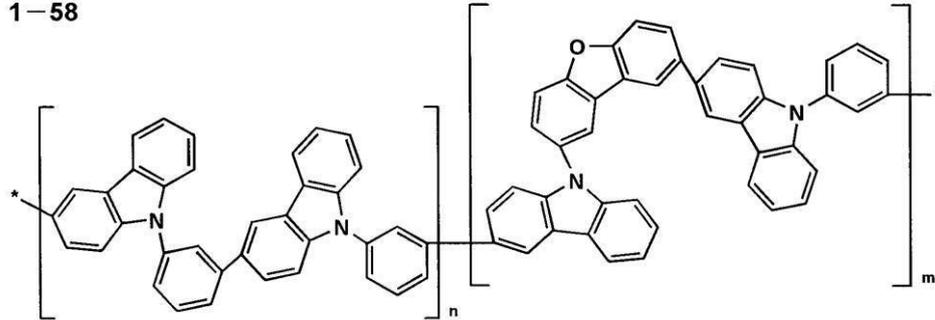
【化 3 2】

1-57



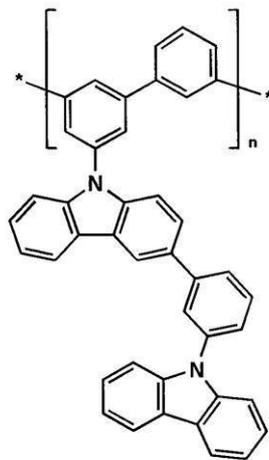
10

1-58



20

1-59

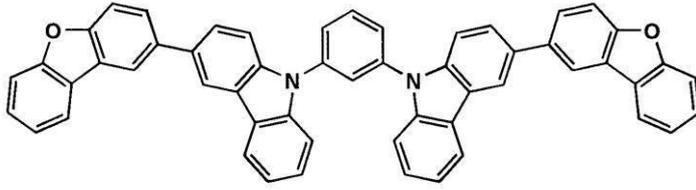


30

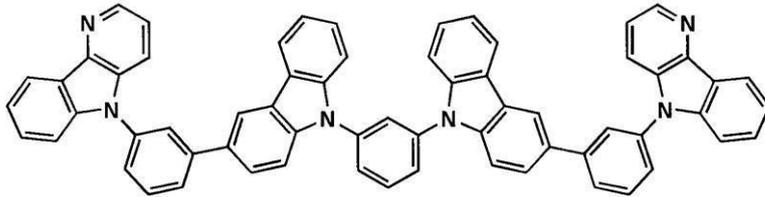
【 0 0 9 6 】

【化 3 3】

1-60

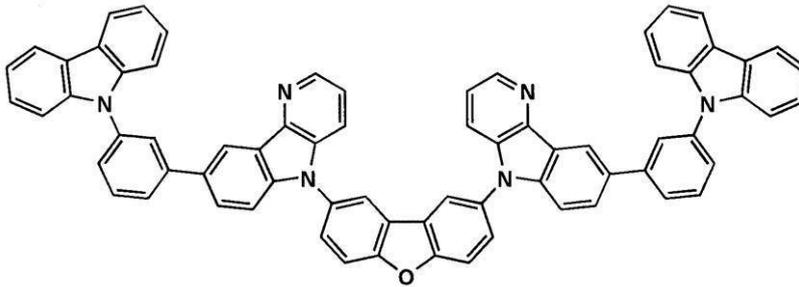


1-61



10

1-62

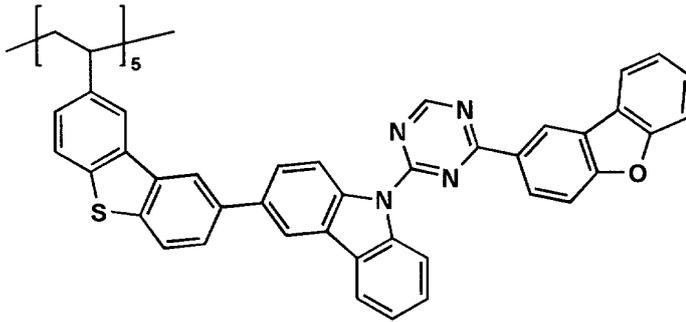


20

【 0 0 9 7 】

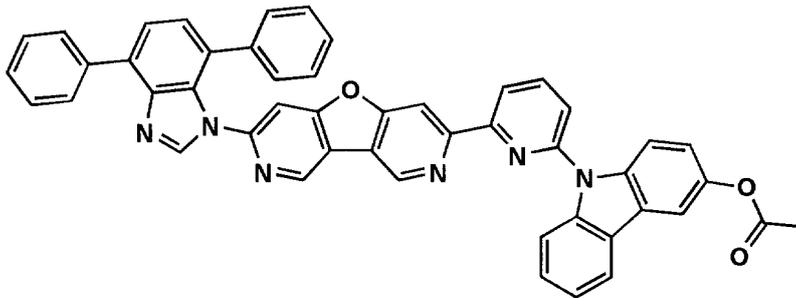
【化 3 4】

1-63



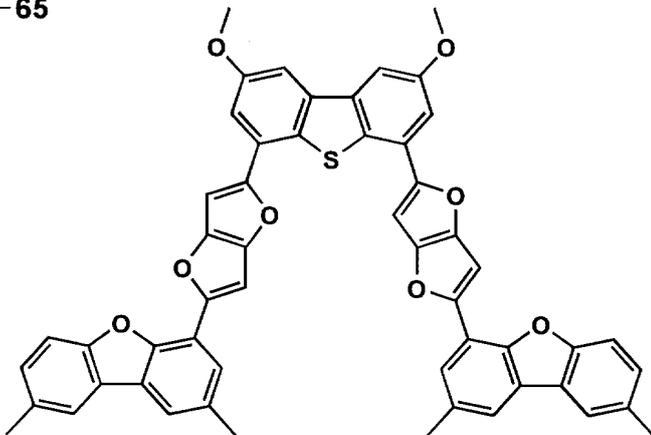
10

1-64



20

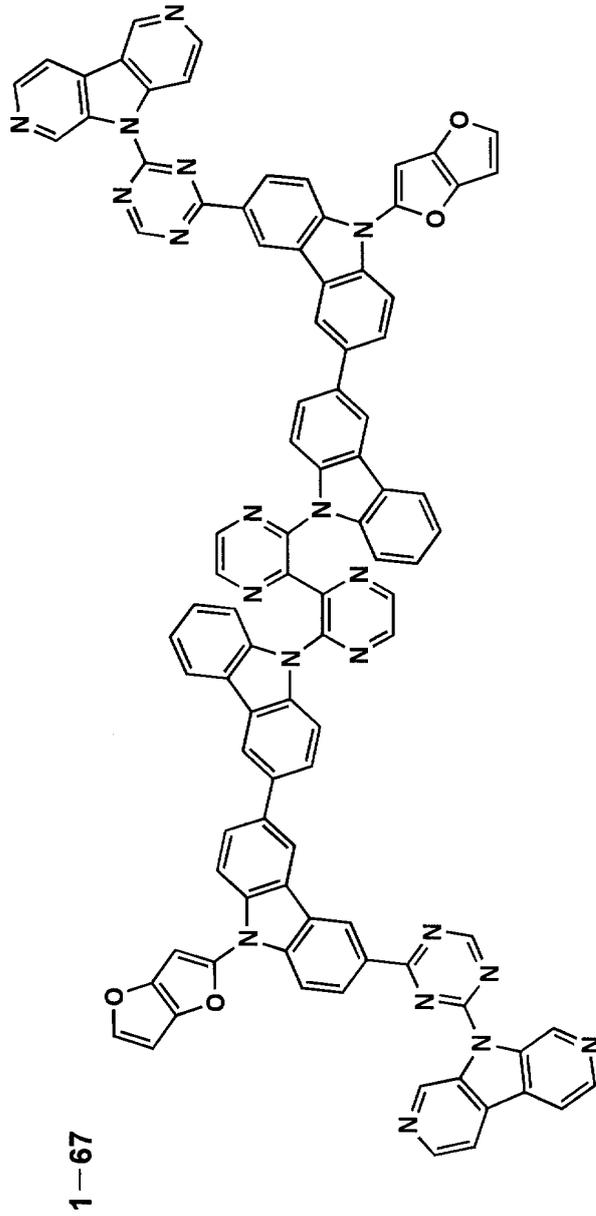
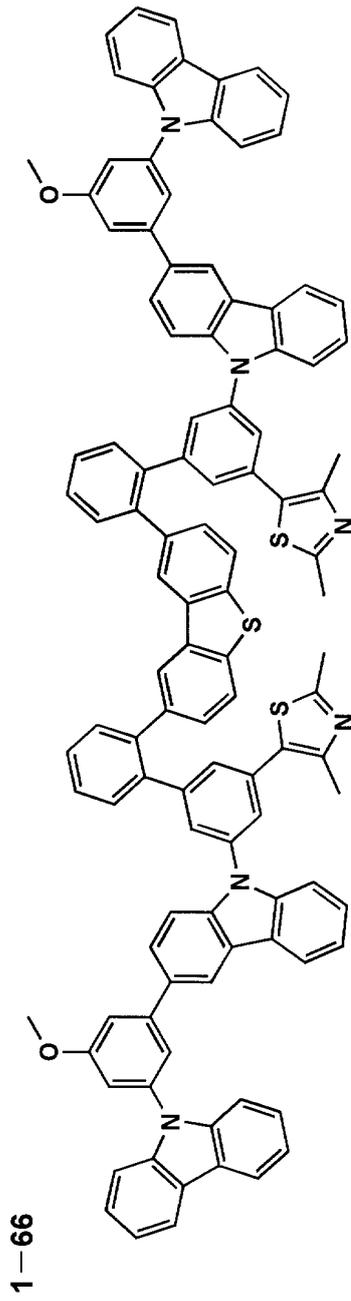
1-65



30

【 0 0 9 8 】

【化 3 5】



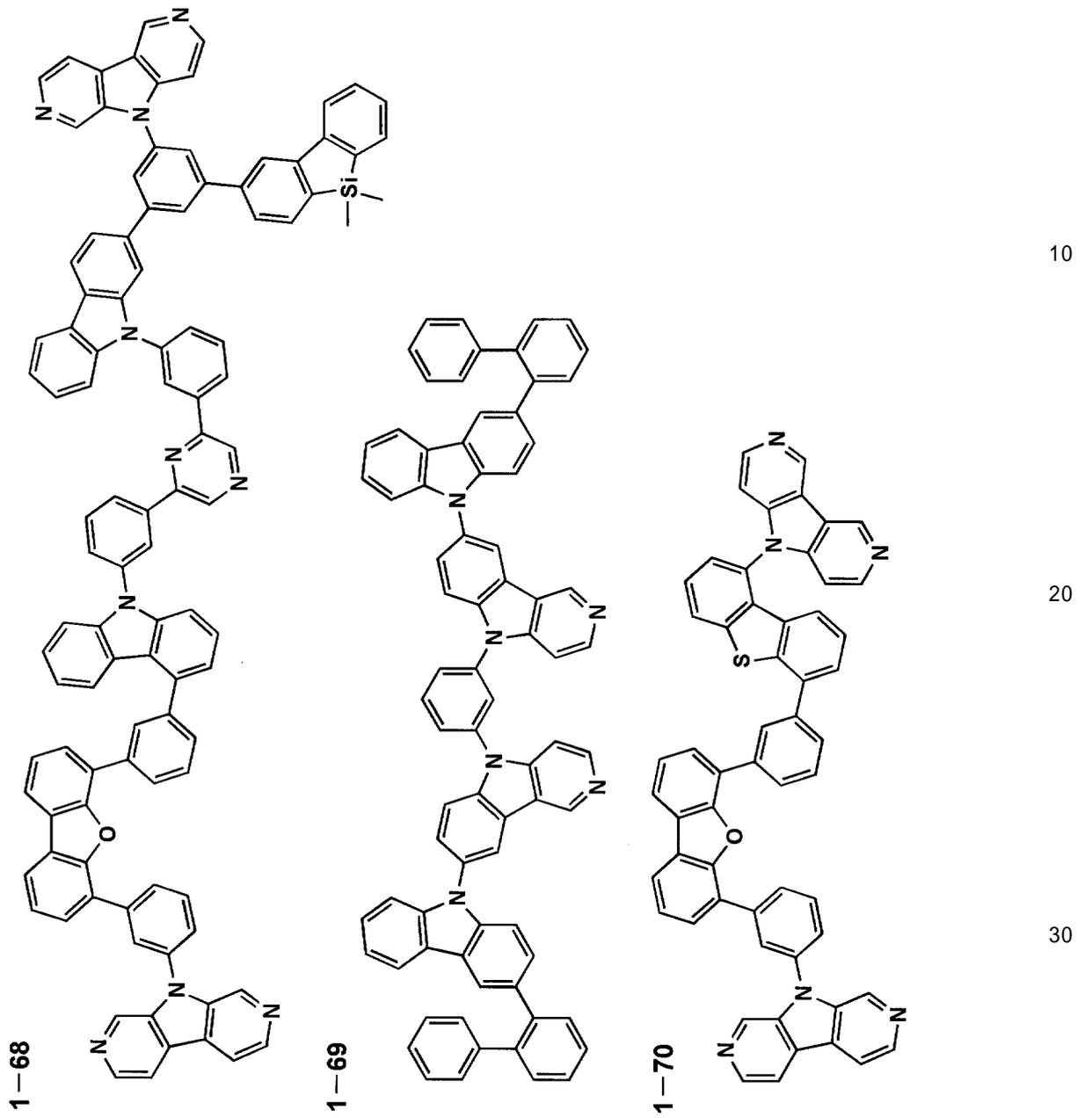
10

20

30

【 0 0 9 9 】

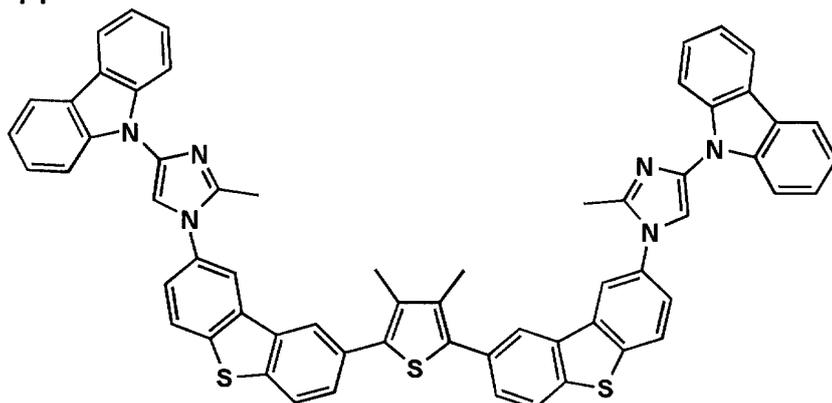
【化 3 6】



【 0 1 0 0 】

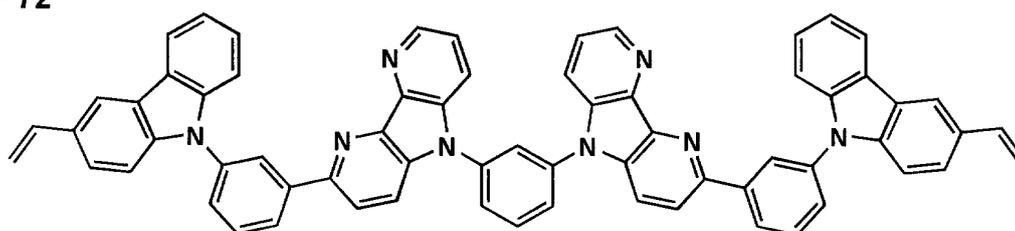
【化37】

1-71



10

1-72



20

【0101】

また、以下に本発明に係る一般式(1)で表される化合物の合成の一例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

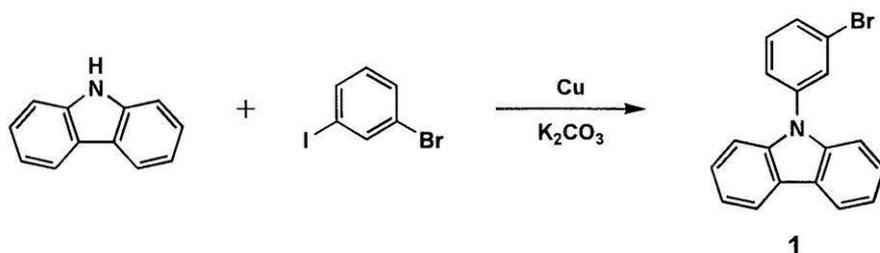
【0102】

(合成例)

【0103】

【化38】

30



1

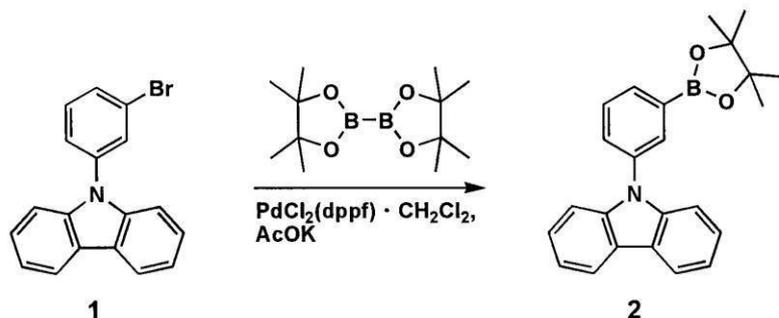
【0104】

カルバゾール13.4g、3-ブロモヨードベンゼン25.0g、炭酸カリウム13.4g、銅(粉末)6.2gにN,N-ジメチルアセトアミド(脱水)90mlを加え、窒素気流下で7時間加熱還流を行った。反応液を室温まで冷却した後、不溶物をろ過し、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた混合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体1を17g得た。収率は57%であった。得られた中間体1は、核磁気共鳴スペクトル、マススペクトルで構造を確認した。

【0105】

40

【化39】



10

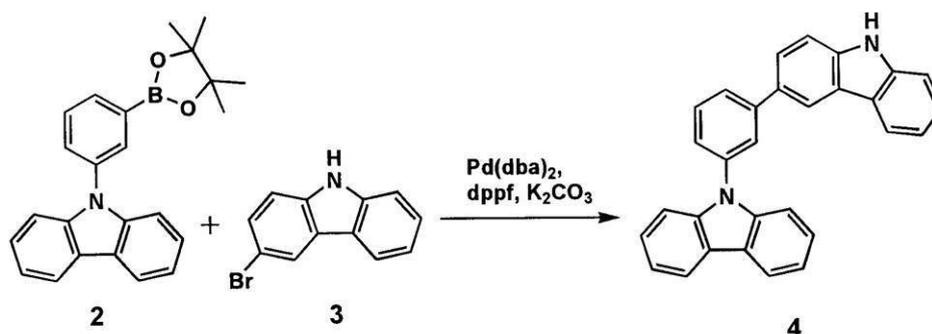
【0106】

中間体1を20g、ビス(ピナコラト)ジボロン18.9g、酢酸カリウム12.2g、 $\text{PdCl}_2(\text{dppf}) \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ ([1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリドジクロロメタン錯体)を1.0gにジメチルスルホキシド300mlを加え、窒素気流下100℃で16時間加熱攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物をろ過し、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた混合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体2を20.6g得た。収率は90%であった。得られた中間体2は、核磁気共鳴スペクトル、マススペクトルで構造を確認した。

20

【0107】

【化40】



30

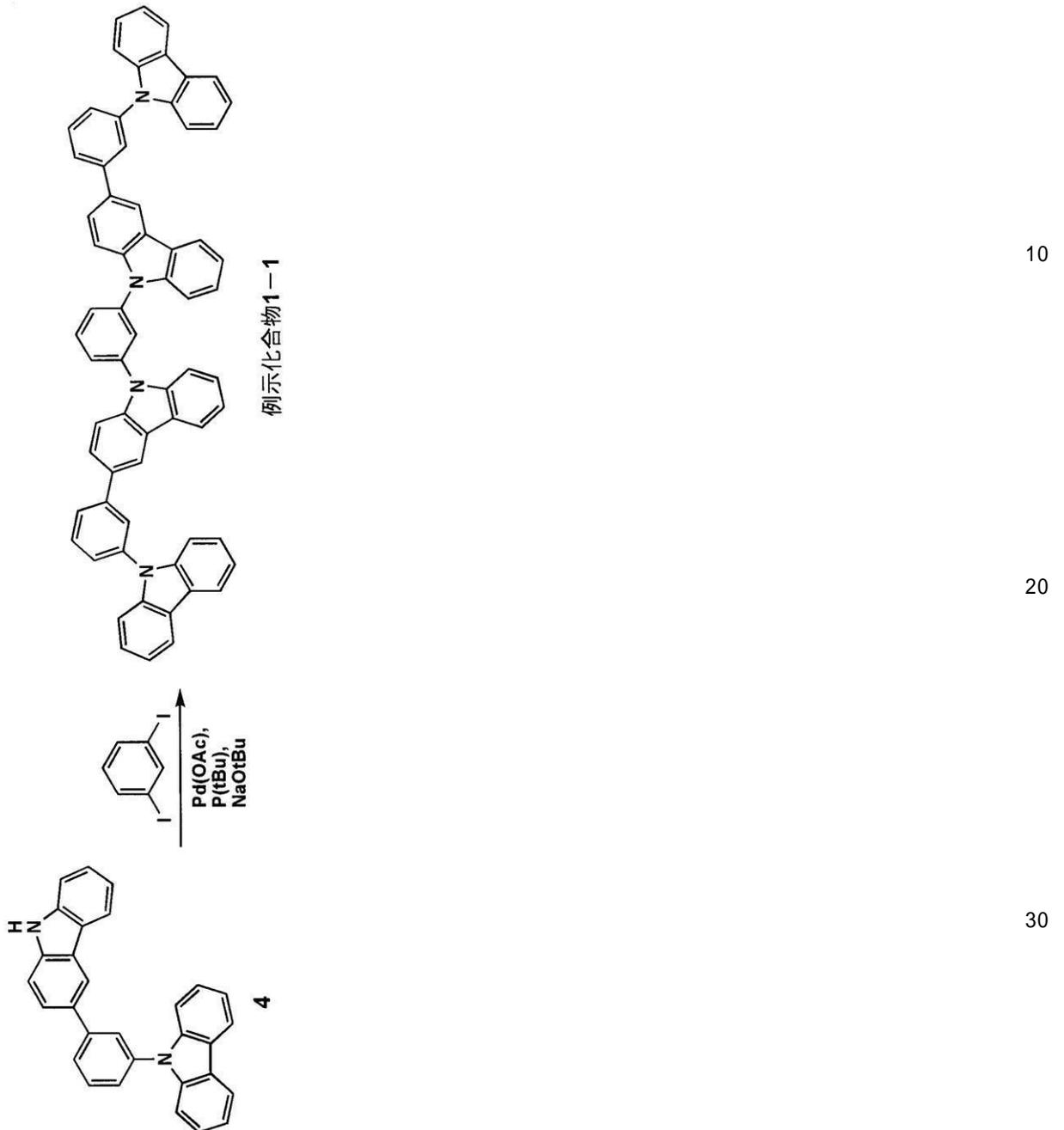
【0108】

中間体2を24.6g、中間体3を13.7g、炭酸カリウム23.1g、 $\text{Pd}(\text{dba})_2$ (ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム)を0.64g、 dppf (ジフェニルホスフィノフェロセン)を0.62gに、1,2-ジメトキシエタン550mlと水70mlを加え、5時間加熱還流を行った。反応液を室温まで冷却した後、不溶物をろ過し、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた混合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、中間体2を16.5g得た。収率は72%であった。得られた中間体4は、核磁気共鳴スペクトル、マススペクトルで構造を確認した。

40

【0109】

【化 4 1】



【0110】

酢酸パラジウム0.29gに、tert-ブチルホスフィンの50g/Lトルエン溶液を2.1gとキシレン(脱水)を10mlを加え、窒素気流下室温で1時間攪拌した。続いて、中間体4を7.5g、1,3-ジヨードベンゼン2.9g、ナトリウムt-ブトキシド2.1g、キシレン(脱水)120mlを加え、窒素気流下にて5時間加熱還流を行った。反応液を室温まで冷却した後、不溶物をろ過し、水を加え、トルエンで抽出した。有機層は水洗を繰り返し、減圧下で濃縮した。得られた混合物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、更にトルエンで再結晶を行い、例示化合物1-1を5.7g得た。収率は73%であった。得られた例示化合物1-1は、核磁気共鳴スペクトル、マスマスペクトルで構造を確認した。

40

【0111】

本発明において、前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物は、後述するが

50

、ホスト化合物として発光層中に含有することが好ましい。

【0112】

次に、本発明における一般式(2)で表される金属錯体について説明する。

【0113】

(配位子)

本発明に係る一般式(2)で表される金属錯体においては、 $m_1 > m_2$ である場合、 m_1 を有する括弧内に示す部分構造若しくはその互変異性体で表される部分構造を主配位子と称し、 m_2 を有する括弧内に示す部分構造若しくはその互変異性体で表される部分構造を副配位子と称す。

【0114】

本発明において、該金属錯体は、主配位子若しくはその互変異性体と副配位子若しくはその互変異性体の組み合わせで構成されるか、後述するが、 $m_2 = 0$ の場合、即ち該金属錯体の配位子の全てが、主配位子又はその互変異性体で表される部分構造のみで構成されていてもよい。

【0115】

更に従来公知の金属錯体形成に用いられる、所謂配位子として当該業者が周知の配位子(配位化合物とも言う)を必要に応じて配位子として有していてもよい。

【0116】

本発明に記載の効果を好ましく得る観点からは、錯体中の配位子の種類は1~2種類から構成されることが好ましく、更に好ましくは1種類である。

【0117】

従来公知の金属錯体に用いられる配位子としては、種々の公知の配位子があるが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H. Yersin 著 1987年発行、「有機金属化学-基礎と応用」裳華房社 山本明夫著 1982年発行等に記載の配位子(例えば、ハロゲン配位子(好ましくは塩素配位子)、含窒素ヘテロ環配位子(例えば、ピピリジル、フェナントロリンなど)、ジケトン配位子などが挙げられる。

【0118】

(元素周期表の8~10族の遷移金属元素)

本発明に係る一般式(2)で表される金属錯体の形成に用いられる金属としては、元素周期表の8~10族の遷移金属元素(単に遷移金属ともいう)が用いられるが、中でも、イリジウム、白金が好ましい遷移金属元素として挙げられる。更に好ましくは、イリジウムが良い。

【0119】

一般式(2)において、 X_4 は窒素原子又は炭素原子を表し、Yは炭素原子又は窒素原子を表す。Aは6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。

【0120】

6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環としては、具体的にはベンゼン環、クロロベンゼン環、メシチレン環、トルエン環、キシレン環、ナフタレン環、アントラセン環、アズレン環、アセナフテン環、フルオレン環、フェナントレン環、インデン環、ピレン環、ピフェニール環、ピリジン環、ピリミジン環、ベンズイミダゾール環、ピラジン環、キノリン環、ベンゾフラン環、ジベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、ジベンゾチオフェン環、インドール環、カルバゾール環、カルボリン環、ジアザカルバゾール環(前記カルボリン環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)、キノキサリン環、ピリダジン環、トリアゾール環、キナゾリン環、フタラジン環等が挙げられ、好ましくはベンゼン環が挙げられる。またこれらの基は、無置換でも更に置換基を有していてもよい。

【0121】

10

20

30

40

50

更にこれらの芳香族炭化水素環又は芳香族複素環は、例えば、後述の置換基によって置換されていてもよく、更に縮合環を形成してもよい。

【0122】

前記一般式(2)において、Bは5～6員の含窒素芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、5～6員の含窒素芳香族複素環としては、ピリジン環、ピリミジン環、ピロリン環、イミダゾール環、ベンゾイミダゾール環、ピラゾール環、ピラジン環、トリアゾール環(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)、オキサゾール環、ベンゾオキサゾール環、チアゾール環、イソオキサゾール環、イソチアゾール環、フラザン環、イソキノリン環等が挙げられる。好ましくは、イミダゾール環が挙げられる。これらの環は、無置換でも更に置換基を有していてもよい。

10

【0123】

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、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素環基(芳香族炭素環基、アリール基等とも言い、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、モルホルル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジ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、

20

30

40

50

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又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)等が挙げられる。

【0124】

$X_1 - L_1 - X_2$ は2座の配位子を表し、 X_1 、 X_2 は各々独立に炭素原子、窒素原子又は酸素原子を表す。 L_1 は X_1 、 X_2 と共に2座の配位子を形成する原子群を表す。 $X_1 - L_1 - X_2$ で表される2座の配位子の具体例としては、置換又は無置換のフェニルピリジン、フェニルピラゾール、フェニルイミダゾール、フェニルtriaゾール、フェニルテトラゾール、ピラザポール、アセチルアセトン、ピコリン酸等が挙げられる。

【0125】

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

【0126】

一般式(2)は好ましくは一般式(3)で表され、一般式(3)において、Zは炭化水素基、炭化水素環基又は複素環基を表し、これらは置換基を有していてもよい。

【0127】

炭化水素基としては、メチル基、エチル基、*iso*-プロピル基が挙げられる。炭化水素環基としては、非芳香族炭化水素環基、芳香族炭化水素環基が挙げられ、非芳香族炭化水素環基としては、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも後述する置換基を有していてもよい。また、芳香族炭化水素環基(芳香族炭化水素基、アリール基等とも言う)としては、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、ピフェニル基等が挙げられる。

【0128】

複素環基としては、非芳香族複素環基、芳香族複素環基が挙げられ、非芳香族複素環基における非芳香族複素環としては、例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オ

10

20

30

40

50

キセタン環、アゼチジン環、チエタン環、テトラヒドロフラン環、ジオキサラン環、ピロリジン環、ピラゾリジン環、イミダゾリジン環、オキサゾリジン環、テトラヒドロチオフェン環、スルホラン環、チアゾリジン環、 β -カプロラクトン環、 γ -カプロラクタム環、ピペリジン環、ヘキサヒドロピリダジン環、ヘキサヒドロピリミジン環、ピペラジン環、モルホリン環、テトラヒドロピラン環、1,3-ジオキサン環、1,4-ジオキサン環、トリオキサン環、テトラヒドロチオピラン環、チオモルホリン環、チオモルホリン-1,1-ジオキシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2,2,2]オクタン環等を上げることができ、これらから導出される基を挙げることができる。

【0129】

芳香族複素環基としては、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、フタラジニル基等が挙げられる。これらの基は、無置換でも更に置換基を有していてもよい。これらの置換基としては、前記の、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環における置換基と同義のものが挙げられる。

【0130】

また、前記一般式(3)において、Aは一般式(2)と同様に、6員の芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表すが、このうち、Aはベンゼン環を表すことが好ましい。

【0131】

また、一般式(3)においては、金属錯体化合物が同一の配位子のみで構成されることが好ましい。

【0132】

m_1 は1、2又は3の整数、 m_2 は0、1又は2の整数を表すが、 $m_1 + m_2$ は2又は3である。中心金属であるMは元素周期表における8~10族の金属を表す。

【0133】

(元素周期表の8~10族の遷移金属元素)

本発明に係る一般式(3)におけるMとしては、元素周期表の8~10族の遷移金属元素(単に遷移金属とも言う)を表すが、中でも、イリジウム、プラチナが好ましい遷移金属元素として挙げられる。更に好ましくは、イリジウムが良い。

【0134】

以下、一般式(3)におけるZの好ましい例を挙げるが、Zは以下の例示以外にも更に置換基を有していてもよいなどこれらの例に限定されない。なお、*は結合位置を表す。

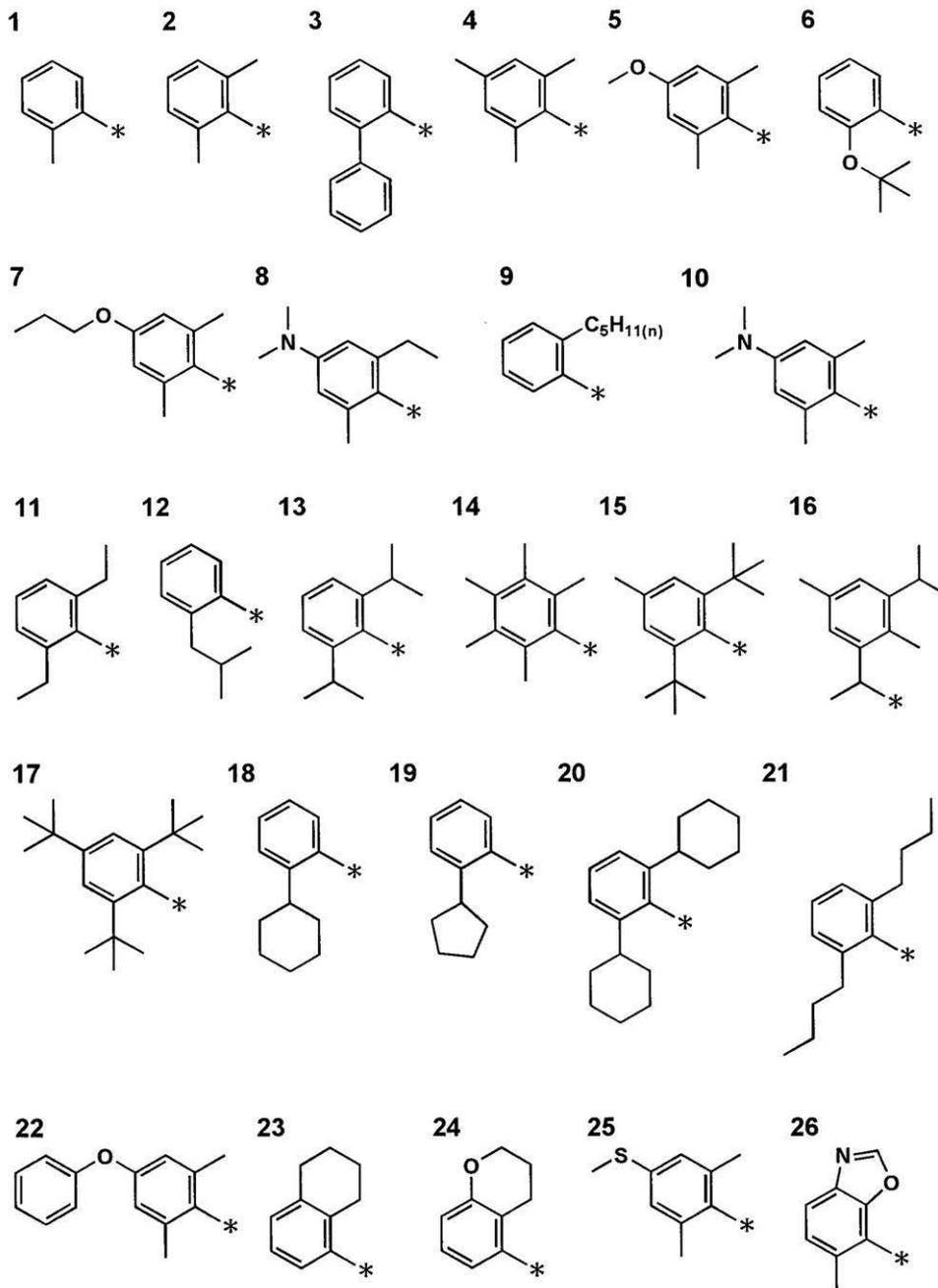
【0135】

10

20

30

【化 4 2】



10

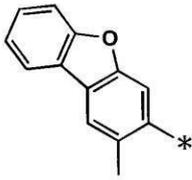
20

30

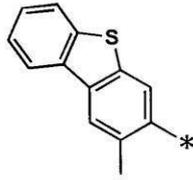
【 0 1 3 6 】

【化 4 3】

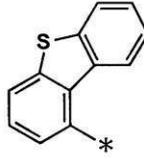
27



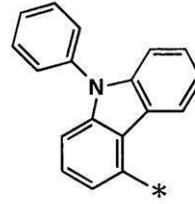
28



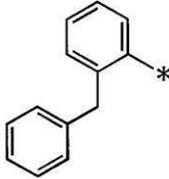
29



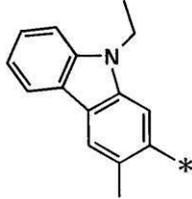
30



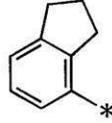
31



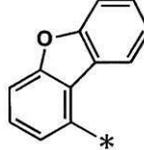
32



33

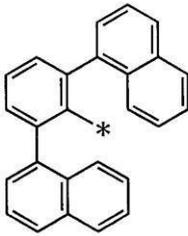


34

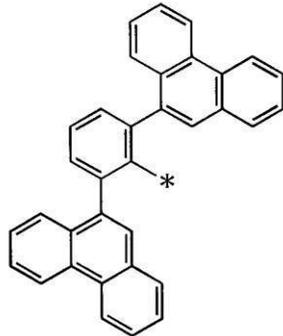


10

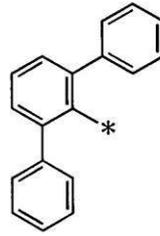
35



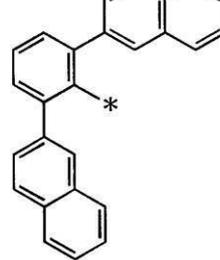
36



37

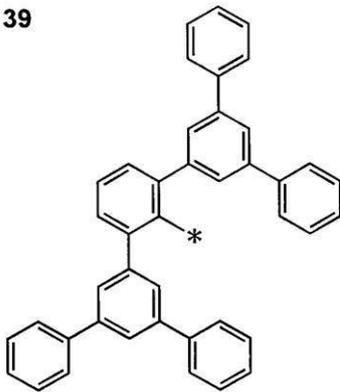


38

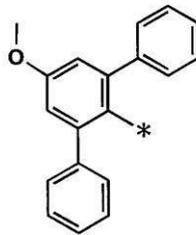


20

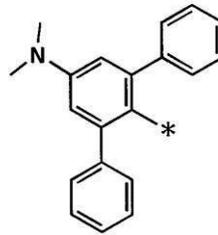
39



40



41

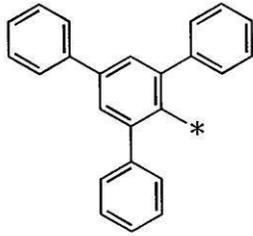


30

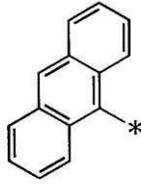
【 0 1 3 7 】

【化 4 4】

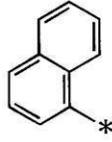
42



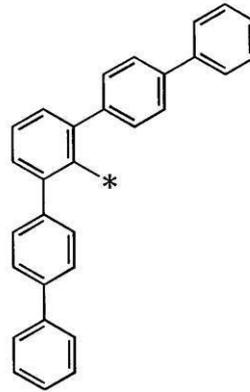
43



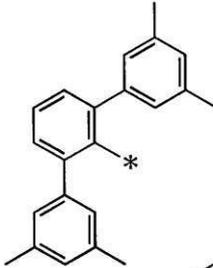
44



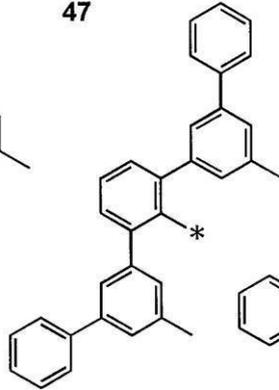
45



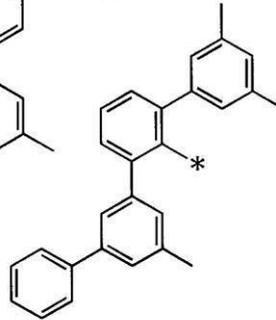
46



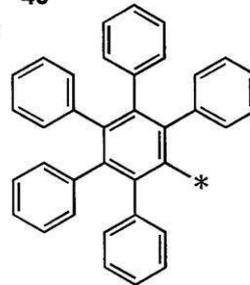
47



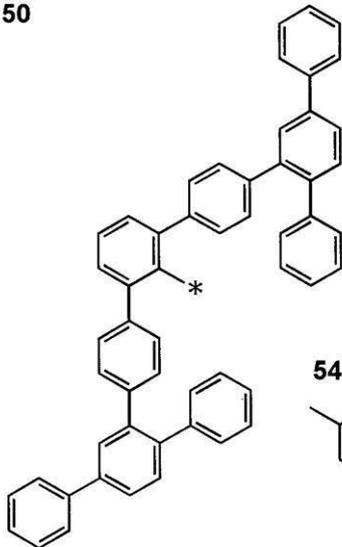
48



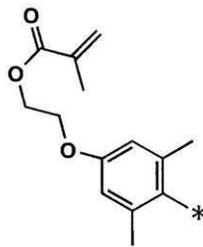
49



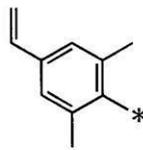
50



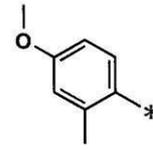
51



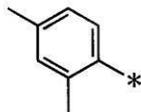
52



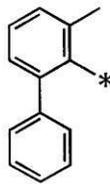
53



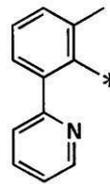
54



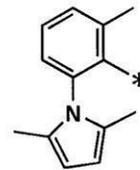
55



56



57



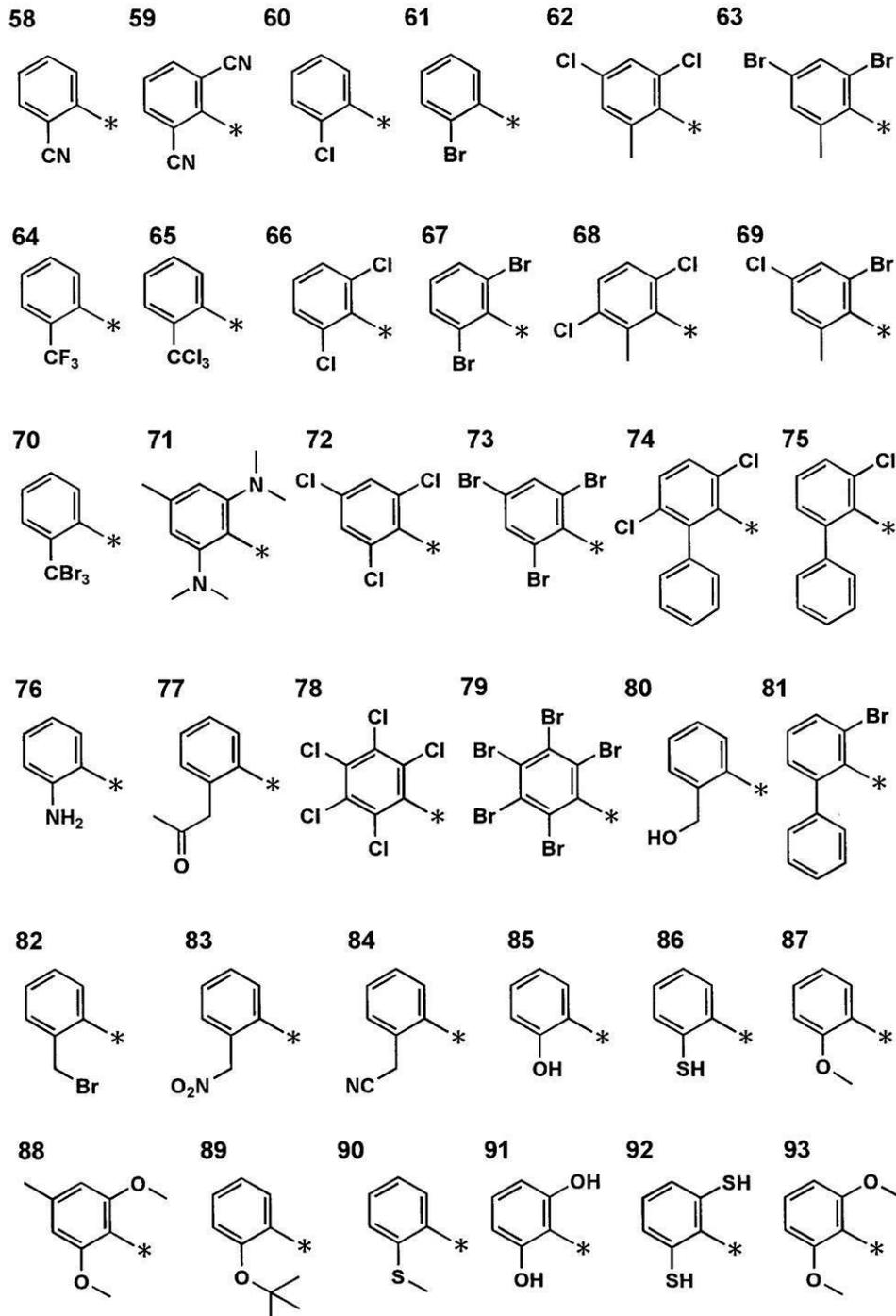
【 0 1 3 8 】

10

20

30

【化 4 5】



10

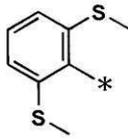
20

30

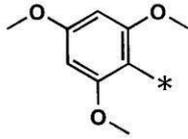
【 0 1 3 9 】

【化 4 6】

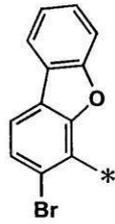
94



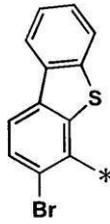
95



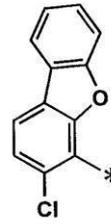
96



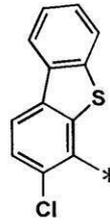
97



98

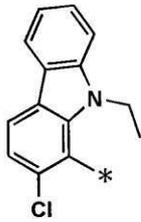


99

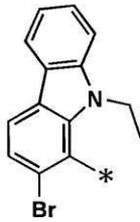


10

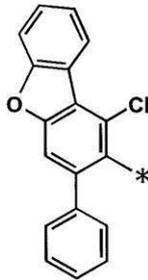
100



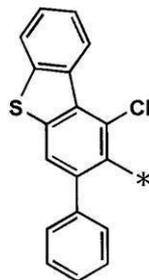
101



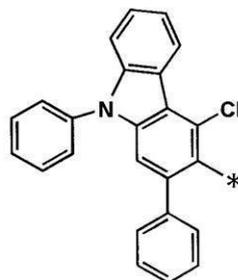
102



103

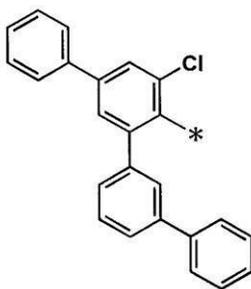


104

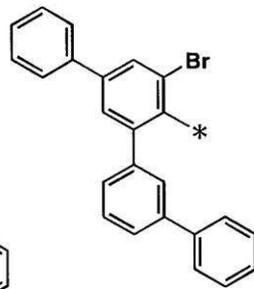


20

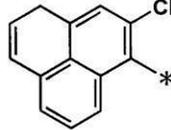
105



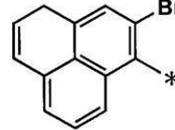
106



107

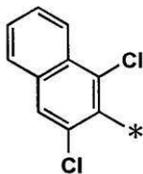


108

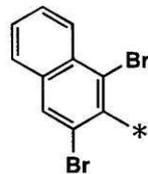


30

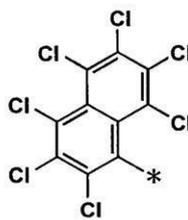
109



110



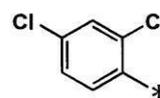
111



112

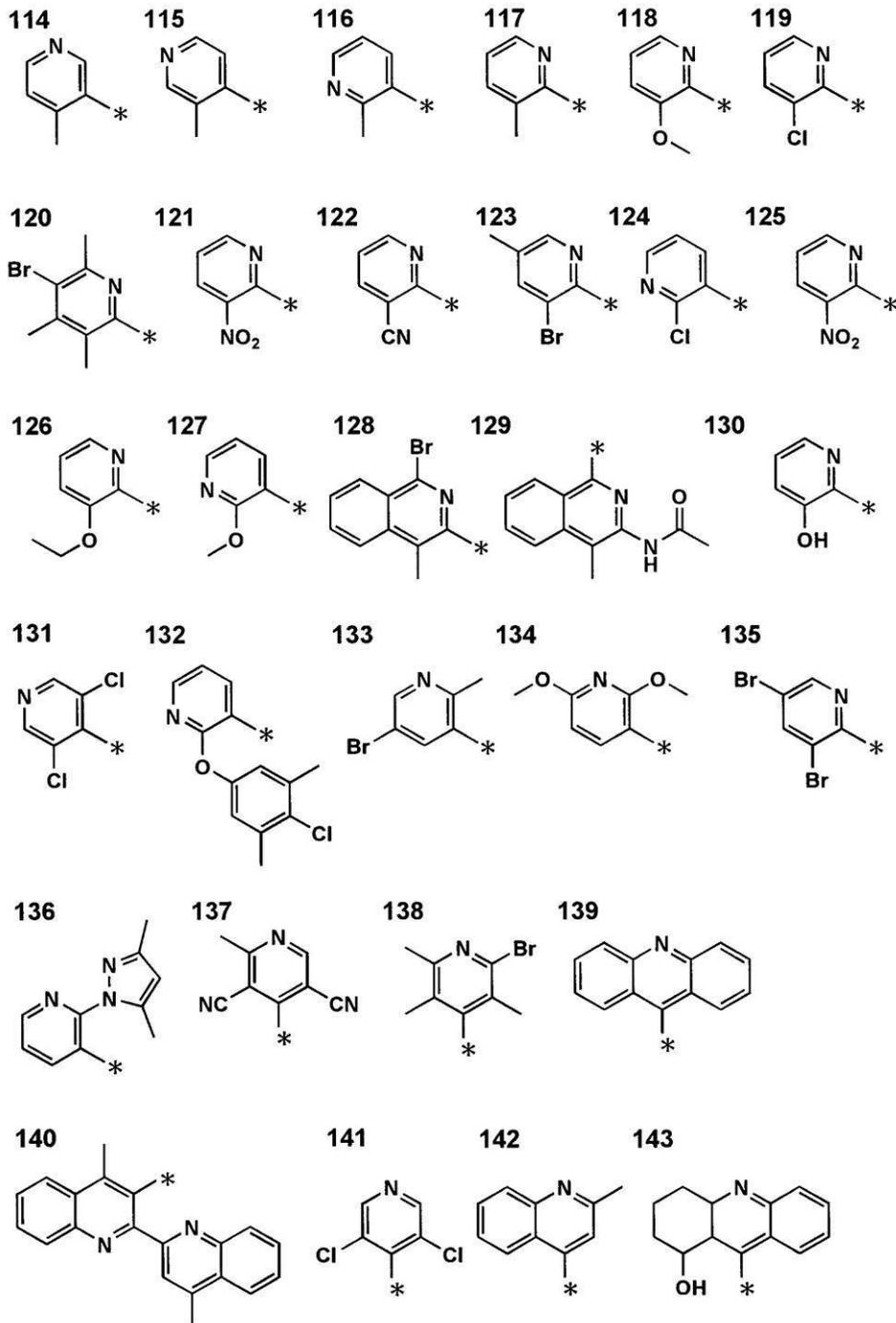


113



【 0 1 4 0 】

【化 4 7】



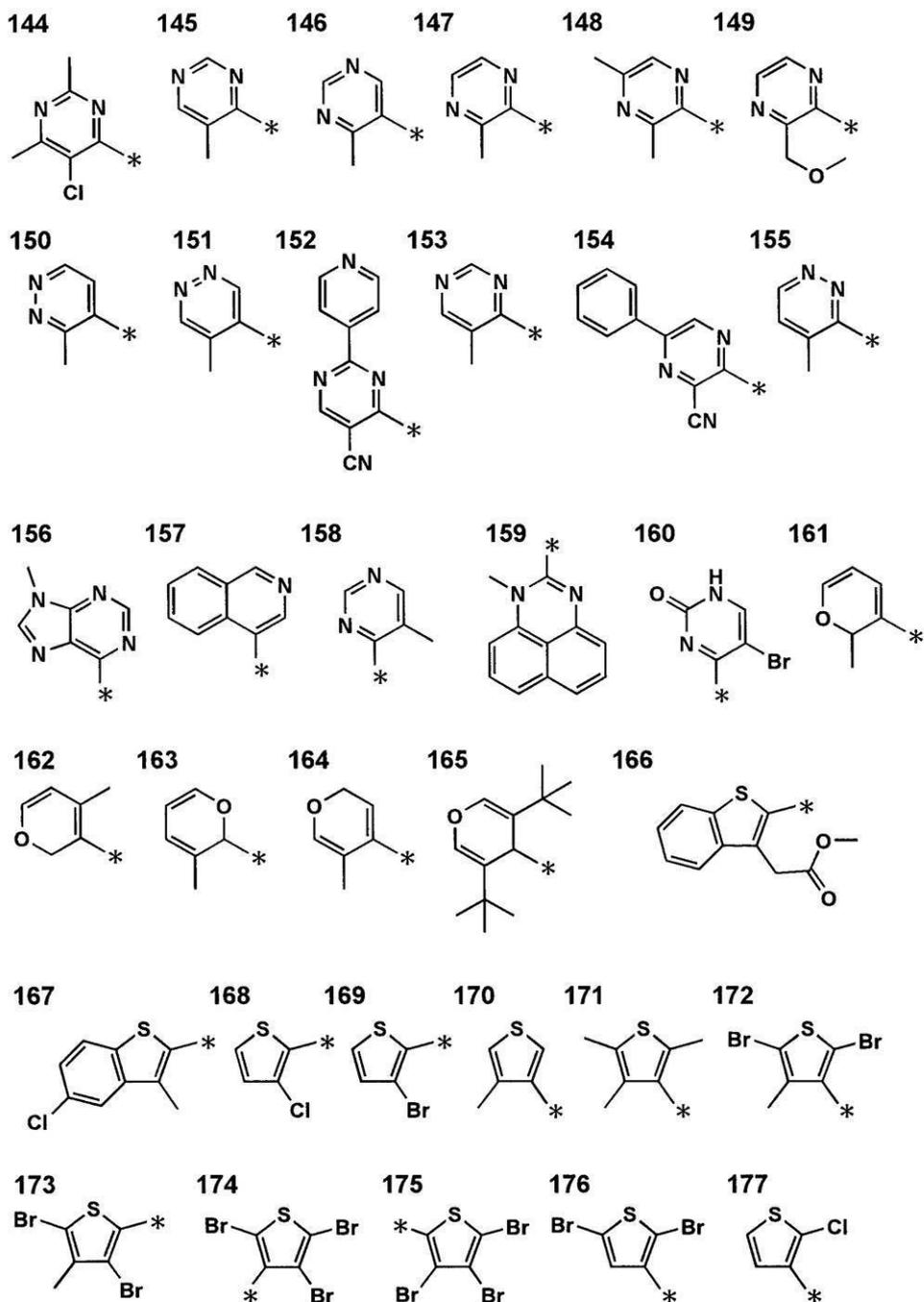
10

20

30

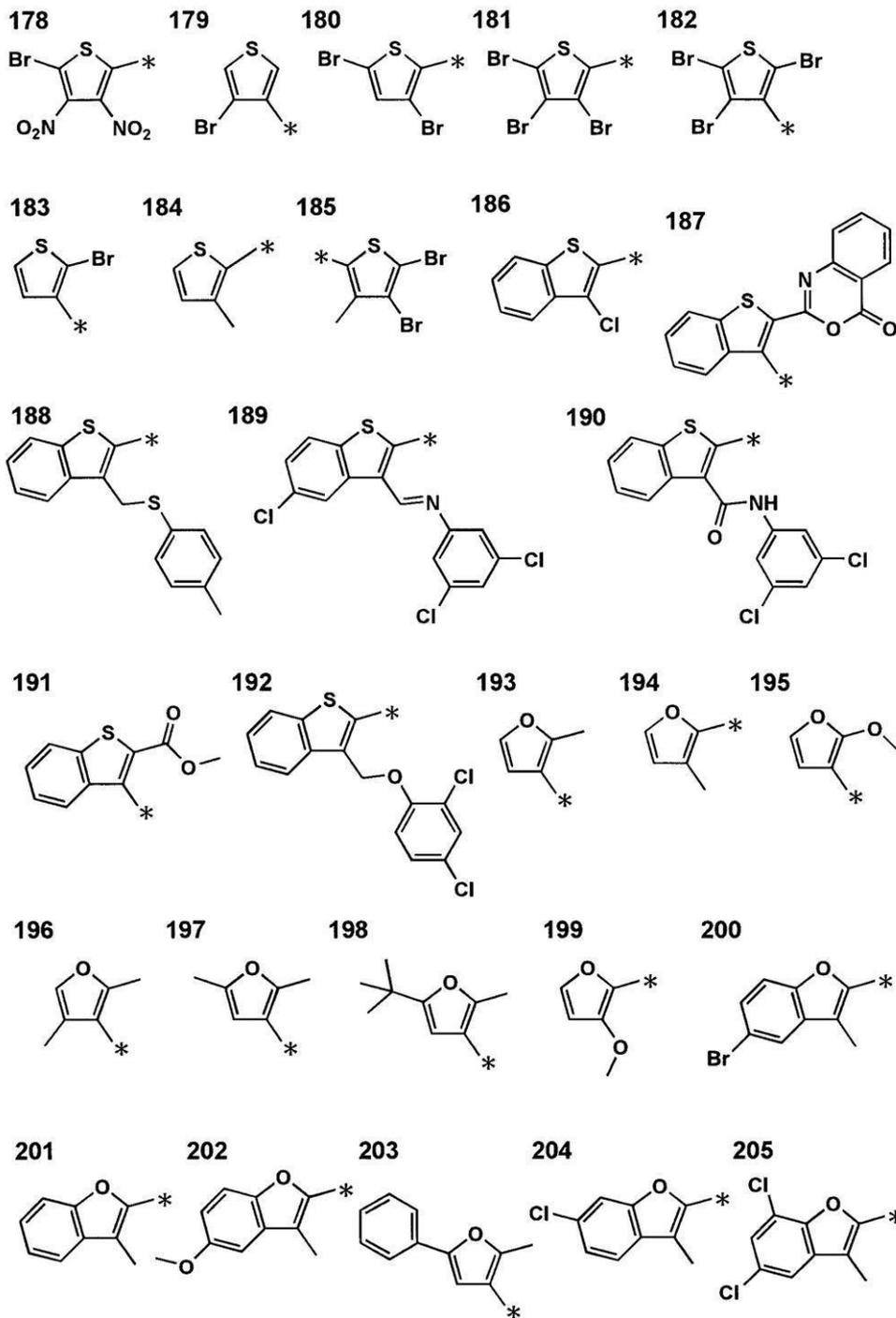
【 0 1 4 1 】

【化 4 8】



【 0 1 4 2】

【化 4 9】



10

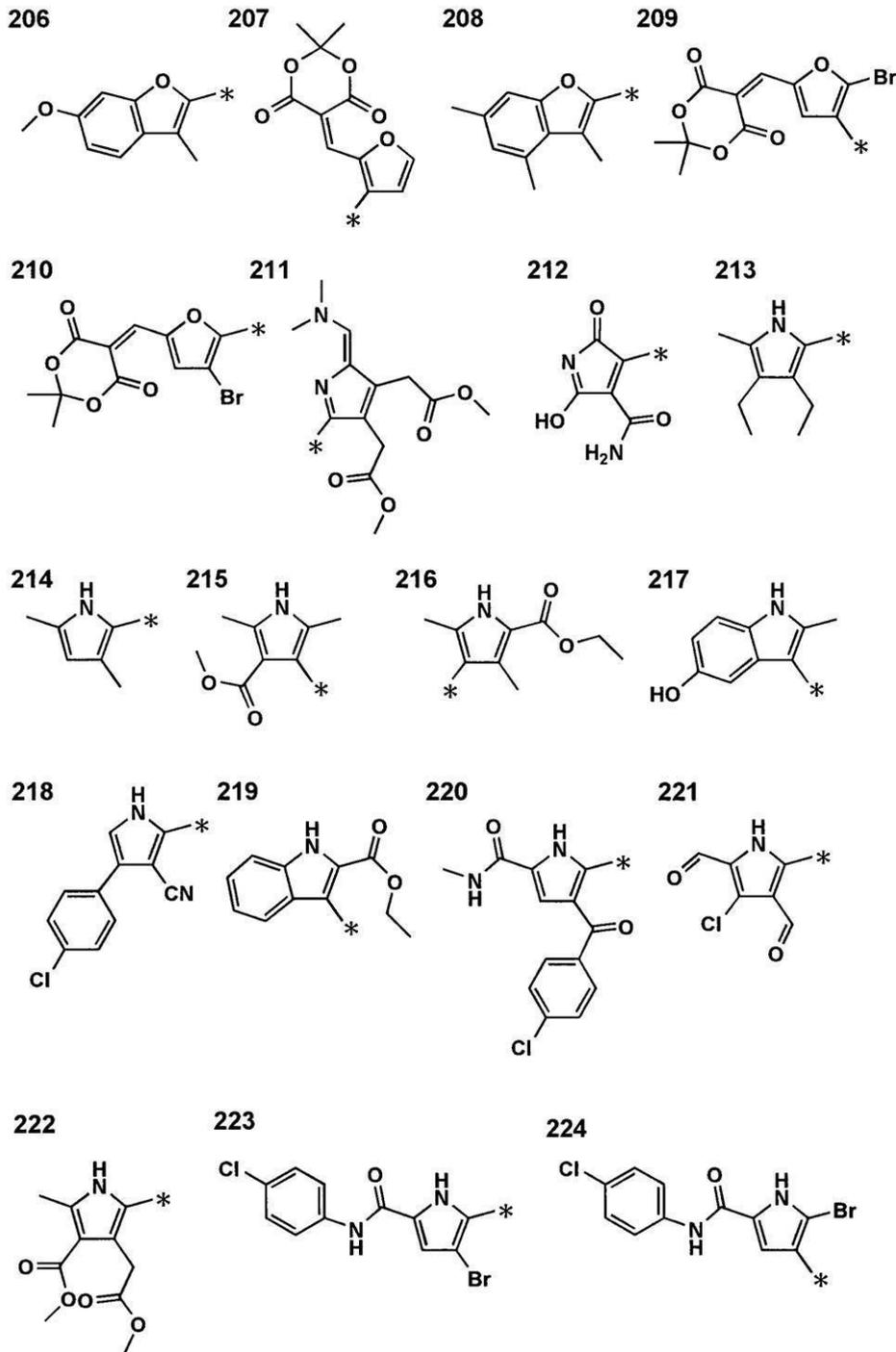
20

30

40

【 0 1 4 3 】

【化 5 0】



10

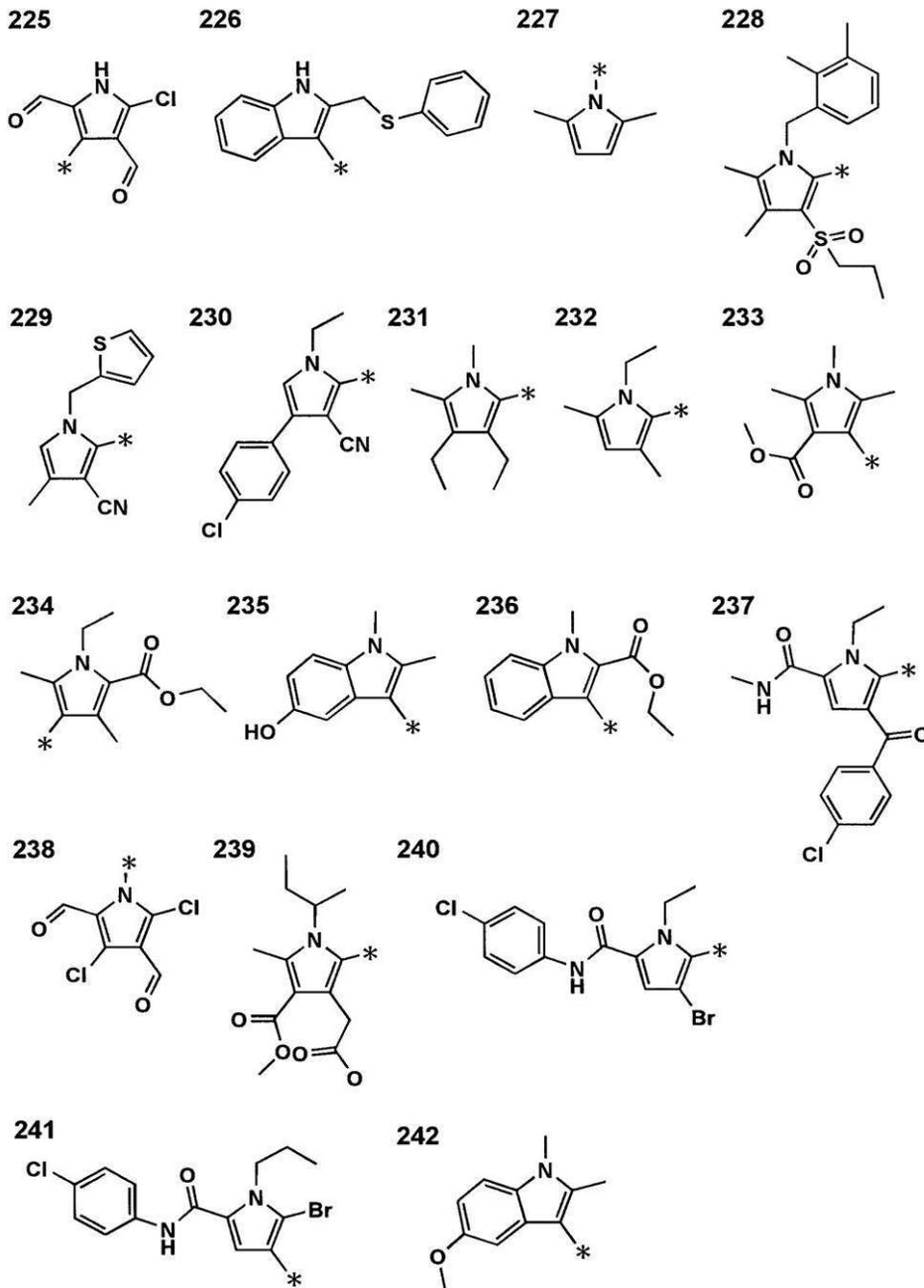
20

30

40

【 0 1 4 4 】

【化 5 1】



10

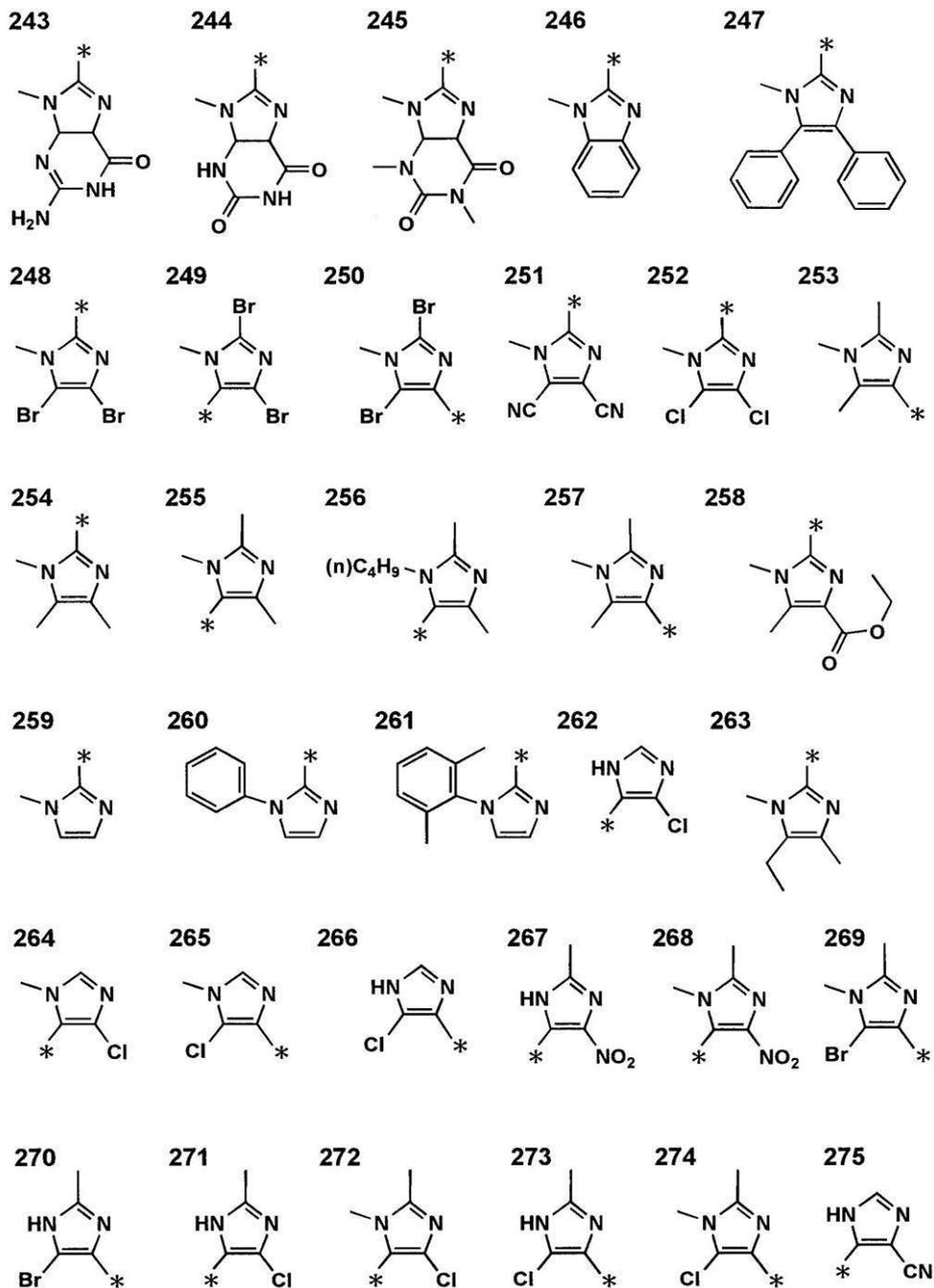
20

30

【 0 1 4 5 】

40

【化52】



10

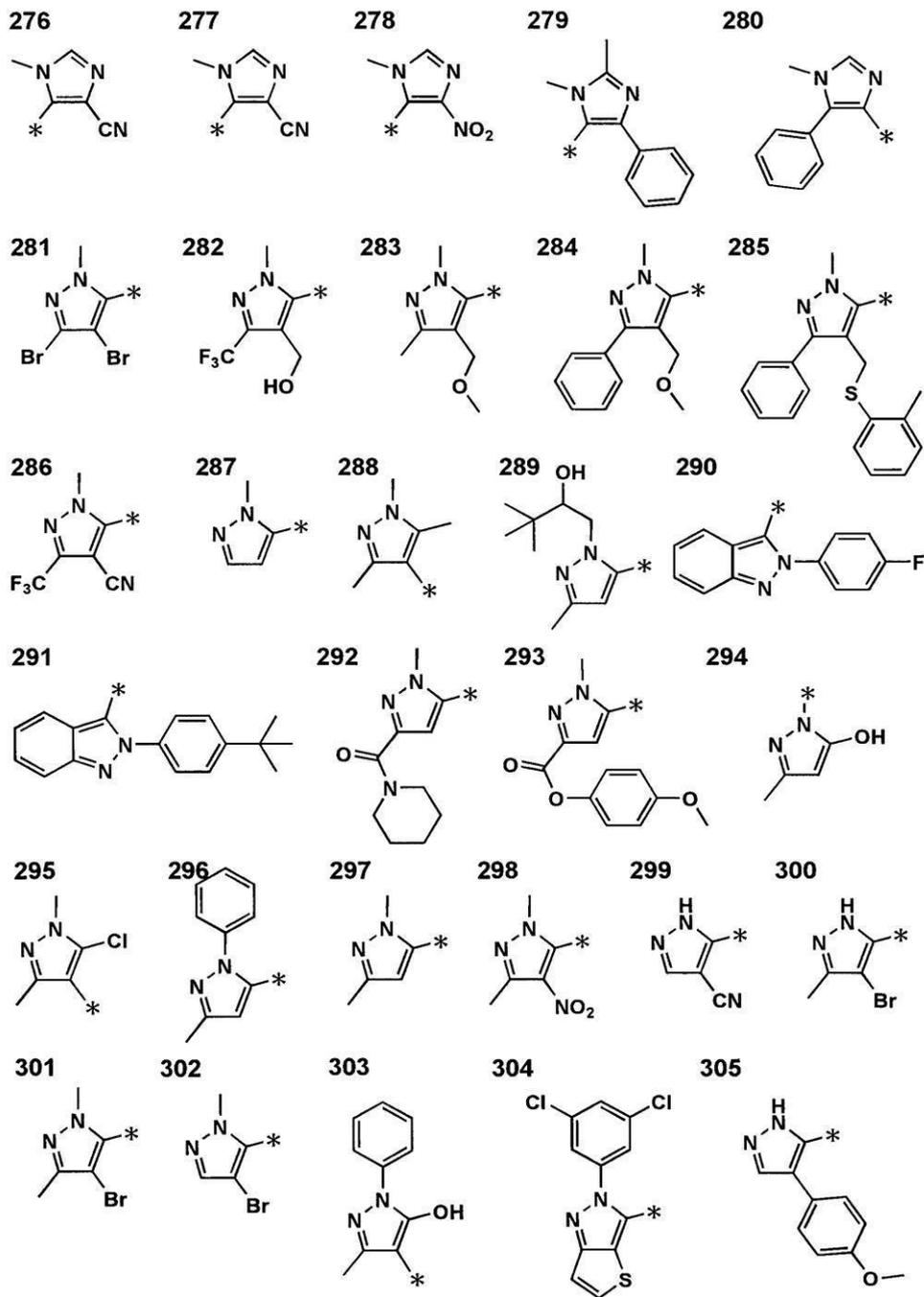
20

30

【0146】

40

【化 5 3】



10

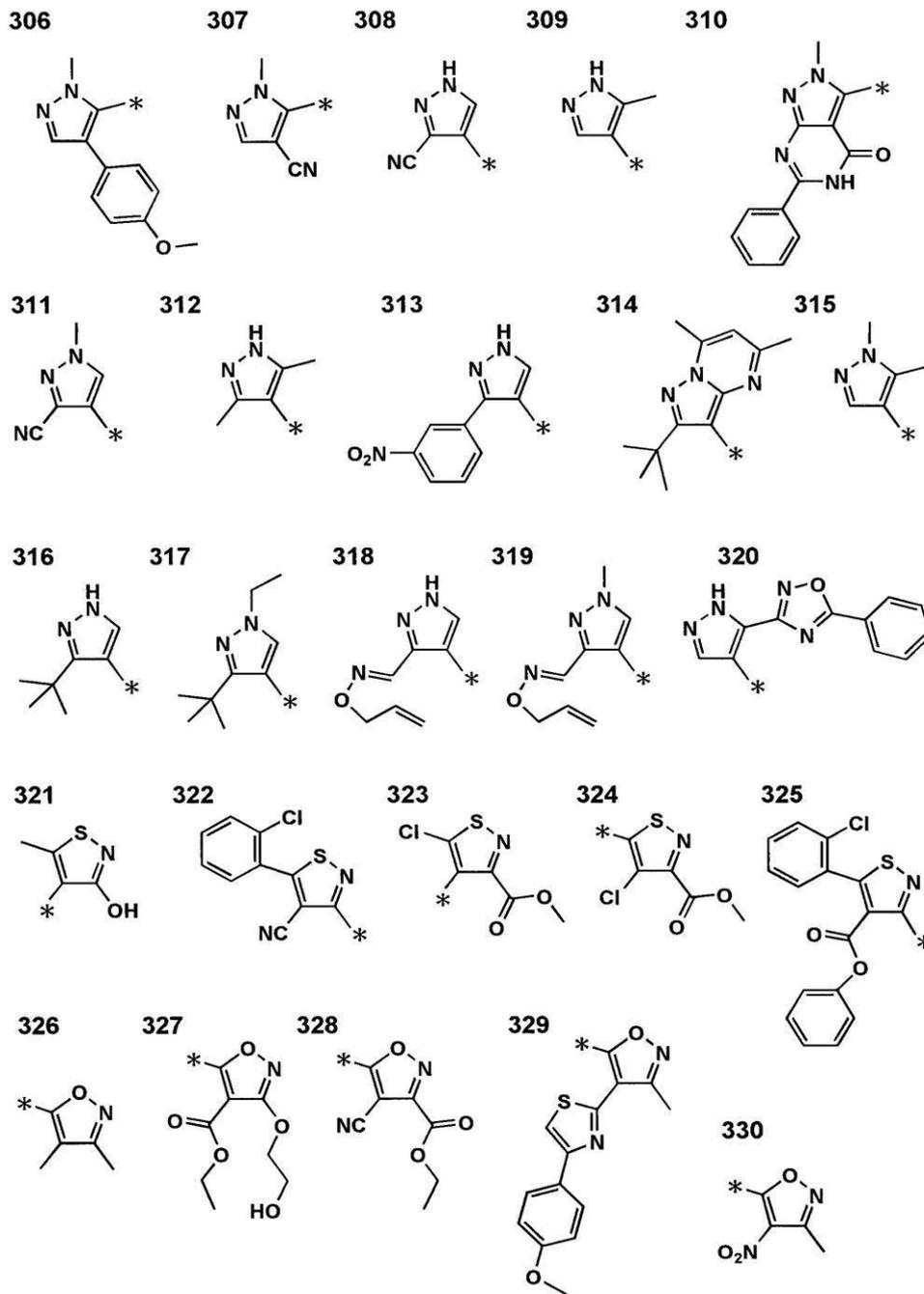
20

30

【 0 1 4 7 】

40

【化54】



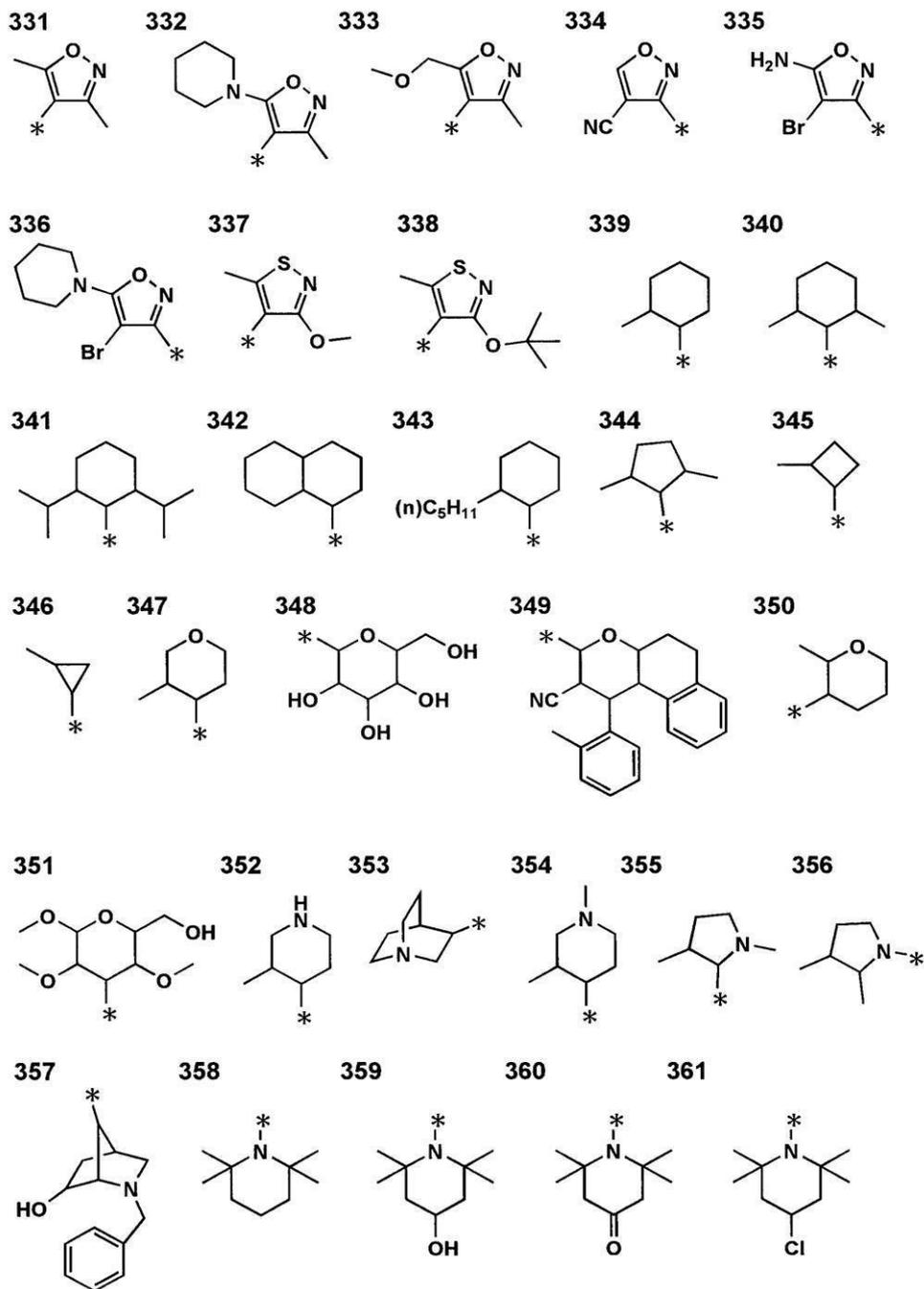
10

20

30

【0148】

【化 5 5】



10

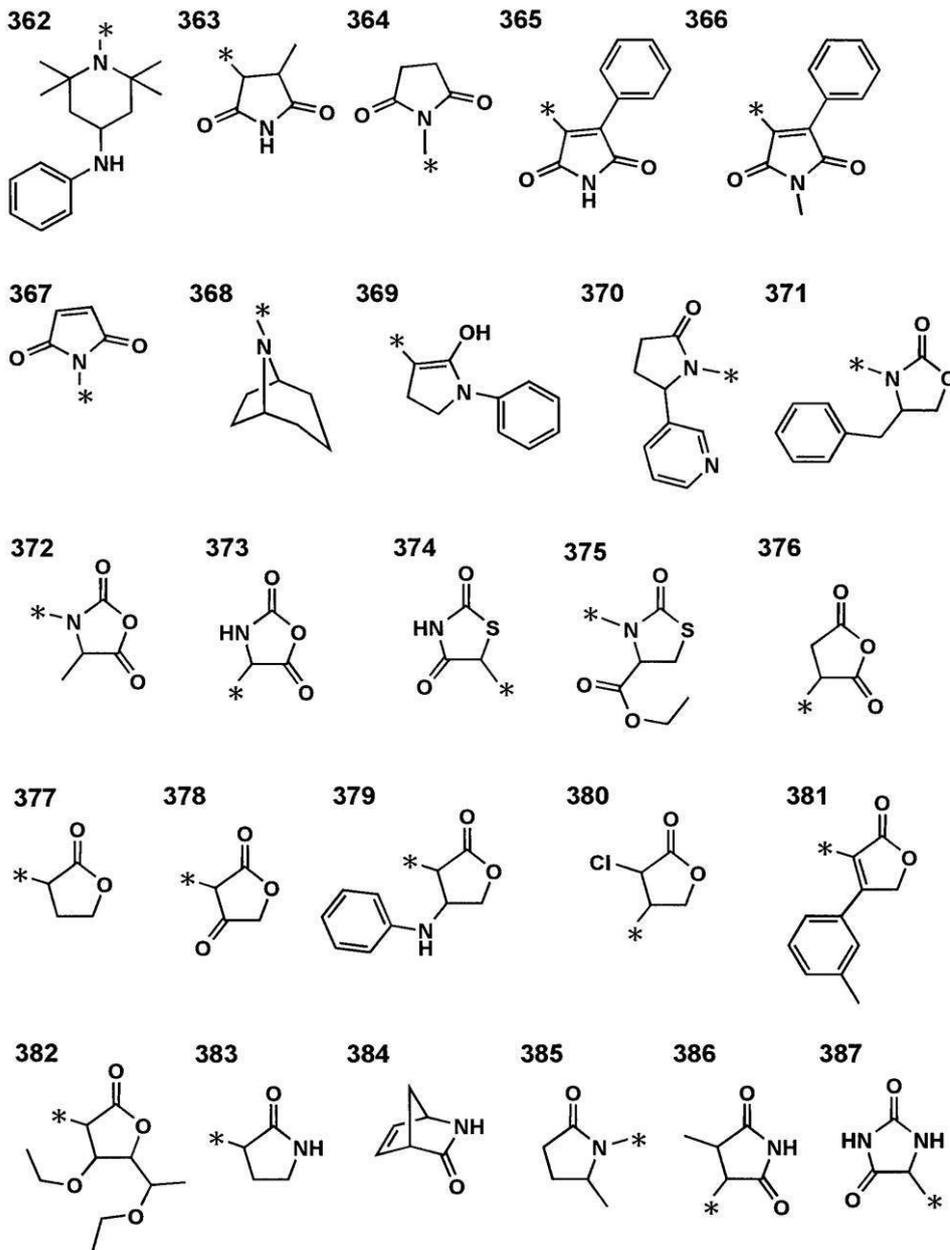
20

30

【 0 1 4 9 】

40

【化 5 6】



10

20

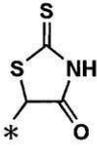
30

【 0 1 5 0 】

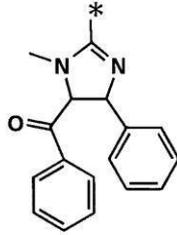
40

【化 5 7】

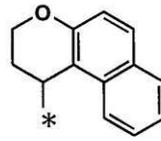
388



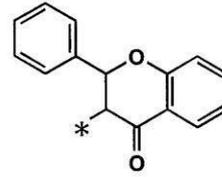
389



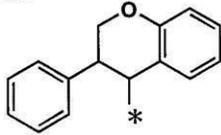
390



391



392



10

【 0 1 5 1】

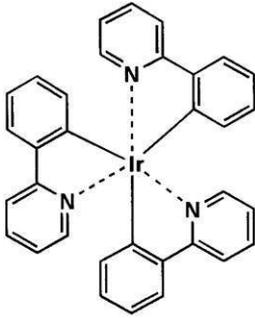
以下、本発明に係る前記一般式(2)で表される金属錯体の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

【 0 1 5 2】

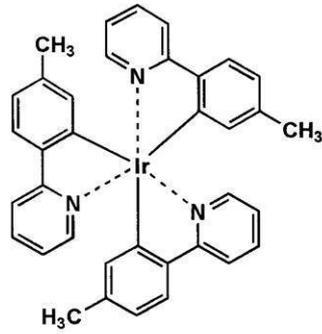
20

【化58】

Ir-1

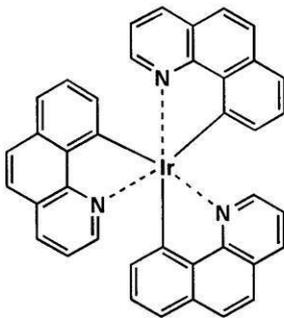


Ir-2

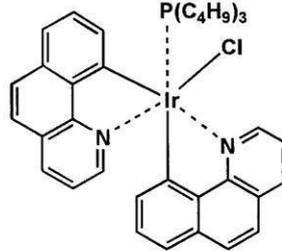


10

Ir-3

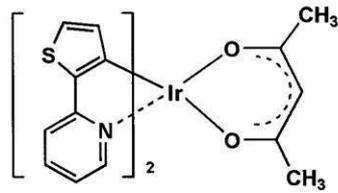


Ir-4

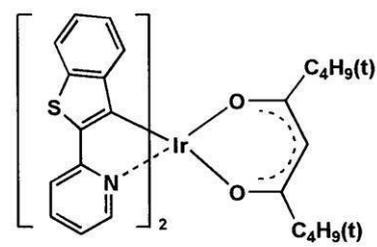


20

Ir-5



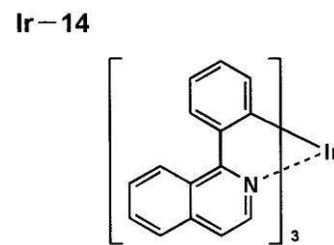
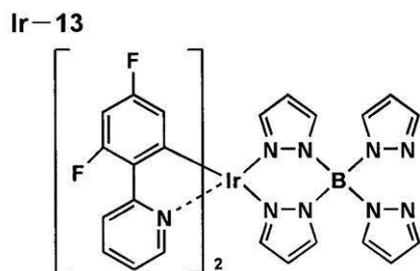
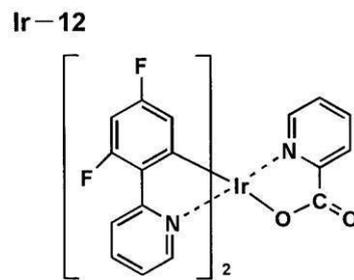
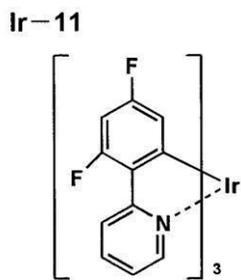
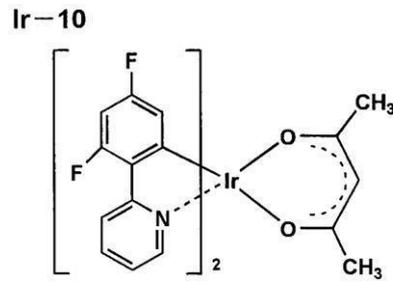
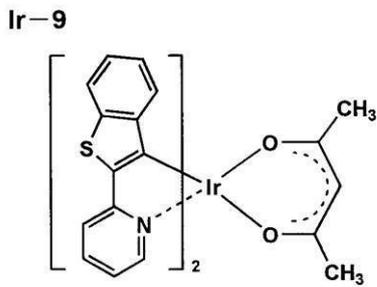
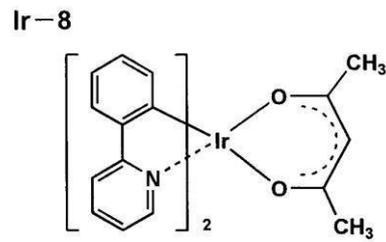
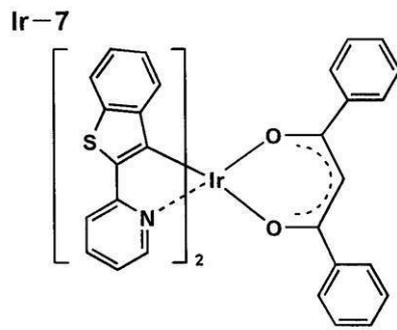
Ir-6



30

【0153】

【化59】



【0154】

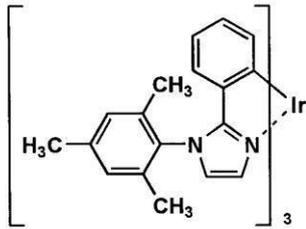
10

20

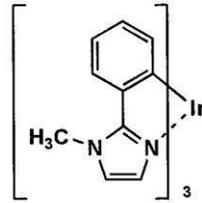
30

【化60】

Ir-15

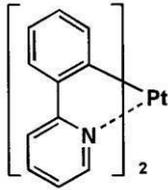


Ir-16

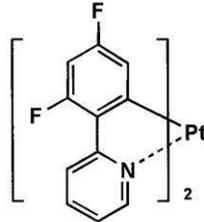


10

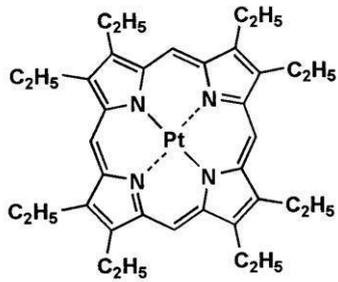
Pt-1



Pt-2

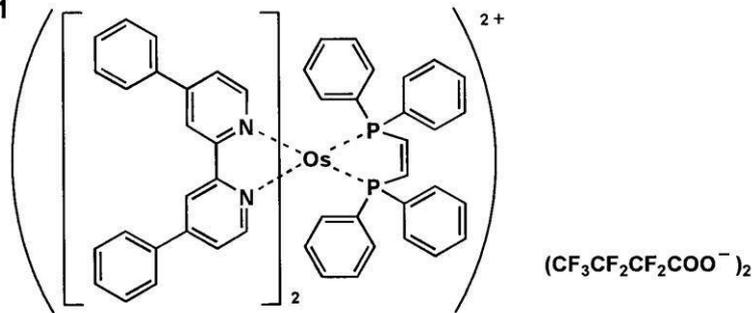


Pt-3



20

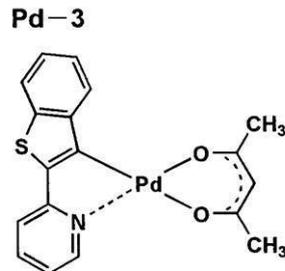
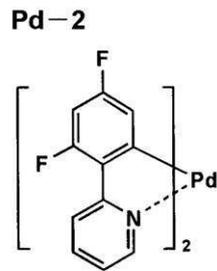
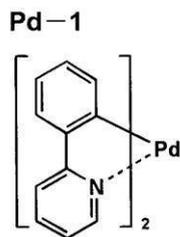
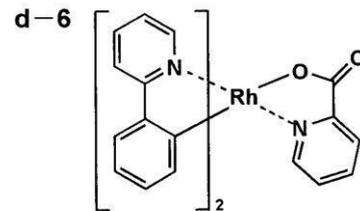
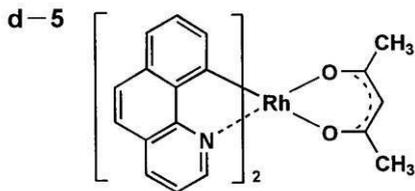
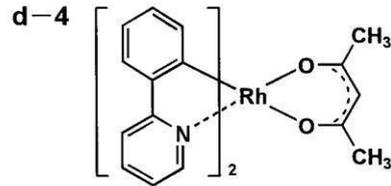
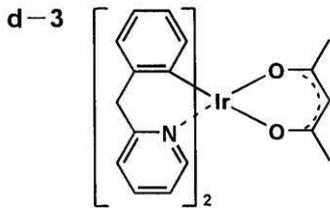
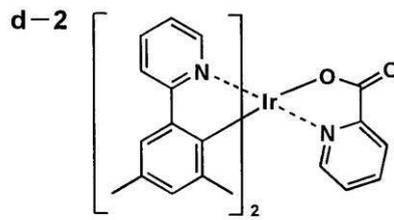
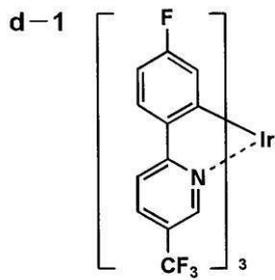
A-1



30

【0155】

【化 6 1】



【 0 1 5 6 】

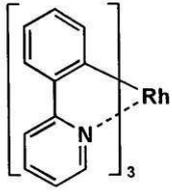
10

20

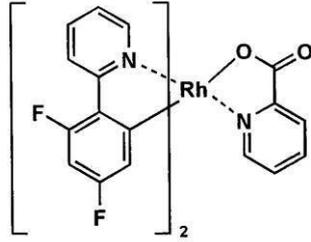
30

【化 6 2】

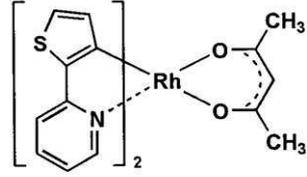
Rh-1



Rh-2



Rh-3

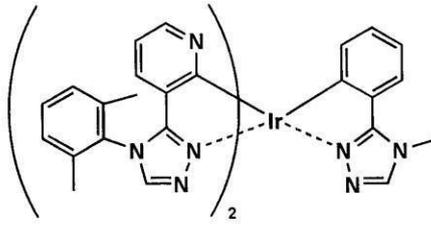


10

【 0 1 5 7 】

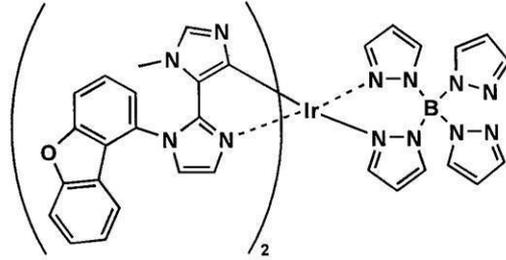
【化 6 3】

Ir-17

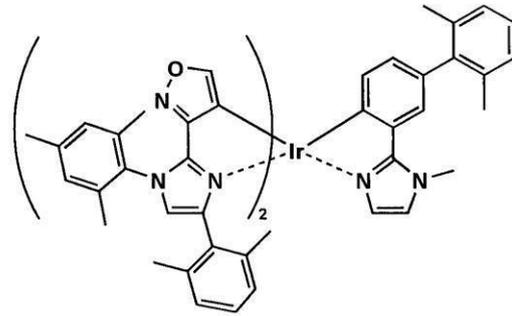


10

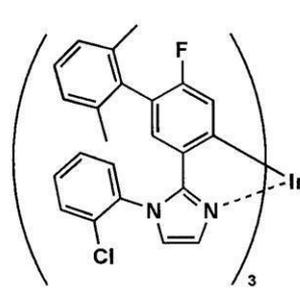
Ir-18



Ir-19

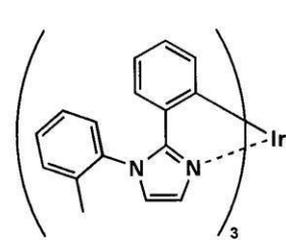


Ir-20

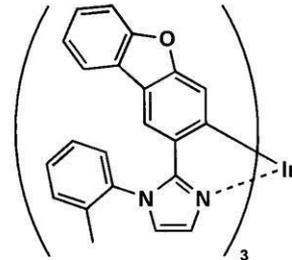


20

Ir-21



Ir-22

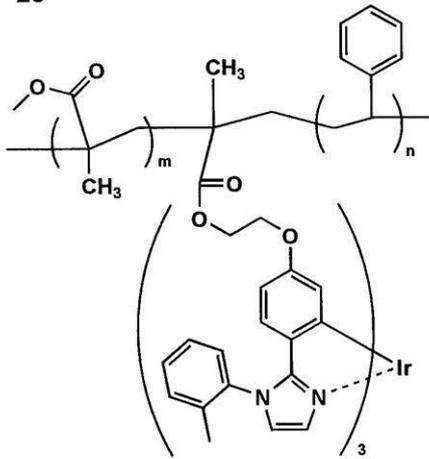


30

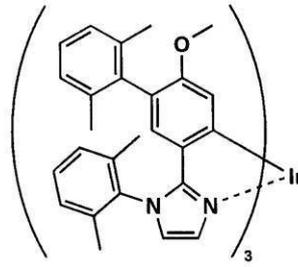
【 0 1 5 8 】

【化 6 4】

Ir-23

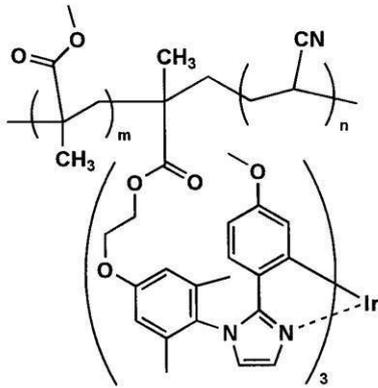


Ir-24

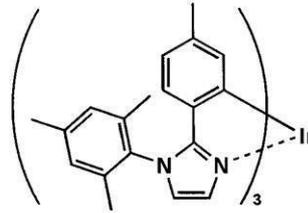


10

Ir-25

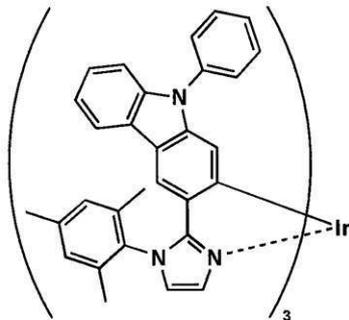


Ir-26



20

Ir-27

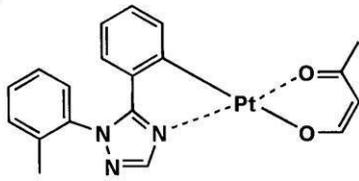


30

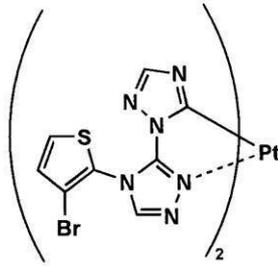
【 0 1 5 9 】

【化 6 5】

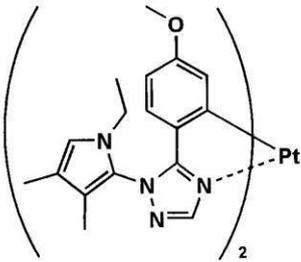
(1)



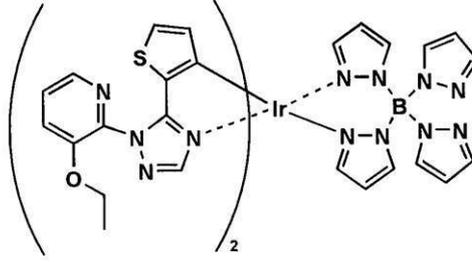
(2)



(3)

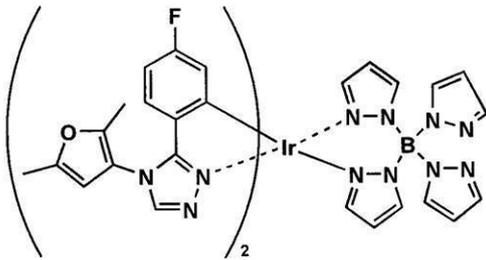


(4)

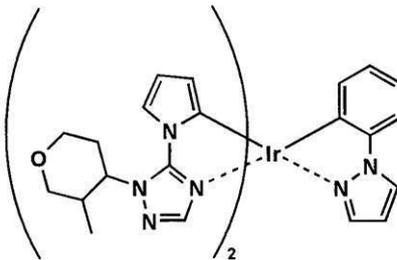


10

(5)

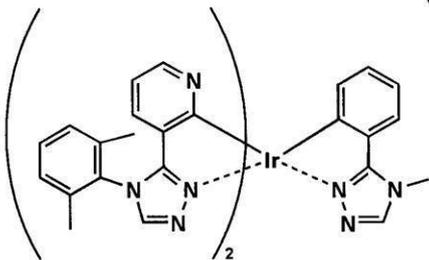


(6)

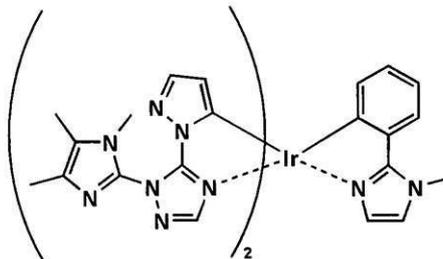


20

(7)



(8)

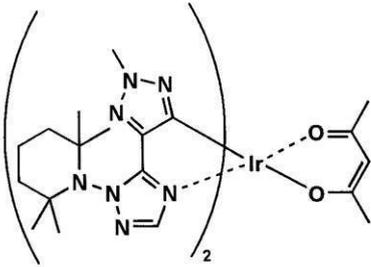


30

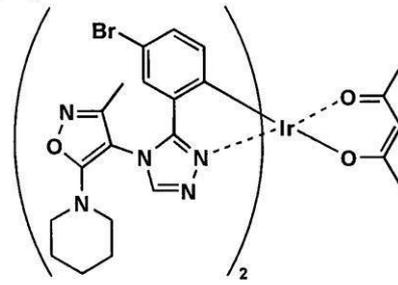
【 0 1 6 0 】

【化 6 6】

(9)

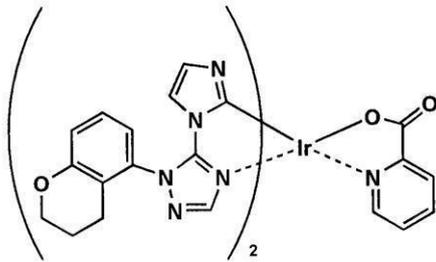


(10)

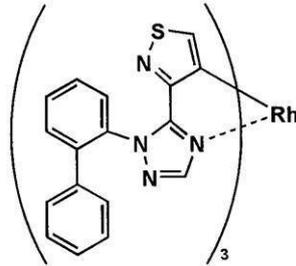


10

(11)

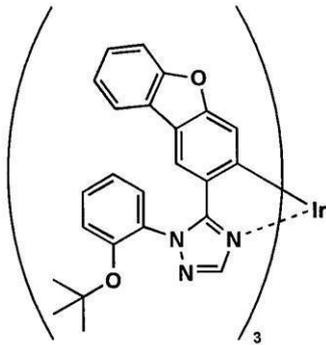


(12)

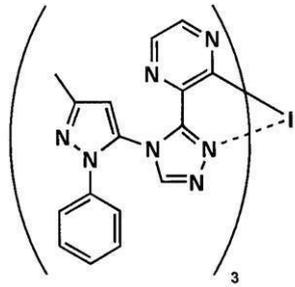


20

(13)

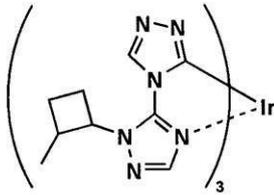


(14)

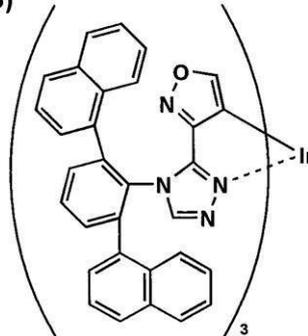


30

(15)



(16)

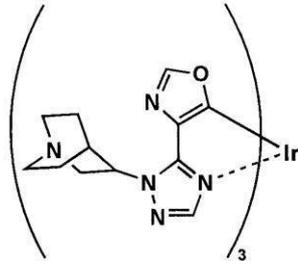


40

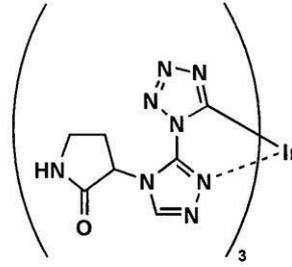
【 0 1 6 1】

【化 6 7】

(17)

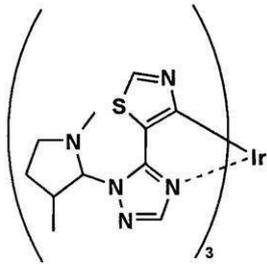


(18)

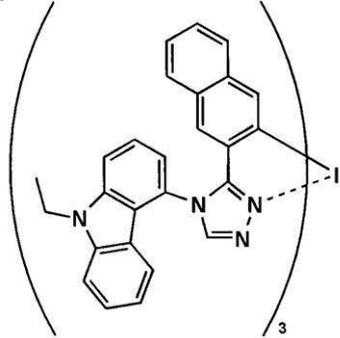


10

(19)

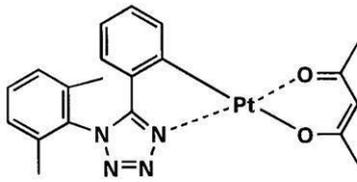


(20)

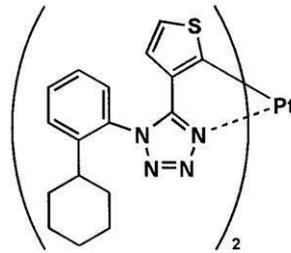


20

(21)

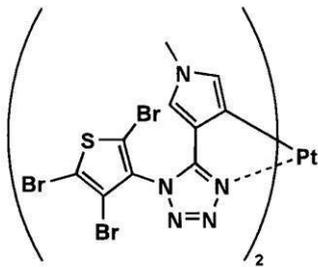


(22)

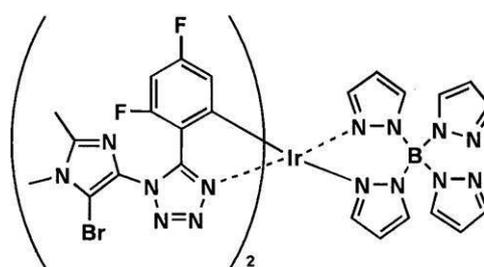


30

(23)



(24)

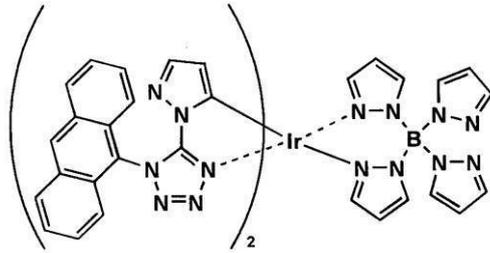


40

【 0 1 6 2】

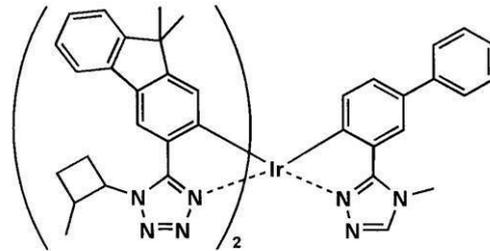
【化68】

(25)

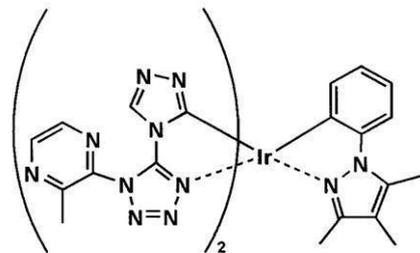


10

(26)

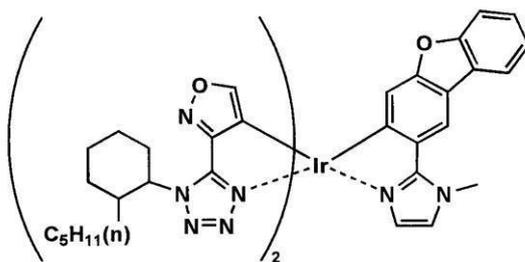


(27)

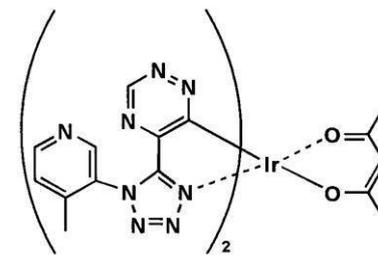


20

(28)



(29)



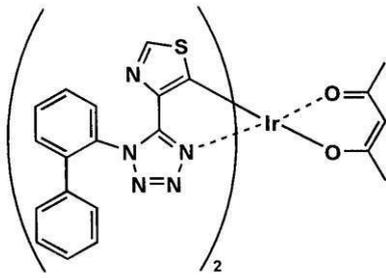
30

【0163】

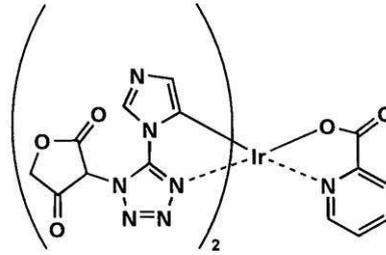
40

【化 6 9】

(30)

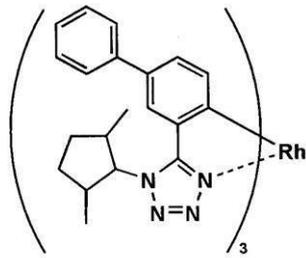


(31)

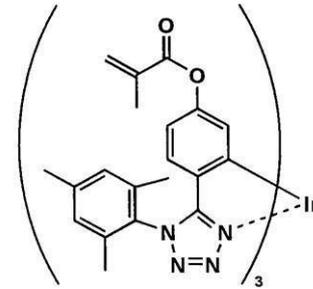


10

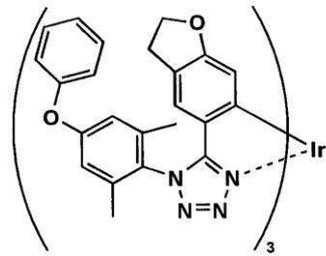
(32)



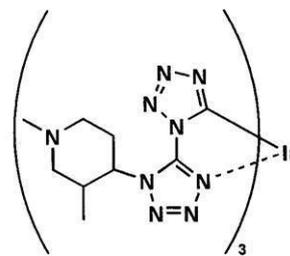
(33)



(34)

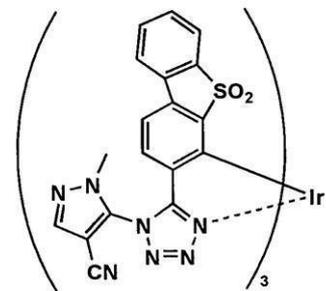


(35)

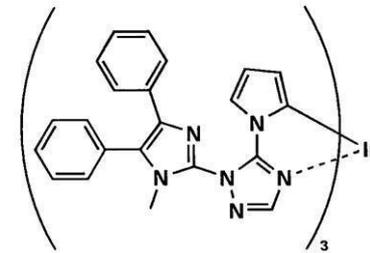


20

(36)



(37)



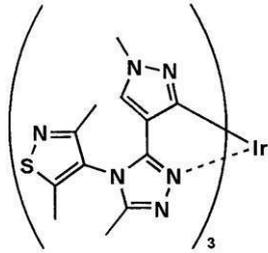
30

【 0 1 6 4】

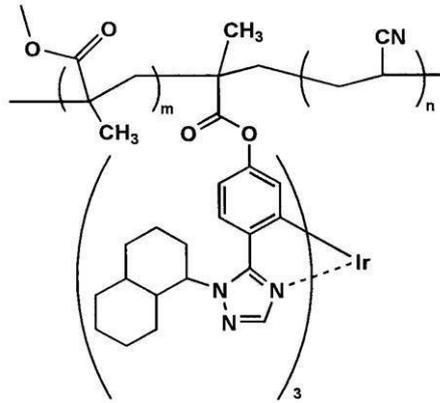
40

【化70】

(38)

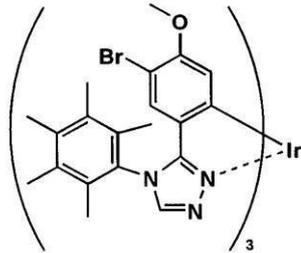


(39)

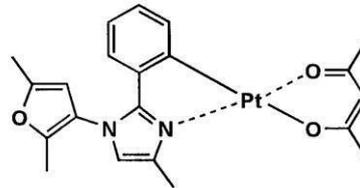


10

(40)

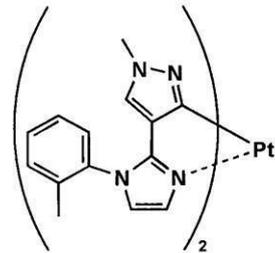


(41)

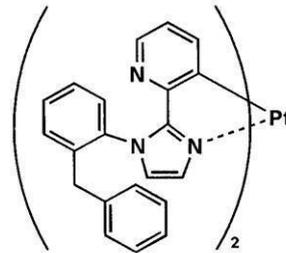


20

(42)

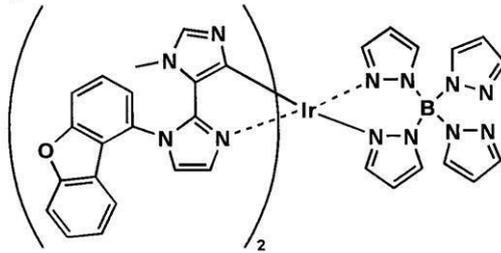


(43)



30

(44)

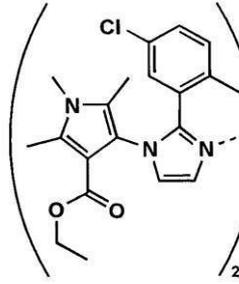


【0165】

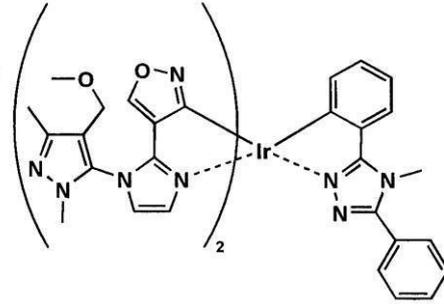
40

【化 7 1】

(45)

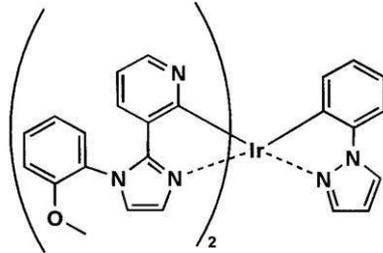


(46)

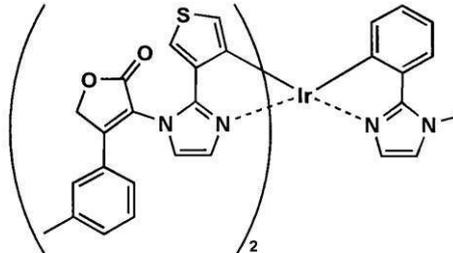


10

(47)

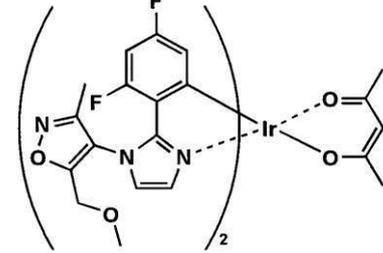


(48)

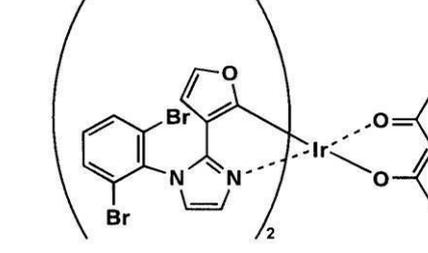


20

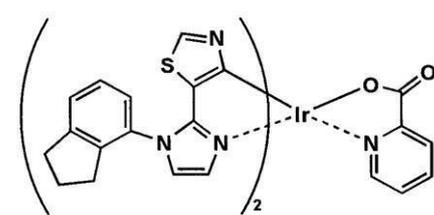
(49)



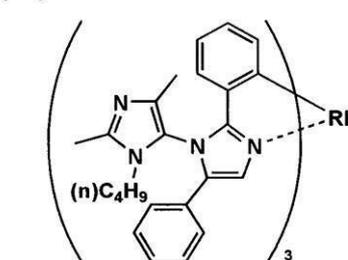
(50)



(51)



(52)



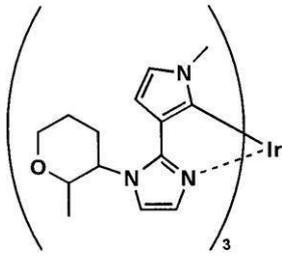
30

【 0 1 6 6 】

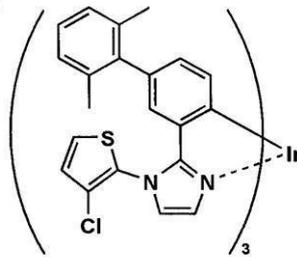
40

【化72】

(53)

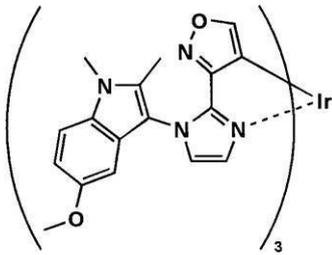


(54)

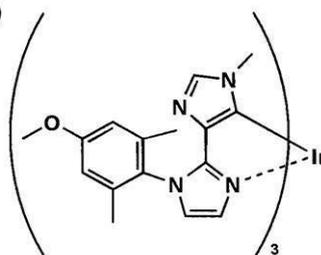


10

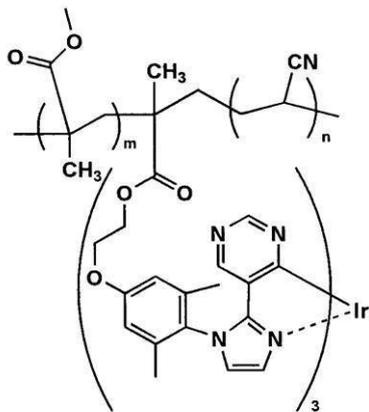
(55)



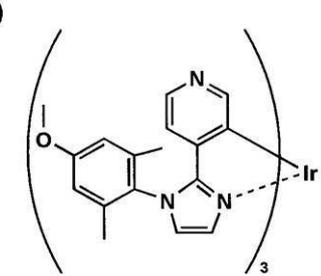
(56)



(57)



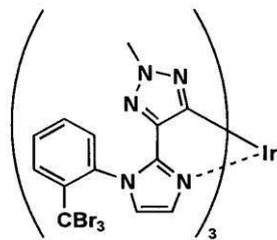
(58)



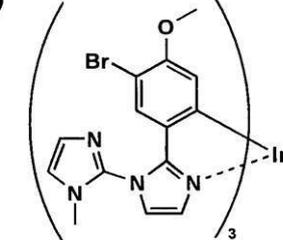
20

30

(59)



(60)

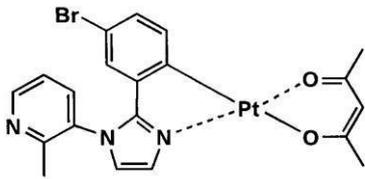


【0167】

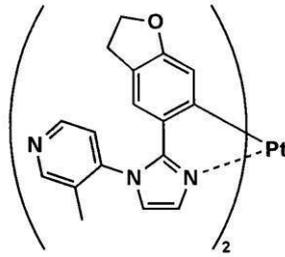
40

【化73】

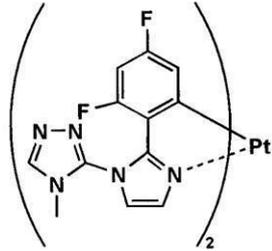
(61)



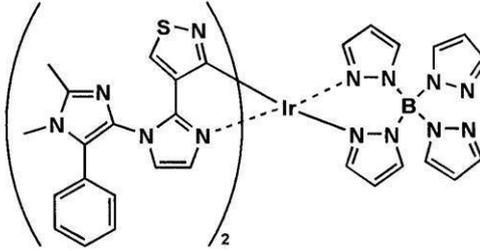
(62)



(63)

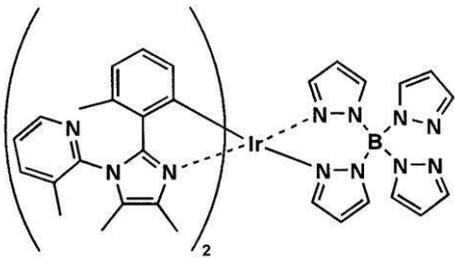


(64)

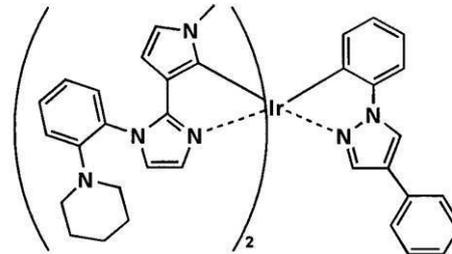


10

(65)

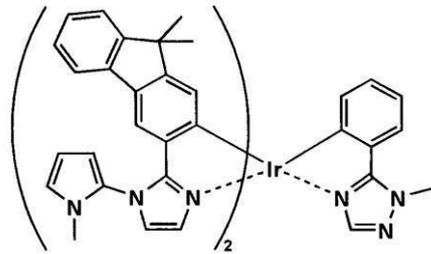


(66)

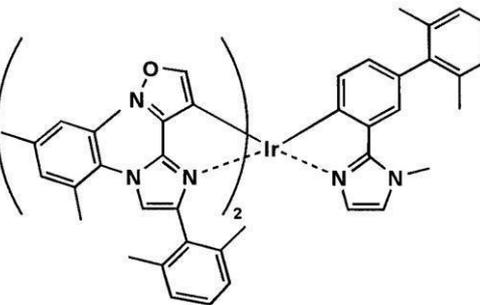


20

(67)



(68)



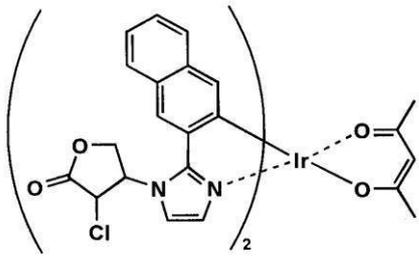
30

【0168】

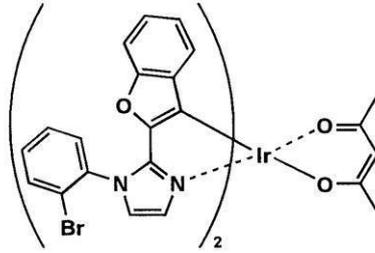
40

【化74】

(69)

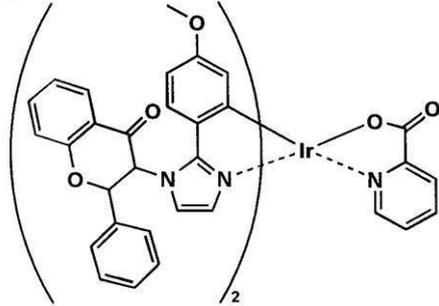


(70)

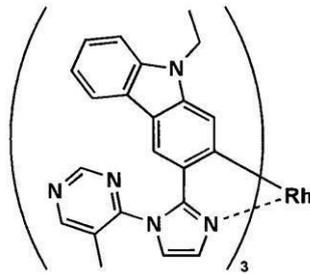


10

(71)

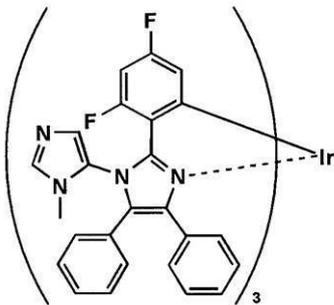


(72)

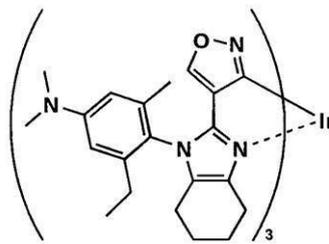


20

(73)

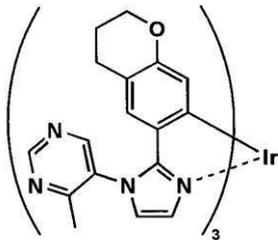


(74)

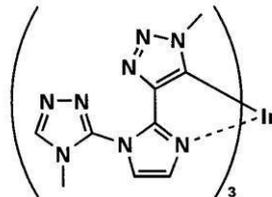


30

(75)



(76)

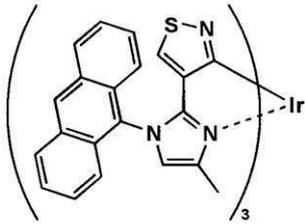


【0169】

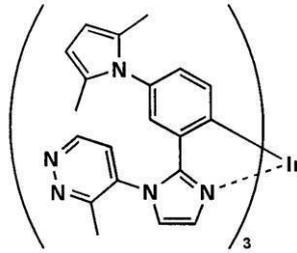
40

【化75】

(77)

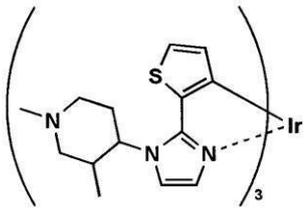


(78)

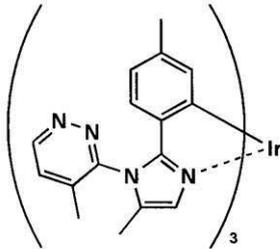


10

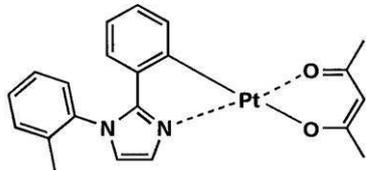
(79)



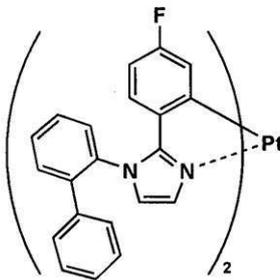
(80)



(81)

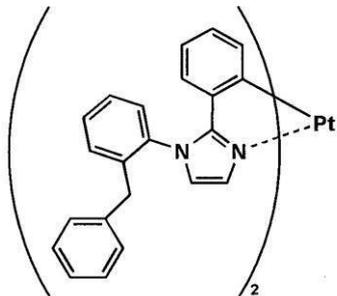


(82)



20

(83)



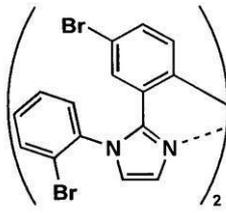
30

【0170】

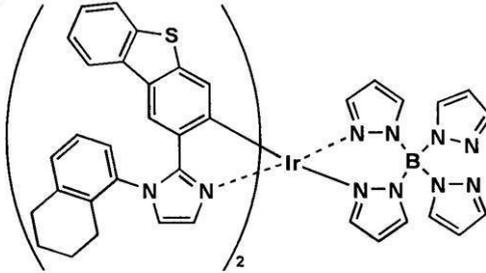
40

【化76】

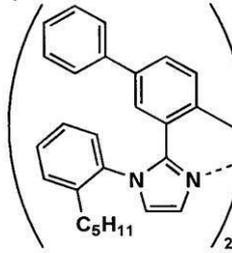
(84)



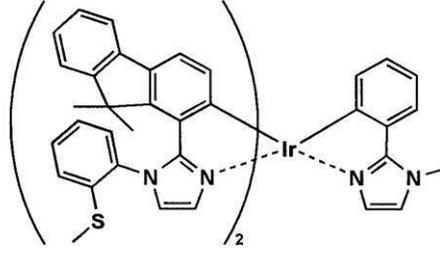
(85)



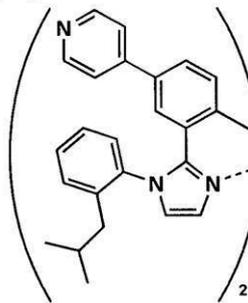
(86)



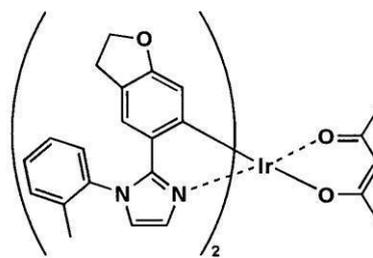
(87)



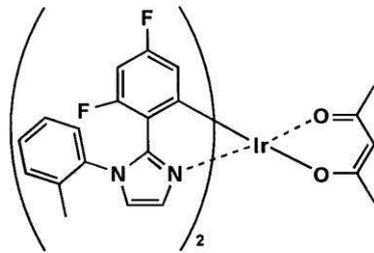
(88)



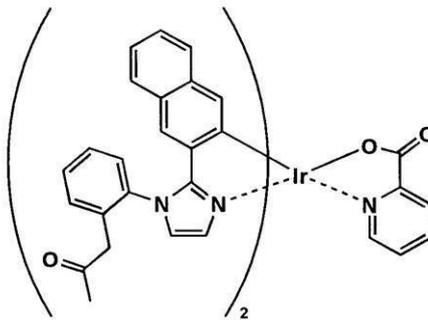
(89)



(90)



(91)



【0171】

10

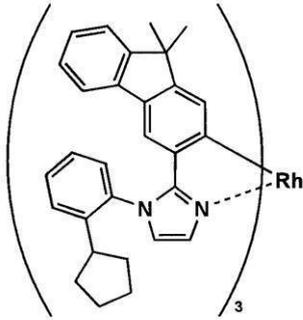
20

30

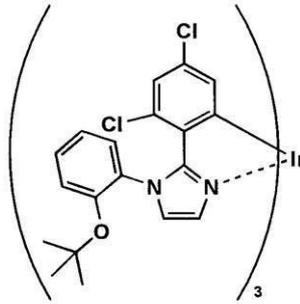
40

【化 7 7】

(92)

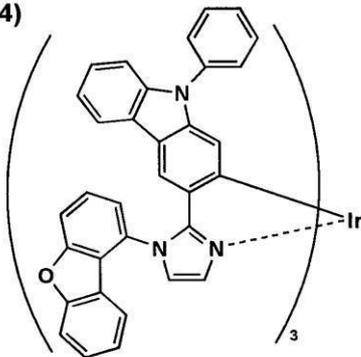


(93)

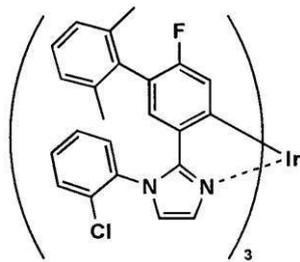


10

(94)

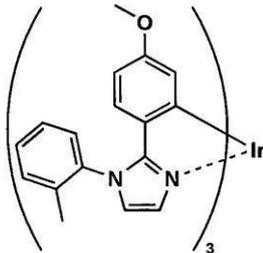


(95)

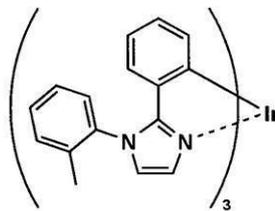


20

(96)

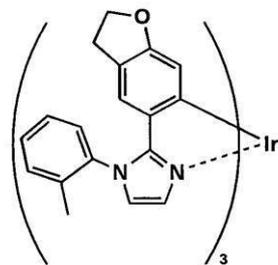


(97)

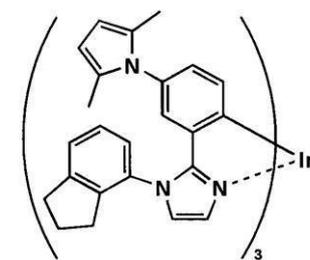


30

(98)



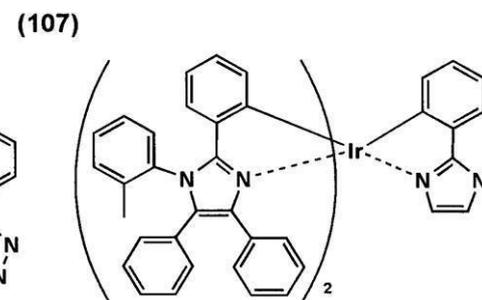
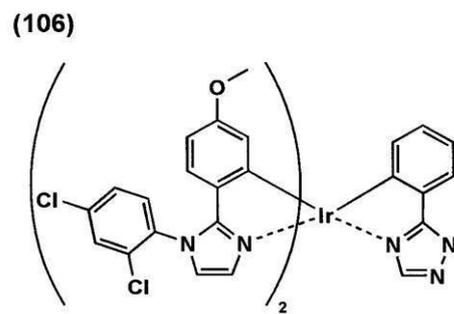
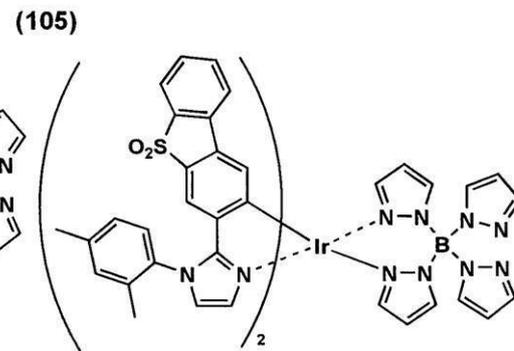
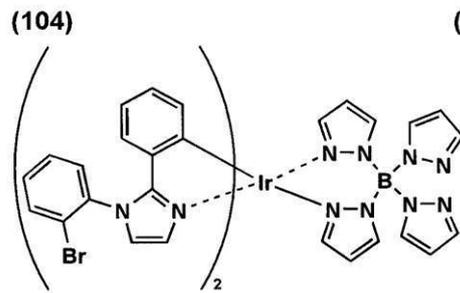
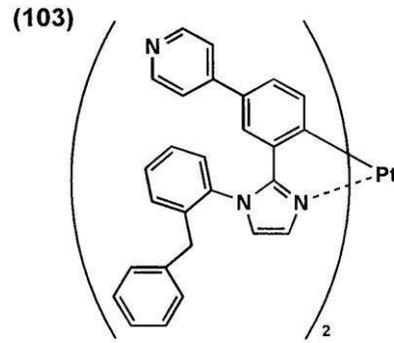
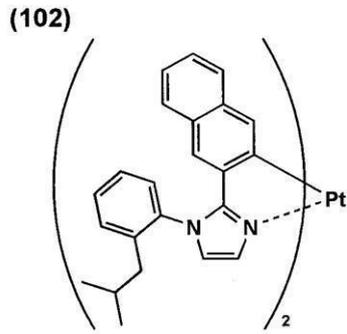
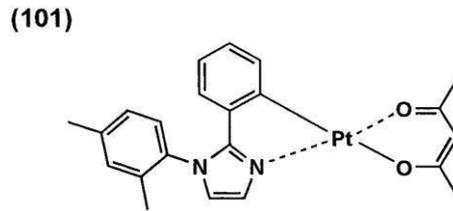
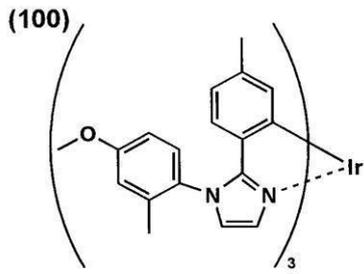
(99)



【 0 1 7 2】

40

【化 7 8】



【 0 1 7 3 】

10

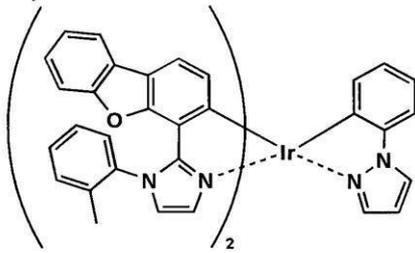
20

30

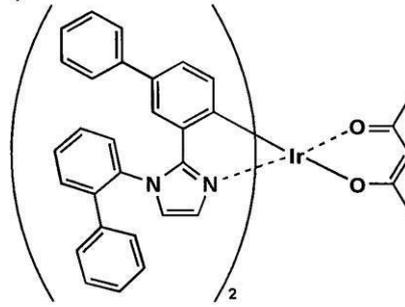
40

【化79】

(108)

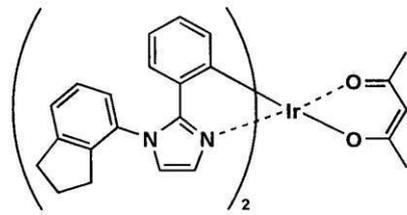


(109)

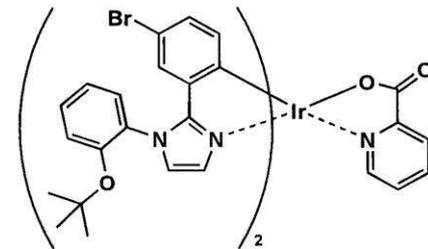


10

(110)

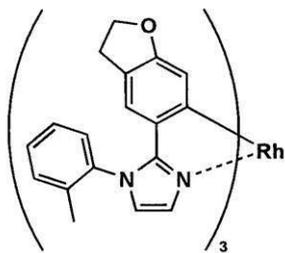


(111)

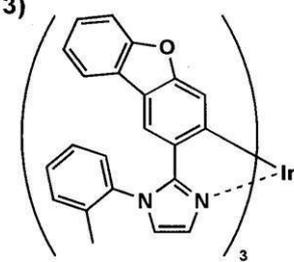


20

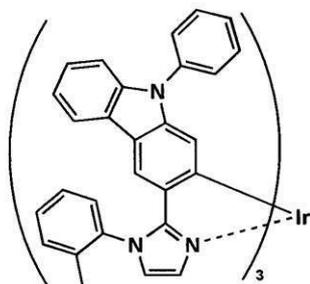
(112)



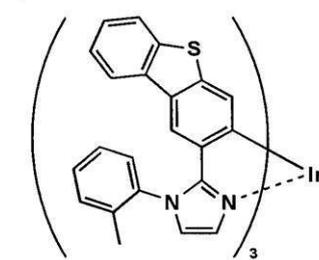
(113)



(114)



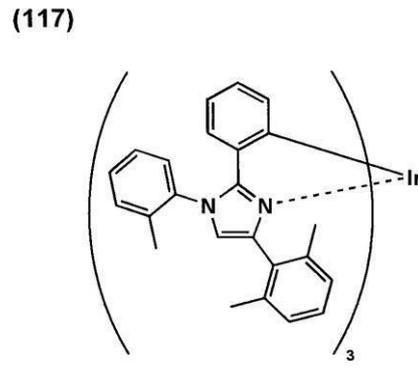
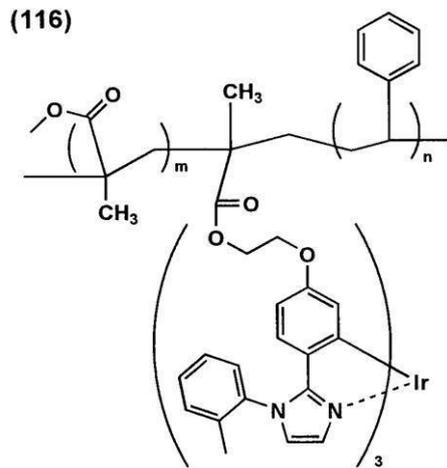
(115)



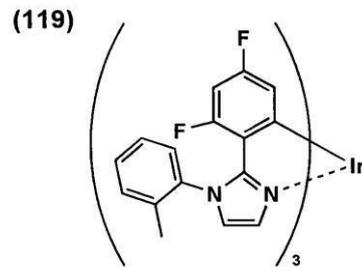
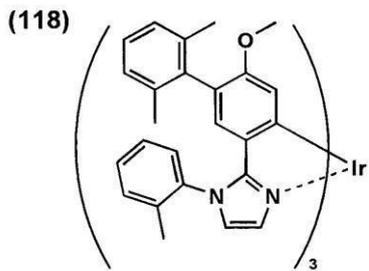
30

【0174】

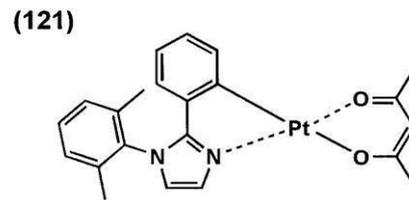
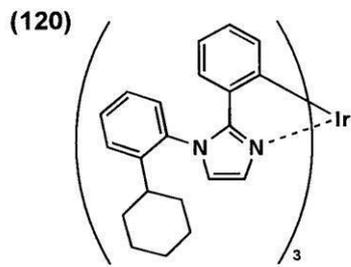
【化 8 0】



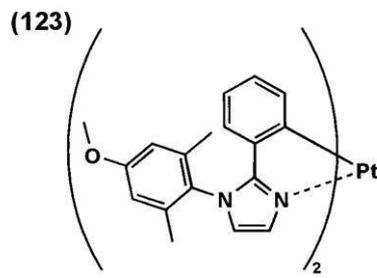
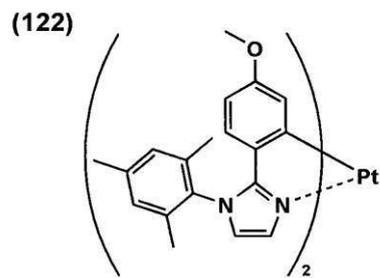
10



20



30

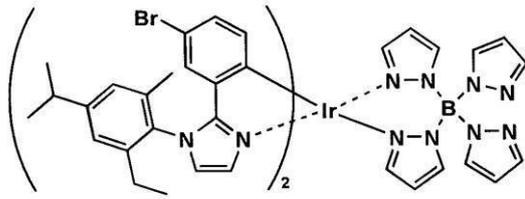


【 0 1 7 5】

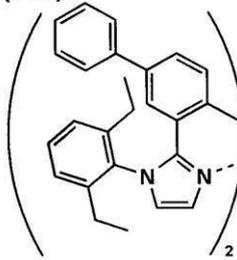
40

【化 8 1】

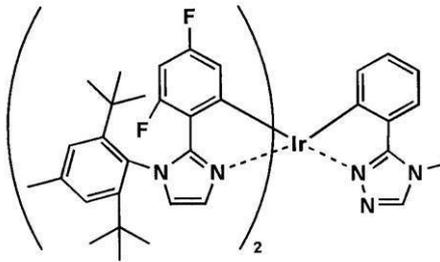
(124)



(125)

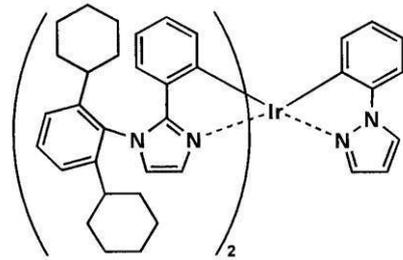


(126)

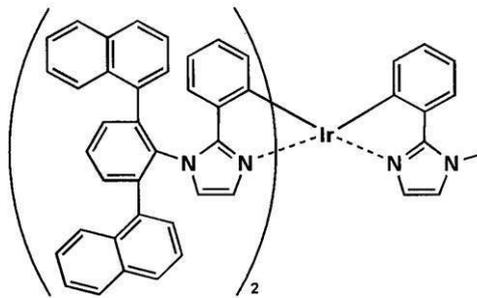


10

(127)

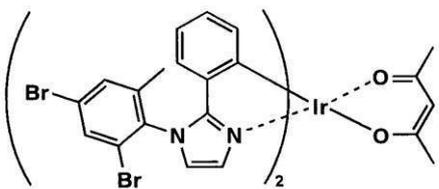


(128)

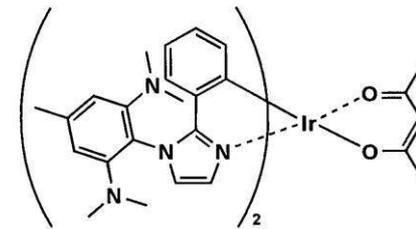


20

(129)



(130)



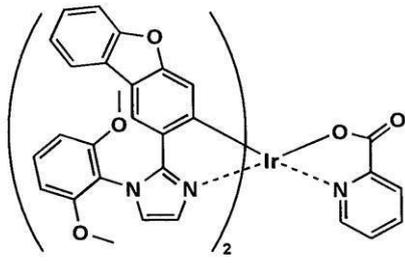
30

【 0 1 7 6 】

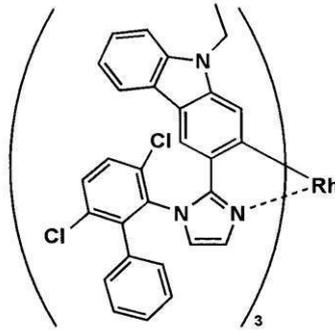
40

【化 8 2】

(131)

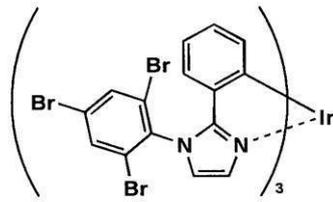


(132)

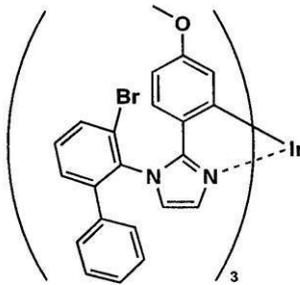


10

(133)

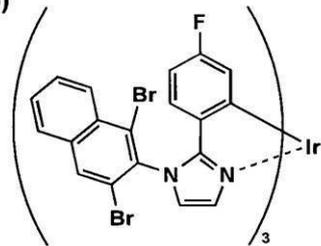


(134)

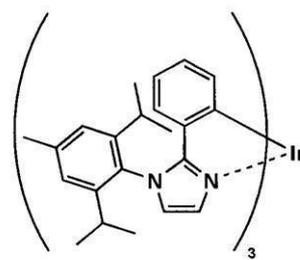


20

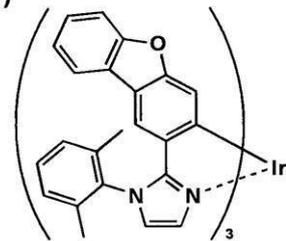
(135)



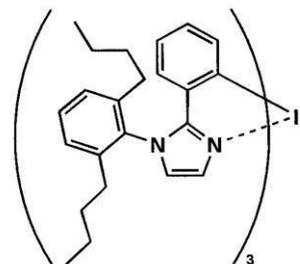
(136)



(137)



(138)

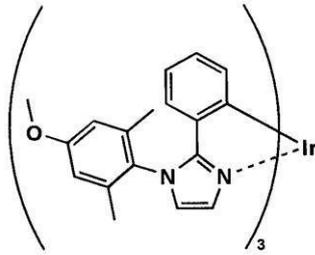


30

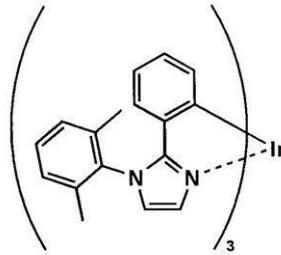
【 0 1 7 7 】

【化 8 3】

(139)

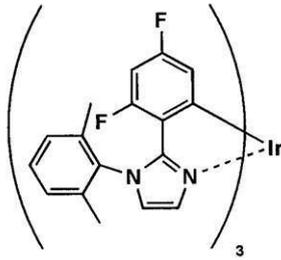


(140)



10

(141)

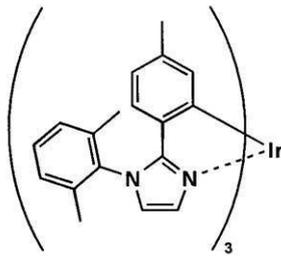


(142)

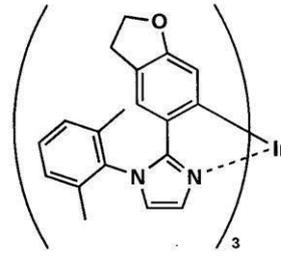


20

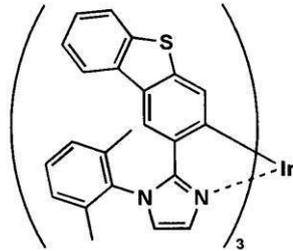
(143)



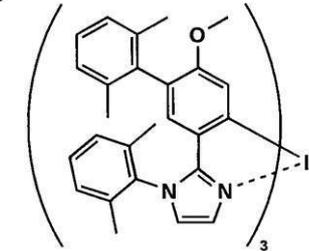
(144)



(145)



(146)



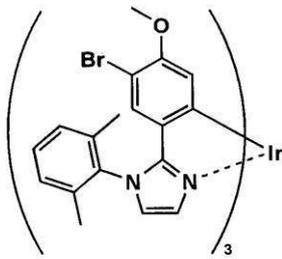
30

【 0 1 7 8 】

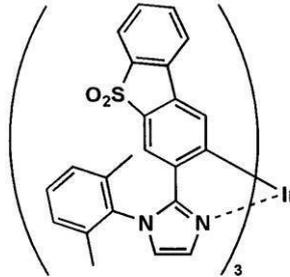
40

【化 8 4】

(147)

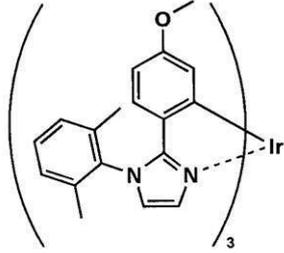


(148)

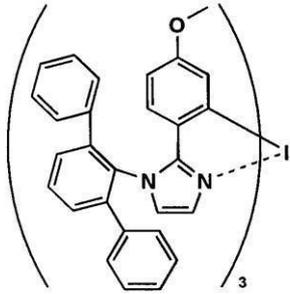


10

(149)

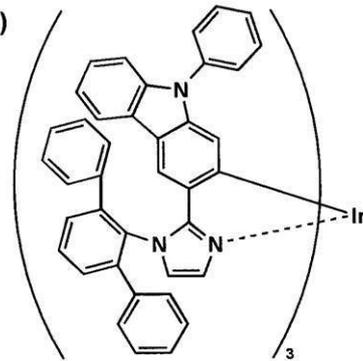


(150)

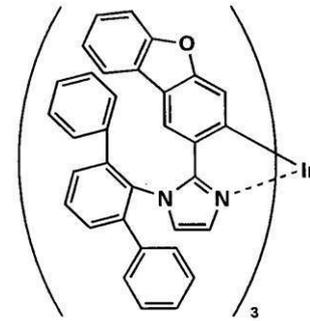


20

(151)

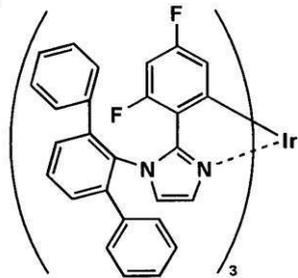


(152)

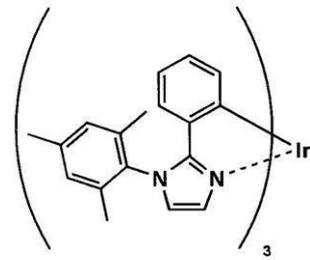


30

(153)



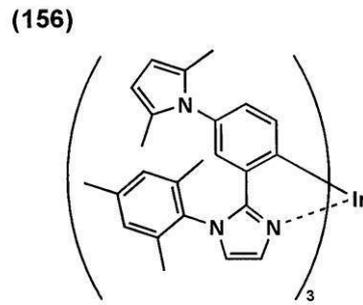
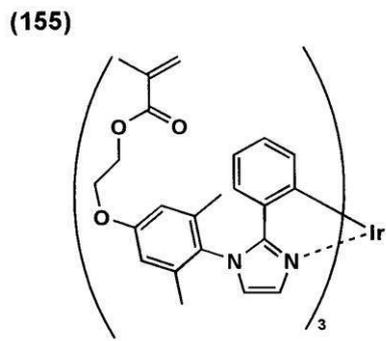
(154)



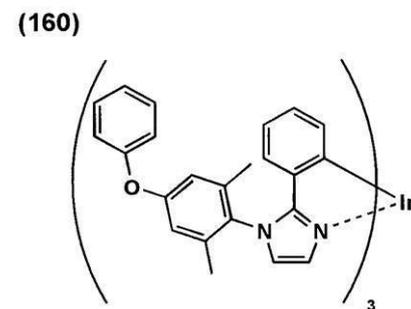
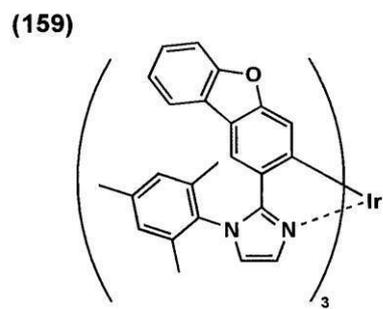
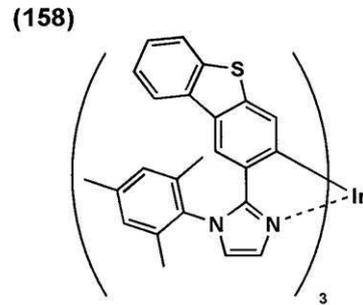
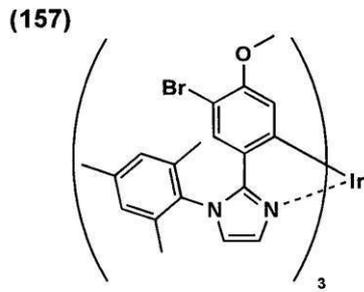
【 0 1 7 9 】

40

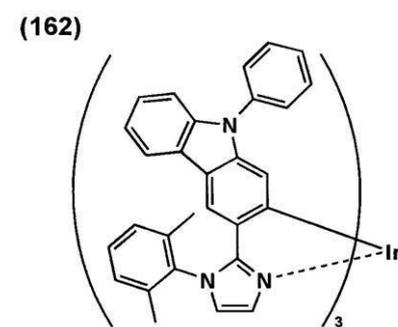
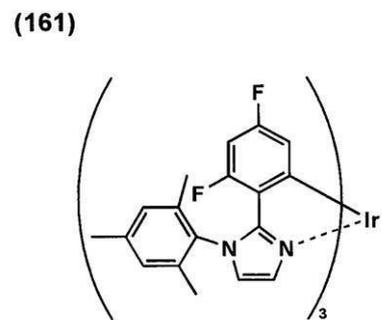
【化 8 5】



10



20

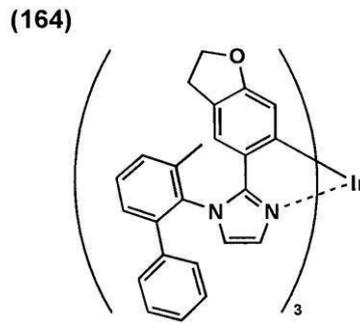
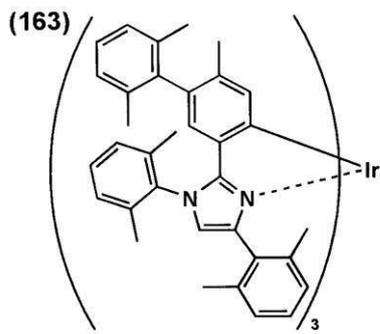


30

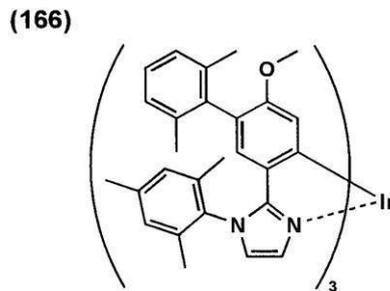
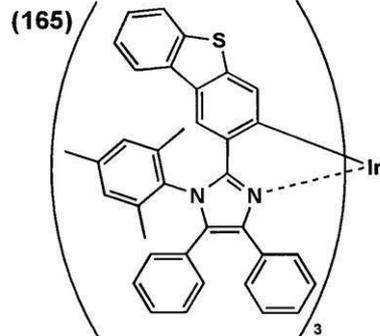
【 0 1 8 0 】

40

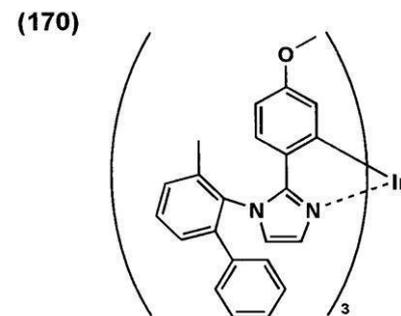
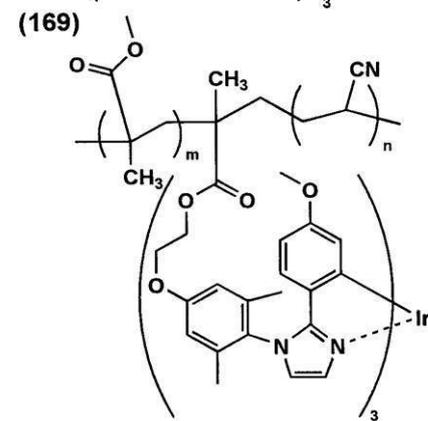
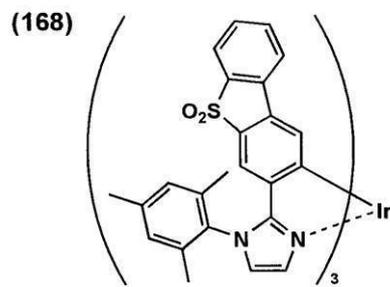
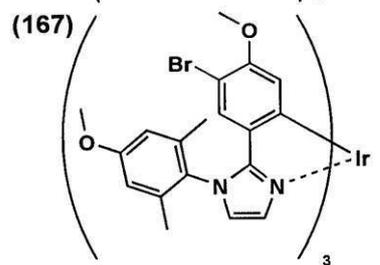
【化 8 6】



10



20

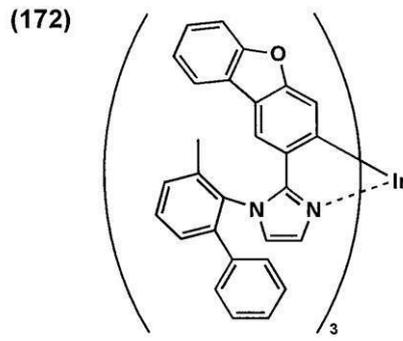
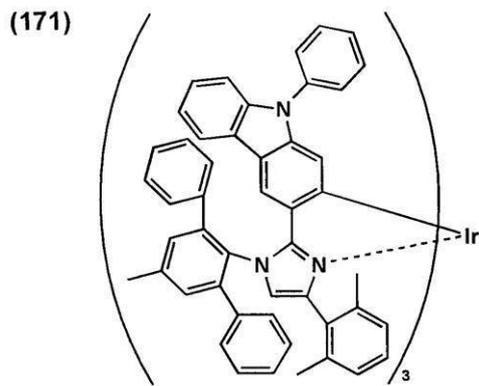


30

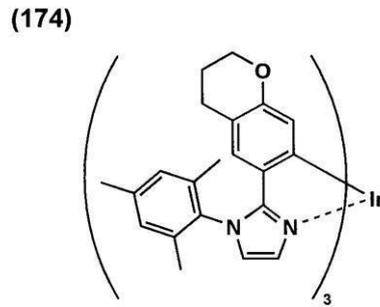
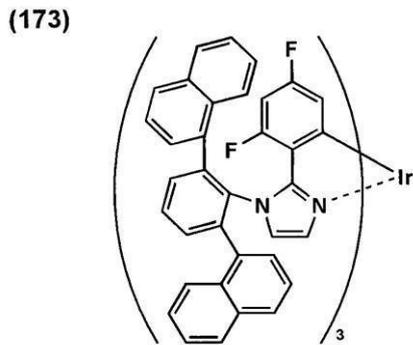
【 0 1 8 1】

40

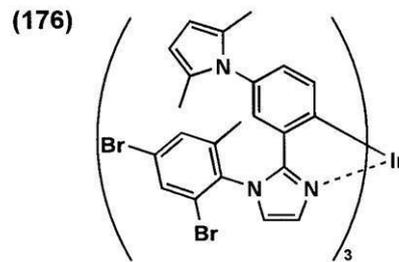
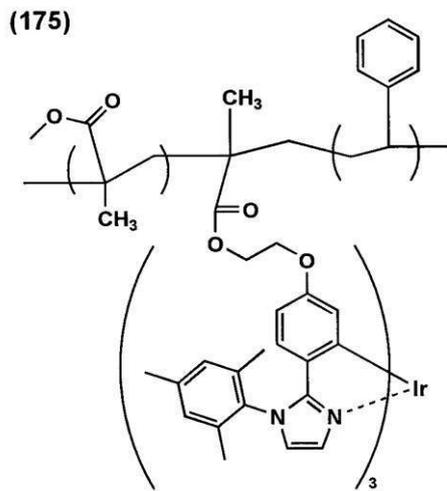
【化 8 7】



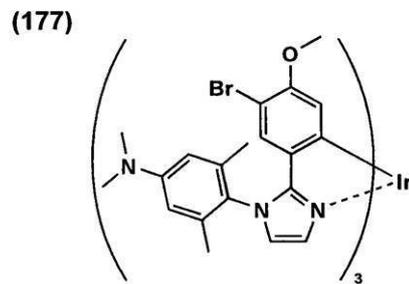
10



20



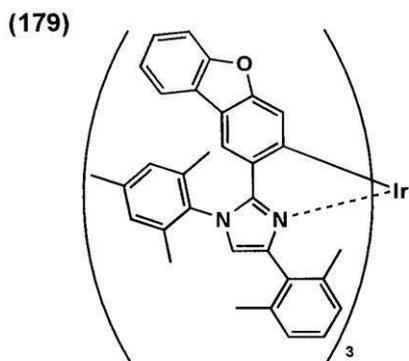
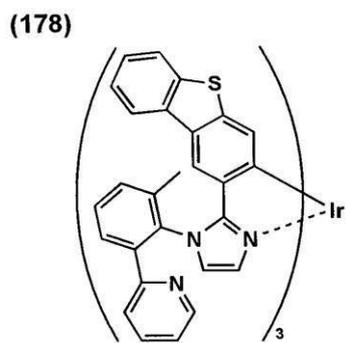
30



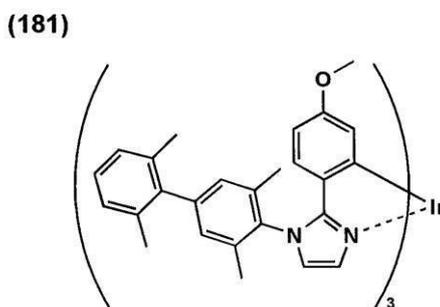
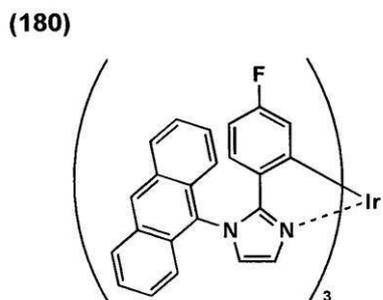
【 0 1 8 2 】

40

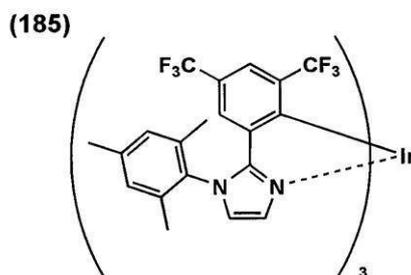
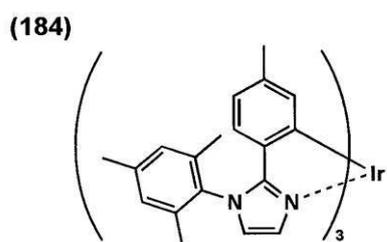
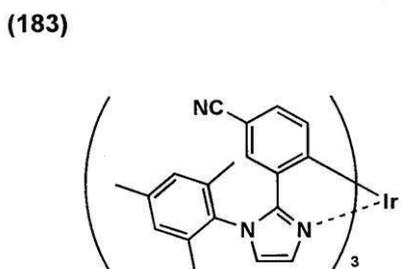
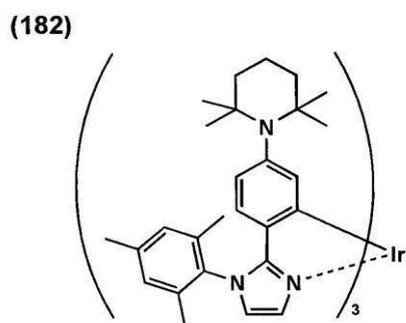
【化 8 8】



10



20



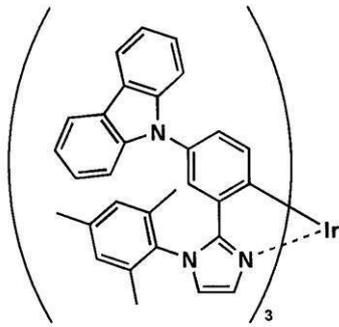
30

【 0 1 8 3 】

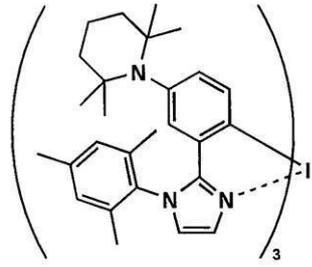
40

【化 8 9】

(186)



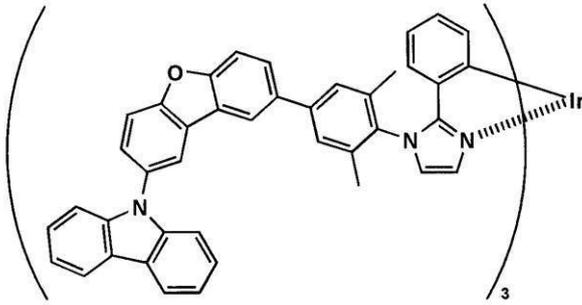
(187)



【 0 1 8 4】

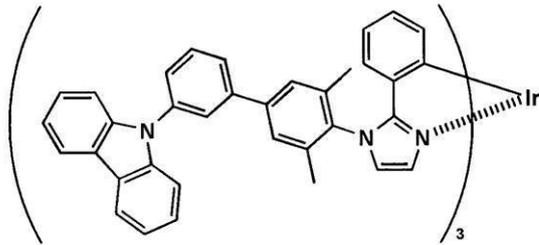
【化90】

D-1



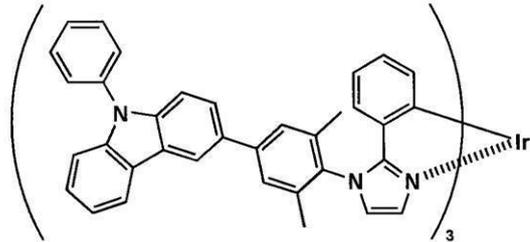
10

D-2

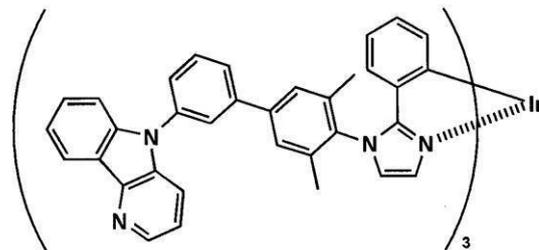


20

D-3



D-4

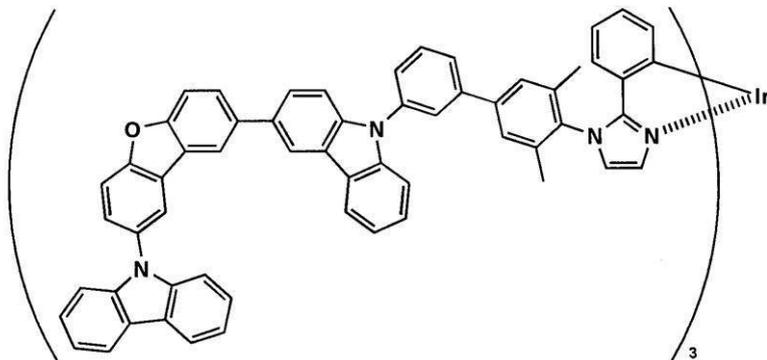


30

【0185】

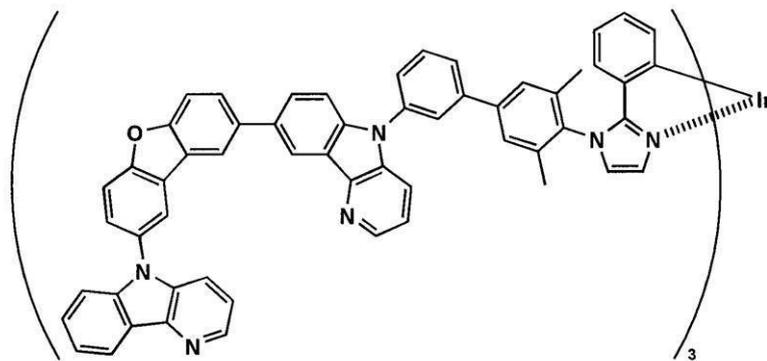
【化91】

D-5



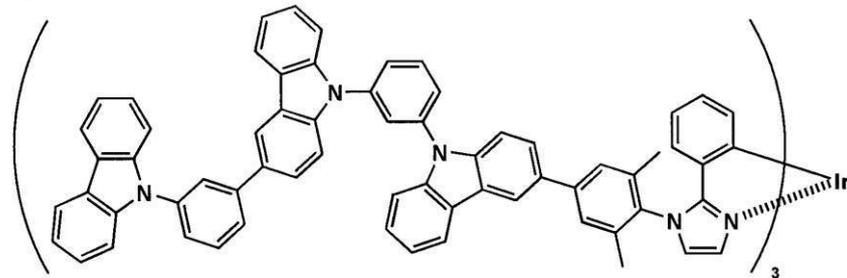
10

D-6



20

D-7

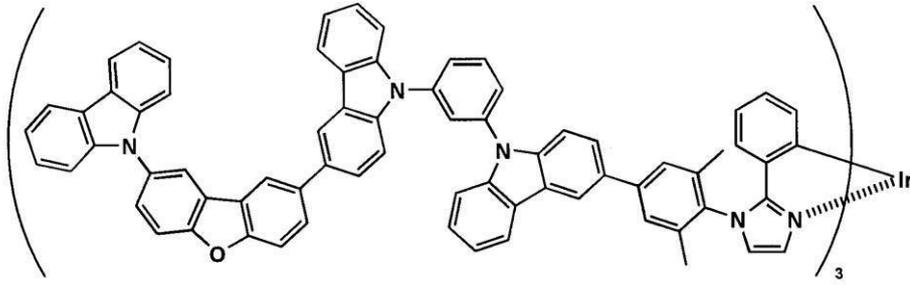


30

【0186】

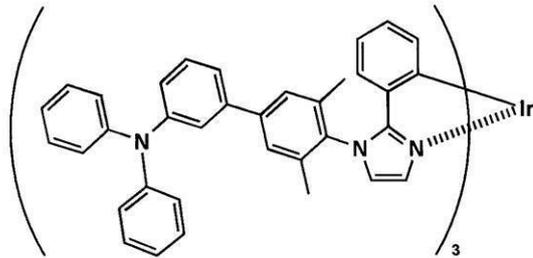
【化92】

D-8



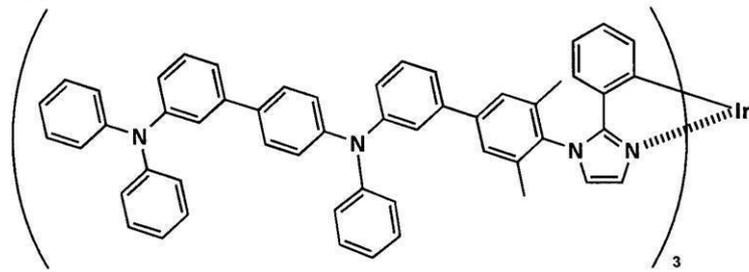
10

D-9

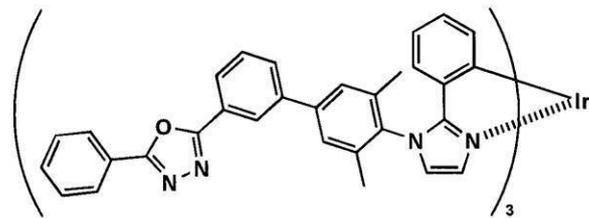


20

D-10



D-11

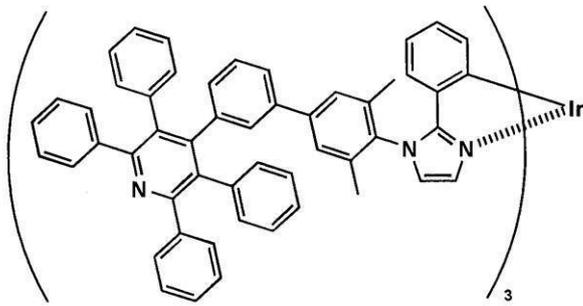


30

【0187】

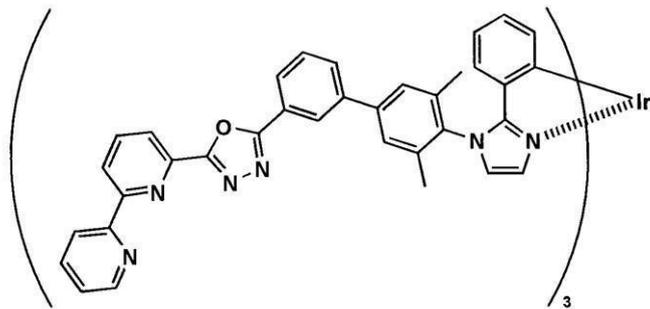
【化93】

D-12



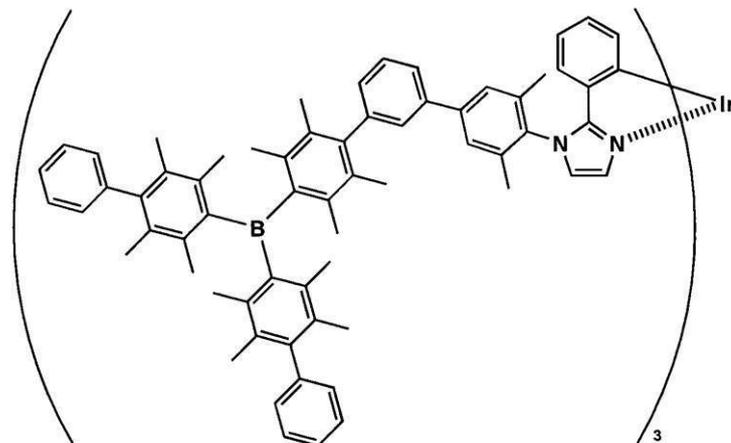
10

D-13



20

D-14

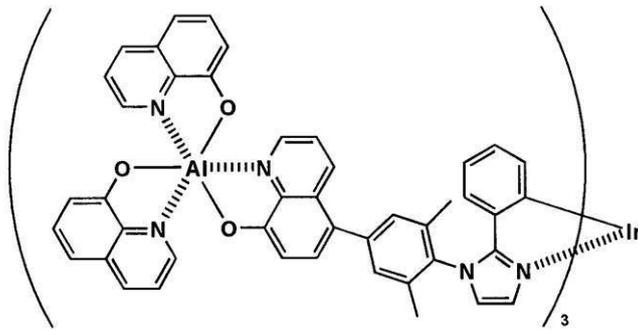


30

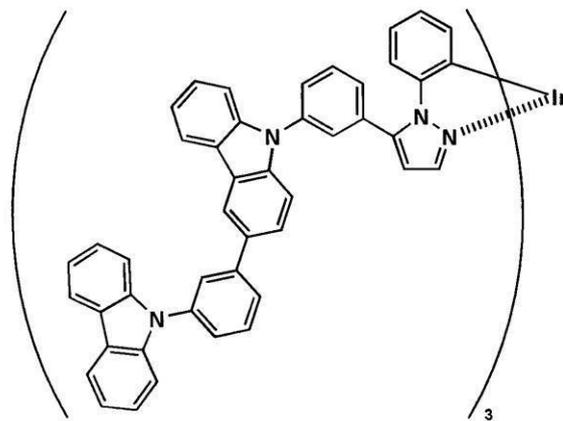
【0188】

【化94】

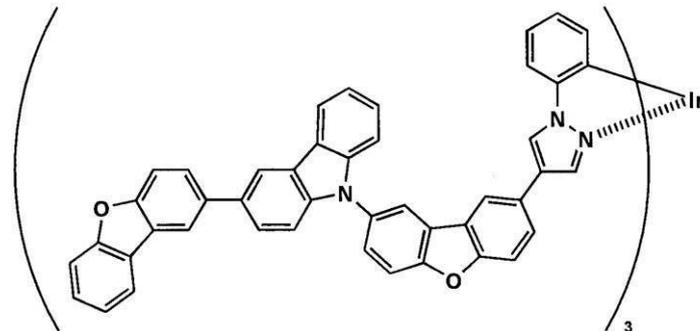
D-15



D-16



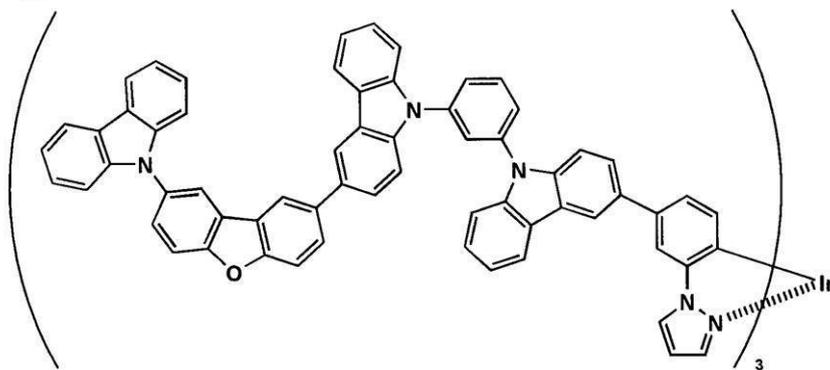
D-17



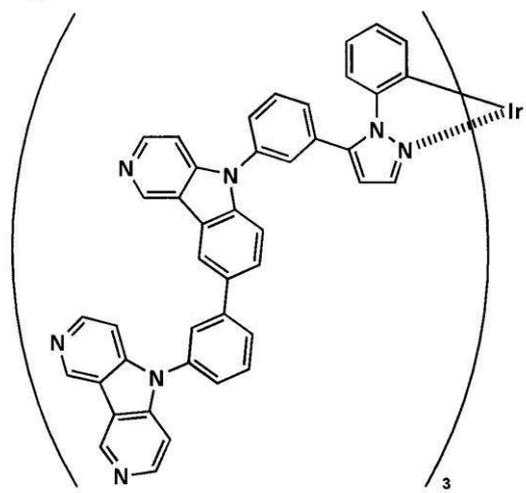
【0189】

【化95】

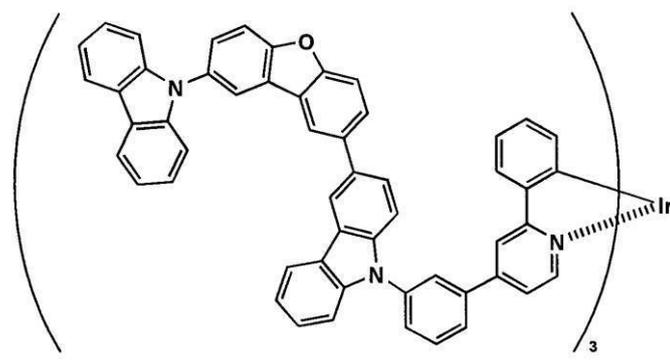
D-18



D-19



D-20

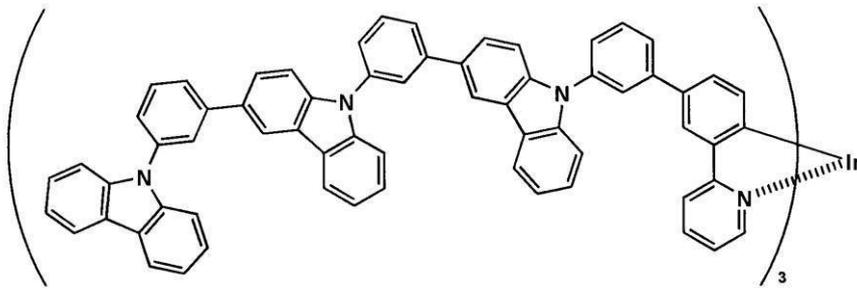


【0190】

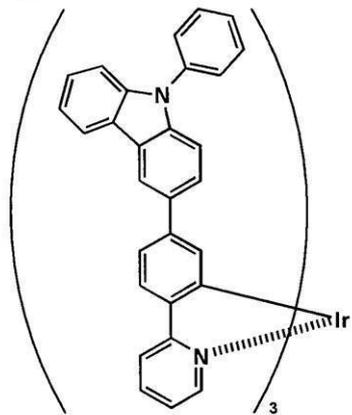
40

【化 9 6】

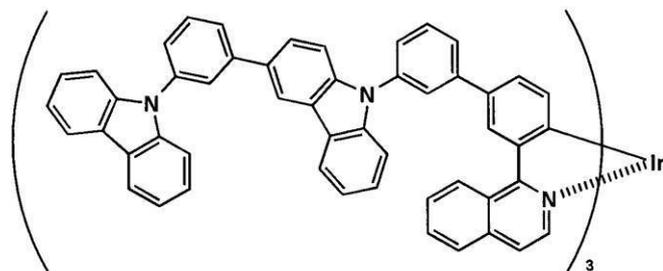
D-21



D-22



D-23

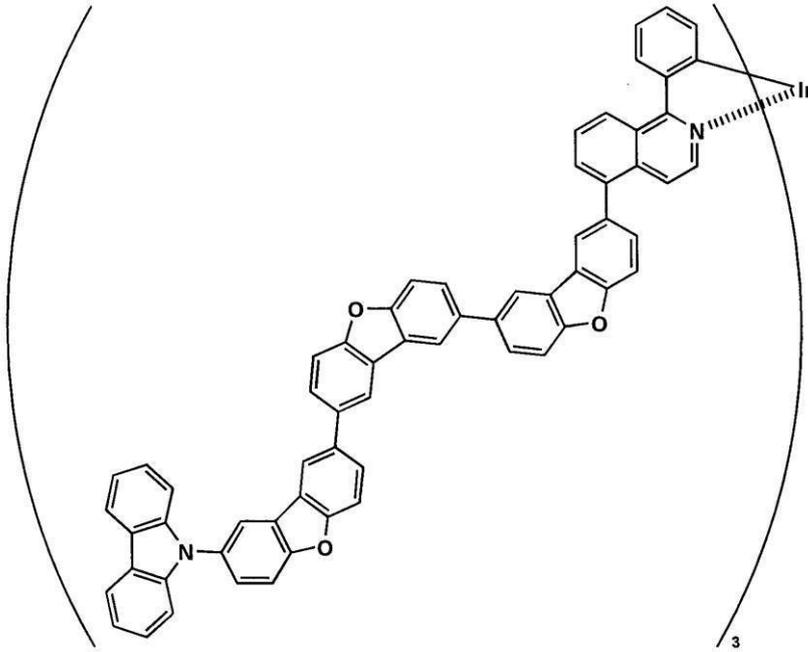


【 0 1 9 1 】

40

【化97】

D-24



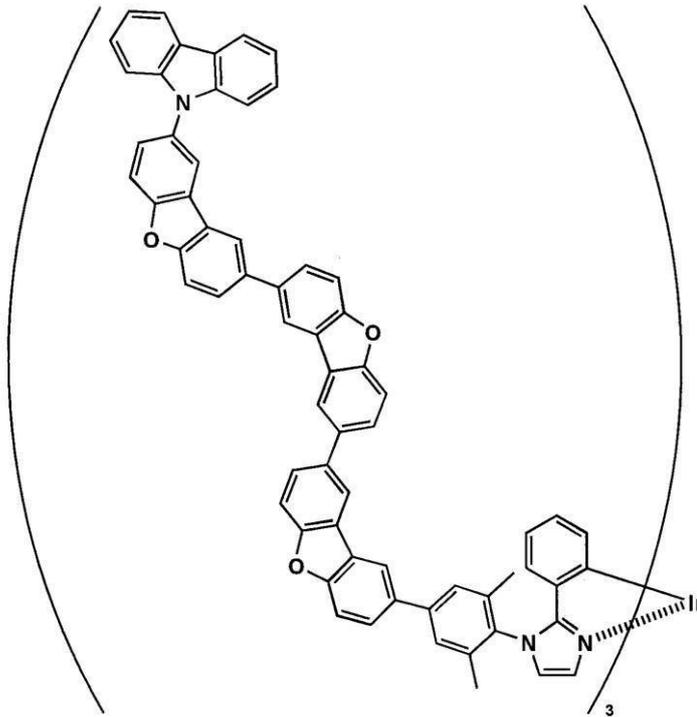
10

20

【0192】

【化98】

D-25



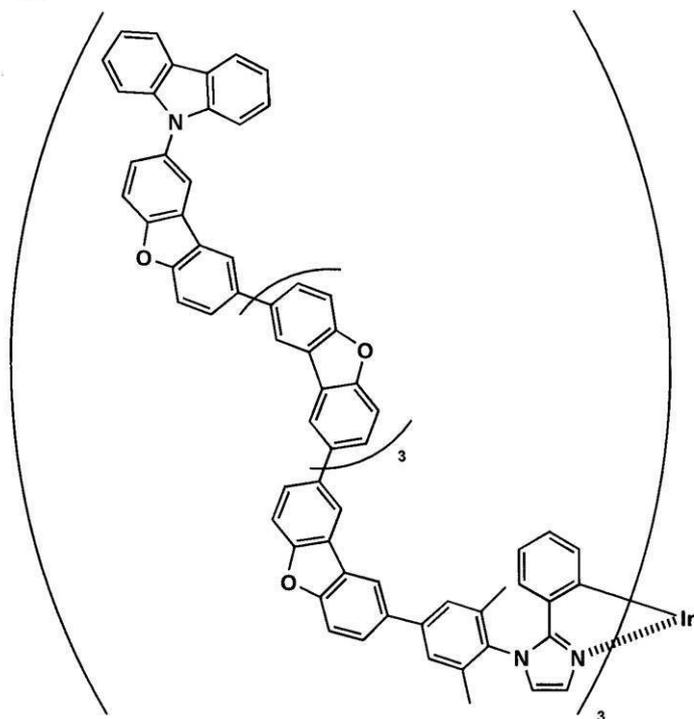
30

40

【0193】

【化 9 9】

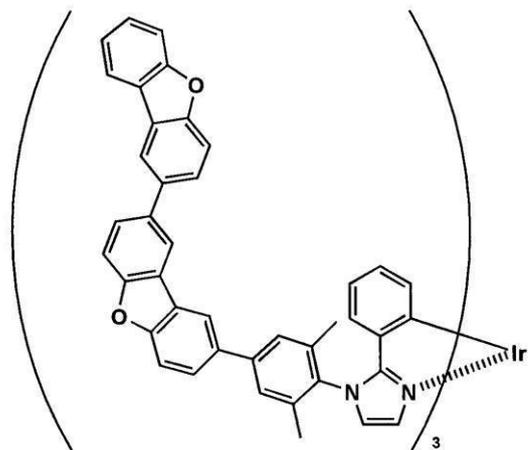
D-26



10

20

D-27

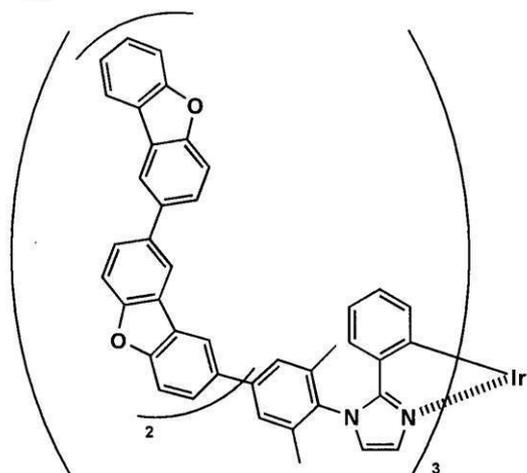


30

【 0 1 9 4 】

【化100】

D-28

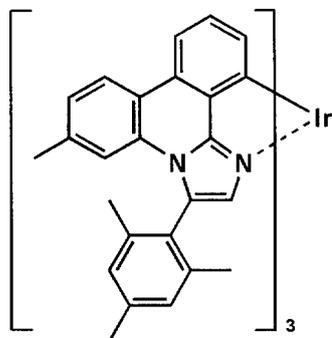


10

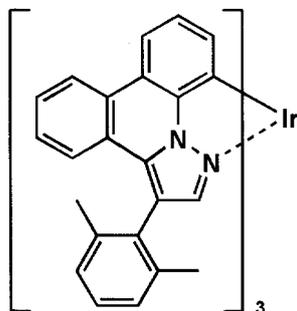
【0195】

【化101】

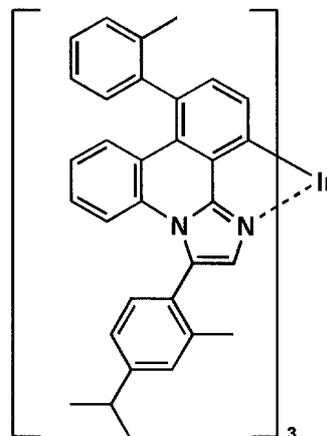
D-29



D-30



D-31



20

30

【0196】

これらの金属錯体は、例えば、Organic Letter誌、vol13、No.16、2579~2581頁(2001)、Inorganic Chemistry,第30巻、第8号、1685~1687頁(1991年)、J. Am. Chem. Soc.,123巻、4304頁(2001年)、Inorganic Chemistry,第40巻、第7号、1704~1711頁(2001年)、Inorganic Chemistry,第41巻、第12号、3055~3066頁(2002年)、New Journal of Chemistry,第26巻、1171頁(2002年)、European Journal of Organic Chemistry,第4巻、695~709頁(2004年)、更にこれらの文献中に記載の参考文献等の方法を適用することにより合成できる。

40

【0197】

本発明は、有機EL素子における有機化合物層を、塗布、インクジェット、印刷、スプレーといった湿式法プロセスで積層するとき、薄膜を大面積に均一な膜で作製するのに適している。一般に、塗布法を用いて複数の層を積層するためには下層が上層の塗布液に溶

50

解しないことが条件だが、数十nmオーダーの常に薄い膜であるがために、難溶性の溶剤を用いて上層を塗布しても下層の膜の溶け出し、又は溶媒によって界面が乱れてしまうという問題が生じるが、本発明においては、前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物が、常圧下、25度にて、iso-ブタノールに対する溶解度が、0.05g/L以下である化合物であるため、該化合物及び前記一般式(2)で表される金属錯体化合物を含有する発光層を成膜し発光層を形成したのち、発光層に隣接して電子輸送層を形成するについては、該電子輸送層を、n-ブタノール、又はiso-ブタノールを塗布溶媒として塗布、形成すると好ましいのである。上記の溶解度プロファイルを持つ発光層上に、電子輸送層を湿式法で形成するとき、このような下層材料の上層へのコンタミや界面の乱れが起こらず、有機EL素子を形成したとき発光効率の低下や素子寿命の劣化を引き起こすことがない。

10

【0198】

湿式法としては、前記の塗布(スピンコート、バーコート、ダイコート、スプレー塗布等その方式は問わない)のほか、インクジェット法、例えばスクリーン印刷等の方法を含む。

【0199】

また、前記一般式(1)で表される部分構造を有し、かつ常圧下、25における該化合物のiso-ブタノールに対する溶解度が0.05g/L以下である化合物、及び前記一般式(2)で表される金属錯体化合物を含有する発光層自身についても、生産性という観点で、湿式法で形成され、湿式法で形成された発光層上に、電子輸送層が更に湿式法により形成されることが好ましい。

20

【0200】

本発明に係る前記一般式(1)で表される部分構造を有する化合物は、後述する本発明の有機EL素子の構成層のいずれの層においても用いることができるが、外部取り出し量子効率の向上、発光寿命の長寿命化の観点からは、発光層に含有されることが好ましい。

【0201】

また、本発明に係る発光ドーパントとしては、前記一般式(2)また(3)で表される金属錯体が好ましい。

【0202】

《有機EL素子の構成層》

30

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

【0203】

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

本発明の有機EL素子においては、青色発光層の発光極大波長は430nm~480nmにあるものが好ましく、緑色発光層は発光極大波長が510nm~550nm、赤色発光層は発光極大波長が600nm~640nmの範囲にある単色発光層であることが好ましく、これらを用いた表示装置であることが好ましい。また、これらの少なくとも3層の発光層を積層して白色発光層としたものであってもよい。更に、発光層間には非発光性の中間層を有していてもよい。本発明の有機EL素子としては白色発光層であることが好ましく、これらを用いた照明装置であることが好ましい。

40

【0204】

本発明の有機EL素子を構成する各層について説明する。

【0205】

《発光層》

50

本発明に係る発光層は、電極又は電子輸送層、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。

【0206】

発光層の膜厚の総和は特に制限はないが、膜の均質性や、発光時に不必要な高電圧を印加するのを防止し、かつ、駆動電流に対する発光色の安定性向上の観点から、2 nm ~ 5 μmの範囲に調整することが好ましく、更に好ましくは2 nm ~ 200 nmの範囲に調整され、特に好ましくは、10 nm ~ 80 nmの範囲である。

【0207】

発光層の作製には、後述する発光ドーパントやホスト化合物を、例えば、スピンコート法、ダイコート法等、塗布法や、また、インクジェット法、スクリーン印刷法、キャスト法、LB法等の湿式法、真空蒸着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。本発明の化合物を発光層に用いる場合湿式法により形成することが好ましい。

10

【0208】

本発明の有機EL素子の発光層には、発光ホスト化合物と、発光ドーパント（リン光発光性ドーパント（リン光発光性ドーパントともいう）や蛍光ドーパント等）の少なくとも1種類とを含有することが好ましい。

【0209】

（ホスト化合物（発光ホスト等ともいう））

本発明において用いられるホスト化合物について説明する。

20

【0210】

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未満の化合物と定義される。好ましくはリン光量子収率が0.01未満である。また、発光層に含有される化合物の中で、その層中での質量比が20%以上であることが好ましい。また、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質量比20%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い。

【0211】

本発明に用いられるホスト化合物としては、前記一般式（1）で表される部分構造を有し、かつ常圧下、25℃における該化合物のisopropanolに対する溶解度が0.05 g/L以下である化合物を含有する。また、本発明においては、公知のホスト化合物を併用してもよい。

30

【0212】

ホスト化合物としては、単独で用いてもよく、又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。

【0213】

また、本発明において用いるホスト化合物はT_gが100℃以上のものであることが好ましい。T_gが100℃より低いと素子の経時での劣化（城戸低下、膜性上の劣化）が大きく、また生産プロセス上においても乾燥工程等の面で制約が大きいため、好ましくない。すなわち、輝度と耐久性、生産性を満足するためにはT_gが100℃以上であることが好ましい。T_gは更に好ましくは130℃以上である。

40

【0214】

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。

【0215】

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。

【0216】

50

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。

【0217】

(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。

【0218】

本発明に係る発光ドーパントとしては、蛍光ドーパント(蛍光性化合物ともいう)、リン光発光性ドーパント(リン光発光体、リン光性化合物、リン光発光性化合物等ともいう)を用いることができるが、より発光効率の高い有機EL素子を得る観点からは、本発明の有機EL素子の発光層や発光ユニットに使用される発光ドーパント(単に、発光材料ということもある)としては、上記のホスト化合物を含有すると同時に、リン光発光性ドーパントを含有することが好ましい。

【0219】

(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。

【0220】

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と定義されるが、好ましいリン光量子収率は0.1以上である。

【0221】

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。

【0222】

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が挙げられる。

【0223】

上記の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。

【0224】

リン光発光性ドーパントとして、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もできる。

【0225】

10

20

30

40

50

本発明に係るリン光発光性ドーパントとしては、前記一般式(2)で表される金属錯体が用いられる。

【0226】

本発明に係るリン光発光性ドーパントとして用いられる化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704～1711に記載の方法等を参照して合成できる。

【0227】

本発明においては、リン光発光性ドーパントのリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができる。

【0228】

(蛍光ドーパント(蛍光性化合物ともいう))

本発明においては、蛍光ドーパントを用いることができる。蛍光ドーパント(蛍光性化合物)としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

【0229】

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

【0230】

《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、上記の如く陽極と発光層又は正孔輸送層の間、及び陰極と発光層又は電子輸送層との間に存在させてもよい。

【0231】

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。

【0232】

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。

【0233】

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

【0234】

《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ほか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。

【0235】

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

10

20

30

40

50

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

【0236】

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。

【0237】

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。

【0238】

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

【0239】

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。

【0240】

(1) 米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian 98 (Gaussian 98, Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.)を用い、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値(eV単位換算値)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。

【0241】

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

【0242】

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 nm ~ 100 nmであり、更に好ましくは5 nm ~ 30 nmである。

【0243】

《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。正孔輸送層は単層又は複数層設けることができる。

【0244】

正孔輸送材料としては、正孔の注入又は輸送、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ズロン誘導体、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

10

20

30

40

50

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。

【0245】

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。

【0246】

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ノユニットが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。

【0247】

更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、又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。

【0248】

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。

【0249】

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、薄膜として形成することができる。しかしながら、例えば、陽極から正孔輸送層、発光層と積層・形成してゆく場合、正孔輸送層もまた、湿式法である、塗布、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法等により形成されその上に、本発明の化合物を含む発光層が、同じく湿式法により形成されることが好ましい。

【0250】

正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm ~ 5µm程度、好ましくは5nm ~ 200nmである。この正孔輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0251】

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 -

10

20

30

40

50

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。

【0252】

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。

【0253】

《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。電子輸送層は単層又は複数層設けることができる。

【0254】

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る。

【0255】

電子輸送層中に用いられる化合物としては、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキシド誘導体、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。

【0256】

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、又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。

【0257】

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又はPbに置き換わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。

【0258】

その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又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。

【0259】

例えば、陽極から正孔輸送層、発光層と積層形成する場合、電子輸送層は上記電子輸送材料を、湿式法である、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法等の湿式法により、例えば、本発明の化合物を含む発光層上に積層・形成できる。

【0260】

電子輸送層は、n-ブタノール、またiso-ブタノールを塗布溶媒として用い上記湿式法で形成されることが好ましい。

【0261】

勿論、発光層の隣接層の一方については、湿式法以外の方法、例えば蒸着等の方法で形成されても構わない。

【0262】

10

20

30

40

50

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 nm ~ 200 nmである。電子輸送層は上記材料の1種又は2種以上からなる一層構造であってもよい。

【0263】

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。

【0264】

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。

10

【0265】

《反応性有機化合物》

また、本発明では、上記の各機能層において、反応性基をもつ有機化合物(反応性有機化合物)を用いてもよい。反応性有機化合物を用いる層としては特に制限はなく、各層に用いることができる。それぞれ各機能層に反応性基をもつそれぞれの機能を持つ有機材料を用いればよい。

【0266】

反応性有機化合物を基板上で反応させ、有機分子によるネットワークポリマーを形成させることができる。ネットワークポリマーが生成することで、構成層のT_g(ガラス転移点)調整による素子劣化の抑制させることができる。

20

【0267】

また、素子使用中の活性ラジカルを用いて分子の共役系の切断又は生成を伴う反応を調整することにより、有機EL素子の発光波長を変えたり、特定波長の劣化を抑制すること等も可能である。

【0268】

一方、製造面では、例えば、ウェットプロセスで積層する工程の場合では、下層が上層の塗布液に溶解しないことが好ましいため、下層を樹脂化し溶剤溶解性を劣化させることで、上層塗布を可能とすることができる。例えば、正孔輸送層をこのように架橋した有機層として樹脂化することで、上層として発光層を塗布する際に下層の溶解、又浸透を防止

30

【0269】

用いることのできる反応性基としては、特に限定されないが、例えば、ビニル基、エチニル基、イソシアネート基、エポキシ基等が代表的には挙げられる。

【0270】

《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。

【0271】

このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

40

【0272】

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。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。

【0273】

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製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

50

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。更に膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1000nm、好ましくは10nm~200nmの範囲で選ばれる。

【0274】

《陰極》

一方、陰極としては仕事関数の小さい(4eV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(Al₂O₃)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。

10

【0275】

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(Al₂O₃)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。

【0276】

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10nm~5μm、好ましくは50nm~200nmの範囲で選ばれる。尚、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

20

【0277】

また、陰極に上記金属を1nm~20nm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、透明又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。

【0278】

《支持基板》

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

30

【0279】

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又はそれらの誘導体、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)、ポリフェニルスルフィド、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。

40

50

【0280】

樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜又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 (2.5 ± 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、 $10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{MPa})$ 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。

【0281】

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。

10

【0282】

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

20

【0283】

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。

【0284】

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。

【0285】

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。

30

【0286】

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。

【0287】

《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。

【0288】

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。

40

【0289】

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

50

選ばれる一種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

【0290】

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、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が $1 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{MPa})$ 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(25 ± 0.5 、相対湿度(90 ± 2)%RH)が、 $1 \times 10^{-3} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のものであることが好ましい。

【0291】

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。 10

【0292】

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。

【0293】

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。 20

【0294】

また、有機層を挟み支持基板と対向する側の電極の外側に該電極と有機層を被覆し、支持基板と接する形で無機物、有機物の層を形成し封止膜とすることも好適にできる。この場合、該膜を形成する材料としては、水分や酸素等素子の劣化をもたらすものの浸入を抑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、分子線エビタキシ法、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。 30

【0295】

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。 40

【0296】

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。

【0297】

《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 50

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。

【0298】

《光取り出し》

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

10

【0299】

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。

20

【0300】

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。

【0301】

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

30

【0302】

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。

【0303】

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。

40

【0304】

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。

【0305】

全反射を起こす界面若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、いずれかの層間若しくは、媒質中（透明基板内や透明電極内）に回

50

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。

【0306】

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。

【0307】

回折格子を導入する位置としては前述の通り、いずれかの層間若しくは媒質中（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。

10

【0308】

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。

【0309】

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。

【0310】

《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。

20

【0311】

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が30μmでその頂角が90度となるような四角錐を二次元に配列する。一辺は10μm～100μm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。

【0312】

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、例えば、基材に頂角90度、ピッチ50μm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。

30

【0313】

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。

【0314】

《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素子の作製法を説明する。

40

【0315】

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

【0316】

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。

【0317】

これら各層の形成方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス（スピコート

50

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好ましい。

【0318】

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

10

【0319】

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、50nm~200nmの範囲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。

【0320】

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。

20

【0321】

《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。

【0322】

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。

30

【0323】

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。

【0324】

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

40

【実施例】

【0325】

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。

【0326】

実施例1

《溶解度の測定》

25度の環境下、iso-ブタノール100mlに表Aに示される化合物を各々5mg加えて、3時間攪拌した後、完全に化合物が溶解したか否かを目視で確認し、完溶したも

50

のを、しなかったものを×とした。完溶しなかったものが本発明の化合物に相当する。

【0327】

【表1】

| 化合物No. | 溶解度 | 備考 |
|----------|-----|-----|
| 比較化合物1 | ○ | 比較例 |
| 比較化合物2 | ○ | 比較例 |
| 比較化合物3 | ○ | 比較例 |
| PVK | × | 比較例 |
| 化合物例1-1 | × | 本発明 |
| 化合物例1-2 | × | 本発明 |
| 化合物例1-5 | × | 本発明 |
| 化合物例1-16 | × | 本発明 |
| 化合物例1-24 | × | 本発明 |
| 化合物例1-60 | × | 本発明 |
| 化合物例1-61 | × | 本発明 |
| 化合物例1-62 | × | 本発明 |

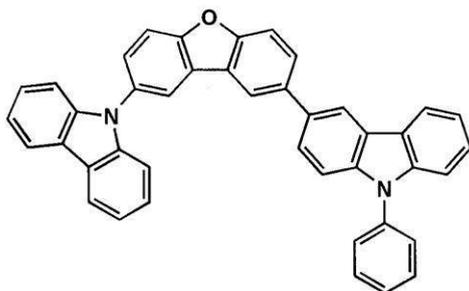
10

【0328】

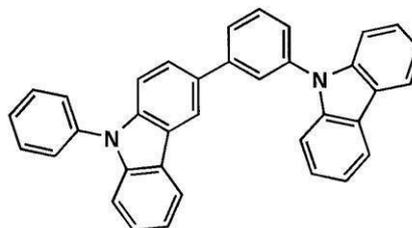
【化102】

20

比較化合物1

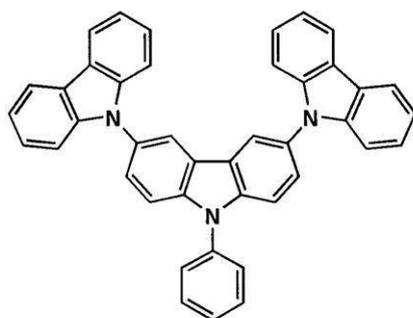


比較化合物2



30

比較化合物3



40

【0329】

実施例2

《有機EL素子の2-1の作製》

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

50

【0330】

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社製、Baytron PA1 4083)を純水で70%に希釈した溶液を3000rpm、30秒でスピコート法により製膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

【0331】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料1を10mlのトルエンに溶解した溶液を1500rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。窒素雰囲気下、180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約20nmの第2正孔輸送層とした。

10

【0332】

この第2正孔輸送層上に、100mgのPVKと10mgのドーパント4を10mlのトルエンに溶解した溶液を1000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。120℃で1時間真空乾燥し、膜厚約50nmの発光層とした。

【0333】

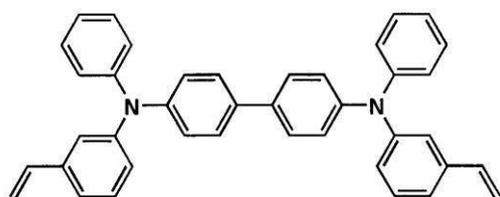
次にこの発光層上に、50mgの電子輸送材料1を10mlの1-ブタノールに溶解した溶液を5000rpm、30秒の条件下、スピコート法により製膜した。60℃で1時間真空乾燥し、膜厚約15nmの電子輸送層とした。

【0334】

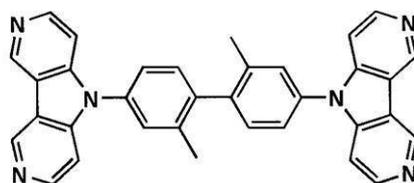
【化103】

20

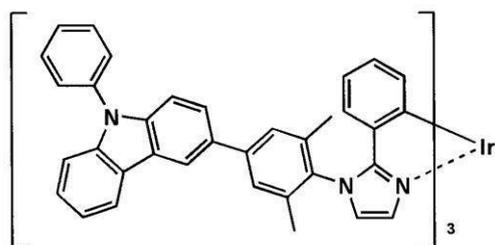
正孔輸送材料1



電子輸送材料1



ドーパント4



30

【0335】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム1.0nm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2-4を作製した。

【0336】

《有機EL素子2-1～2-12の作製》

有機EL素子2-4の作製において、PVKを表2に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子2-4と同様にして有機EL素子を各々作製しようとしたが、有機EL素子2

50

- 1 ~ 2 - 3 は電子輸送層を塗る際に発光層が溶け出し、素子が作成できなかった。有機 EL 素子 2 - 5 ~ 2 - 1 2 は有機 EL 素子 2 - 4 と同様に作成できた。

【 0 3 3 7 】

《有機 EL 素子 2 - 4 ~ 2 - 1 2 の評価》

得られた有機 EL 素子 2 - 4 ~ 2 - 1 2 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 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 2、図 3 に示すような照明装置を形成して評価した。

10

【 0 3 3 8 】

図 2 は、照明装置の概略図を示し、有機 EL 素子 201 は、ガラスカバー 202 で覆われている。尚、ガラスカバーでの封止作業は、有機 EL 素子 201 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 3 3 9 】

図 3 は、本発明の照明装置の一態様を示す断面図であり、図 3 において、205 は陰極、206 は有機 EL 層、207 は透明電極付きガラス基板を示す。尚、ガラスカバー 202 内には窒素ガス 208 が充填され、捕水剤 209 が設けられている。

20

【 0 3 4 0 】

次いで、下記のようにして外部取り出し量子効率及び発光寿命を測定した。

【 0 3 4 1 】

（外部取りだし量子効率）

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 / cm²、定電流を印加したときの外部取り出し量子効率（%）を測定した。

【 0 3 4 2 】

尚、測定には同様に分光放射輝度計 CS - 1000（コニカミノルタセンシング社製）を用いた。

【 0 3 4 3 】

表 2 の外部取りだし量子効率の測定結果は、有機 EL 素子 2 - 4 の測定値を 100 としたときの相対値で表した。

30

【 0 3 4 4 】

（寿命）

2.5 mA / 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。

【 0 3 4 5 】

尚、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社製）を用いた。

【 0 3 4 6 】

表 2 の寿命の測定結果は、有機 EL 素子 2 - 4 を 100 としたとき相対値で表した。

40

【 0 3 4 7 】

得られた結果を表 2 に示す。

【 0 3 4 8 】

【表 2】

| 有機EL素子 | ホスト | ドーパント | 外部取り出し量子効率 | 寿命 | 備考 |
|--------|----------|--------|-------------|-----|-----|
| 2-1 | 比較化合物1 | ドーパント4 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 2-2 | 比較化合物2 | ドーパント4 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 2-3 | 比較化合物3 | ドーパント4 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 2-4 | PVK | ドーパント4 | 100 | 100 | 比較例 |
| 2-5 | 化合物例1-1 | ドーパント4 | 310 | 540 | 本発明 |
| 2-6 | 化合物例1-2 | ドーパント4 | 310 | 510 | 本発明 |
| 2-7 | 化合物例1-5 | ドーパント4 | 305 | 480 | 本発明 |
| 2-8 | 化合物例1-16 | ドーパント4 | 290 | 490 | 本発明 |
| 2-9 | 化合物例1-24 | ドーパント4 | 290 | 520 | 本発明 |
| 2-10 | 化合物例1-60 | ドーパント4 | 270 | 350 | 本発明 |
| 2-11 | 化合物例1-61 | ドーパント4 | 230 | 410 | 本発明 |
| 2-12 | 化合物例1-62 | ドーパント4 | 220 | 420 | 本発明 |

10

【0349】

表2から、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、高い外部取り出し量子効率を示し、低駆動電圧であり、且つ、発光寿命が長いことが明らかである。

【0350】

20

実施例3

《有機EL素子の3-4の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板に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。

【0351】

この透明支持基板上に、ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフエン）-ポリスチレンスルホネート（PEDOT/PSS、Bayer社製、Baytron 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製膜した後、200℃にて1時間乾燥し、膜厚20nmの正孔輸送層を設けた。

30

【0352】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料2を10mlのトルエンに溶解した溶液を1500rpm、30秒の条件下、スピンコート法により製膜した。窒素雰囲気下、180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約20nmの第2正孔輸送層とした。

【0353】

この第2正孔輸送層上に、100mgのPVKと10mgのドーパント5を10mlのトルエンに溶解した溶液を1000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により製膜した。120℃で1時間真空乾燥し、膜厚約50nmの発光層とした。

40

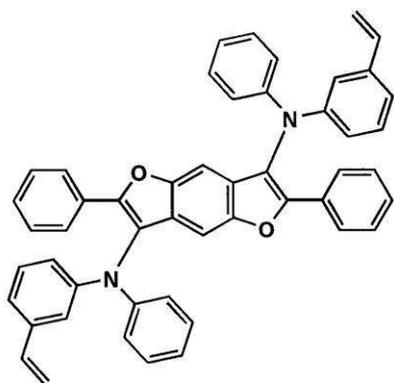
【0354】

次にこの発光層上に、50mgの電子輸送材料2を10mlのiso-ブタノールに溶解した溶液を5000rpm、30秒の条件下、スピンコート法により製膜した。60℃で一時間真空乾燥し、膜厚約20nmの電子輸送層とした。

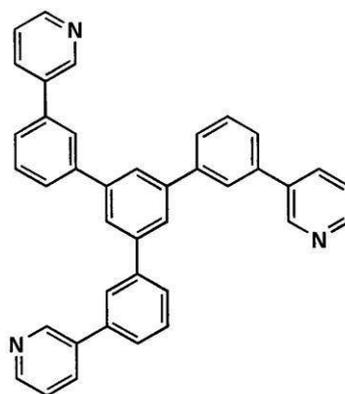
【0355】

【化104】

正孔輸送材料2

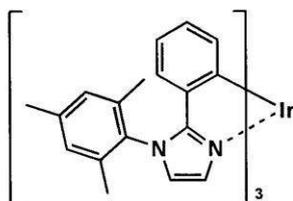


電子輸送材料2

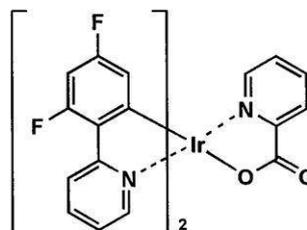


10

ドーパント5

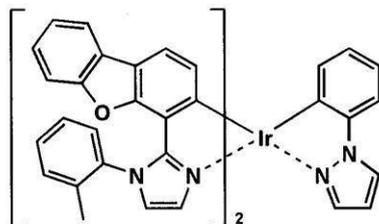


ドーパント6



20

ドーパント7



30

【0356】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧し、陰極バッファ層としてフッ化リチウム 1.0 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 3-4 を作製した。

【0357】

《有機 EL 素子 3-1 ~ 3-10 の作製》

有機 EL 素子 3-4 の作製において、PVK を表 3 に示す化合物に置き換えた以外は有機 EL 素子 3-4 と同様にして有機 EL 素子を各々作製しようとしたが、有機 EL 素子 3-1 ~ 3-3 は電子輸送層を塗る際に発光層が溶け出し、素子が作成できなかった。有機 EL 素子 3-5 ~ 3-10 は有機 EL 素子 3-4 と同様に作成できた。

40

【0358】

有機 EL 素子 3-4 ~ 3-10 を各々作製した。

【0359】

《有機 EL 素子 3-4 ~ 3-10 の評価》

得られた有機 EL 素子 3-4 ~ 3-10 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 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、

50

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2、図3に示すような照明装置を形成して評価した。

【0360】

図2は、照明装置の概略図を示し、有機EL素子201は、ガラスカバー202で覆われている。尚、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子201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）。

【0361】

図3は、本発明の照明装置の一態様を示す断面図であり、図3において、205は陰極、206は有機EL層、207は透明電極付きガラス基板を示す。尚、ガラスカバー202内には窒素ガス208が充填され、捕水剤209が設けられている。

10

【0362】

次いで、下記のようにして外部取り出し量子効率及び発光寿命を測定した。

【0363】

（外部取りだし量子効率）

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 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。

【0364】

尚、測定には同様に分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）を用いた。

20

【0365】

表1の外部取りだし量子効率の測定結果は、有機EL素子3-4の測定値を100とした時の相対値で表した。

【0366】

（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。

【0367】

尚、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社製）を用いた。

30

【0368】

また、表1の寿命の測定結果は、有機EL素子3-4を100としたときの相対値で表した。

【0369】

得られた結果を表3に示す。

【0370】

【表 3】

| 有機EL素子 | ホスト | ドーパント | 外部取り出し量子効率 | 寿命 | 備考 |
|--------|----------|--------|-------------|-----|-----|
| 3-1 | 比較化合物1 | ドーパント5 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 3-2 | 比較化合物2 | ドーパント6 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 3-3 | 比較化合物3 | ドーパント7 | 電子輸送層を製膜できず | — | 比較例 |
| 3-4 | PVK | ドーパント5 | 100 | 100 | 比較例 |
| 3-5 | 化合物例1-1 | ドーパント5 | 300 | 520 | 本発明 |
| 3-6 | 化合物例1-1 | ドーパント6 | 230 | 320 | 参考例 |
| 3-7 | 化合物例1-1 | ドーパント7 | 290 | 450 | 本発明 |
| 3-8 | 化合物例1-24 | ドーパント5 | 310 | 500 | 本発明 |
| 3-9 | 化合物例1-24 | ドーパント6 | 220 | 310 | 参考例 |
| 3-10 | 化合物例1-24 | ドーパント7 | 270 | 330 | 本発明 |

【0371】

表3から、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、高い外部取り出し量子効率を示し、低駆動電圧であり、且つ、発光寿命が長いことが明らかである。

【0372】

実施例4

《有機ELフルカラー表示装置の作製》

図1は有機ELフルカラー表示装置の概略構成図を示す。陽極としてガラス基板101上にITO透明電極(102)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)に100μmのピッチでパターニングを行った後、このガラス基板上でITO透明電極の間に非感光性ポリイミドの隔壁103(幅20μm、厚さ2.0μm)をフォトリソグラフィで形成させた。

【0373】

ITO電極上ポリイミド隔壁の間に下記組成の正孔注入層組成物を、インクジェットヘッド(エプソン社製; MJ800C)を用いて吐出注入し、紫外光を2分間照射し、60、10分間の乾燥処理により膜厚40nmの正孔注入層104を作製した。

【0374】

この正孔注入層上に、各々下記の青色発光層組成物、緑色発光層組成物、赤色発光層組成物を同様にインクジェットヘッドを使用して吐出注入し、60、10分間乾燥処理し、それぞれの発光層(105B, 105G, 105R)を形成させた。最後に発光層105を覆うように、陰極としてAl(106)を真空蒸着して有機EL素子を作製した。

【0375】

作製した有機EL素子はそれぞれの電極に電圧を印加することにより各々青色、緑色、赤色の発光を示し、フルカラー表示装置として利用できることがわかった。

【0376】

(正孔注入層組成物)

| | | |
|-------------|---------|----|
| 正孔輸送材料1 | 20質量部 | |
| シクロヘキシルベンゼン | 50質量部 | |
| イソプロピルピフェニル | 50質量部 | |
| (青色発光層組成物) | | |
| 化合物例1-1 | 0.7質量部 | |
| ドーパント4 | 0.04質量部 | |
| シクロヘキシルベンゼン | 50質量部 | |
| イソプロピルピフェニル | 50質量部 | |
| (緑色発光層組成物) | | |
| 化合物例1-1 | 0.7質量部 | 50 |

10

20

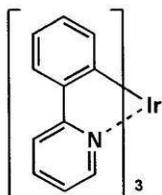
30

40

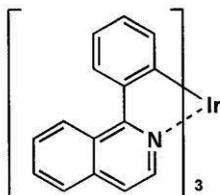
50

| | | |
|---------------------------|-------------|----|
| ドーパント 1 | 0 . 0 4 質量部 | |
| シクロヘキシルベンゼン | 5 0 質量部 | |
| イソプロピルピフェニル (赤色発光層組成物) | 5 0 質量部 | |
| 化合物例 1 - 1 | 0 . 7 質量部 | |
| ドーパント 2 | 0 . 0 4 質量部 | |
| シクロヘキシルベンゼン | 5 0 質量部 | |
| イソプロピルピフェニル (電子輸送層組成物) | 5 0 質量部 | |
| 電子輸送材料 1 | 2 0 質量部 | 10 |
| 1 - ブタノール | 5 0 質量部 | |
| イソプロピルピフェニル | 5 0 質量部 | |
| 【 0 3 7 7 】 | | |
| 【 化 1 0 5 】 | | |

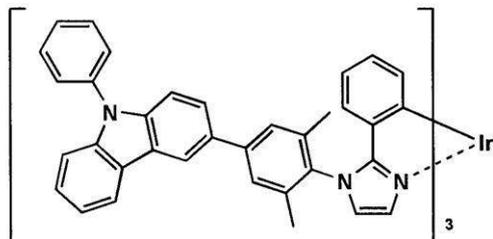
ドーパント 1



ドーパント 2



ドーパント 4



【 0 3 7 8 】

実施例 5

《白色の有機 E L 素子 5 - 1 の作製》

実施例 2 の透明電極基板上に、実施例 2 と同様に正孔輸送層 / 第 2 の正孔輸送層をスピ
ンコート法により形成し、更に発光層として、1 0 0 m g の化合物例 1 - 1、1 0 m g の
ドーパント 5 及び 0 . 1 m g のドーパント 3 を 1 0 m l のトルエンに溶解した溶液を 1 0
0 0 r p m、3 0 秒の条件下、スピコート法により製膜した。1 2 0 で 1 時間真空乾
燥し、膜厚約 5 0 n m の発光層とした。

【 0 3 7 9 】

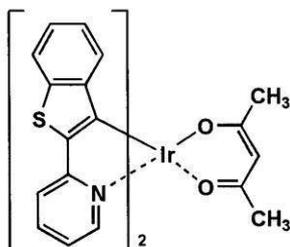
20

30

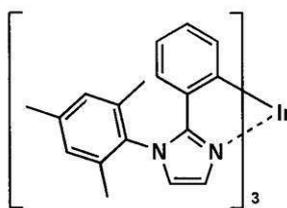
40

【化106】

ドーパント3



ドーパント5



10

【0380】

次いで、実施例2と同様に、電子輸送層及びフッ化リチウム層、アルミニウム陰極を形成し、白色発光有機EL素子5-1を作製した。得られた有機EL素子5-1を実施例2と同様にして封止した。

【0381】

この有機EL素子5-1に通電したところほぼ白色の光が得られ、照明装置として使用できることがわかった。尚、ホスト化合物を本発明に係る他の化合物に置き換えても同様に白色の発光が得られることが分かった。

20

【0382】

実施例6

《有機EL素子6-1の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製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。

【0383】

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

30

【0384】

この基板を窒素雰囲気下に移し、正孔輸送層上に、50mgの正孔輸送材料3と5mgの正孔輸送材料4とを10mlのトルエンに溶解した混合溶液を1500rpm、30秒の条件で正孔輸送層上にスピコーティングし、薄膜を形成した。更に180秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、膜厚約20nmの第2正孔輸送層とした。

【0385】

この第2正孔輸送層上に、100mgの比較化合物3と10mgの(162)を10mlのトルエンに溶解した溶液を用いて600rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。60℃で1時間真空乾燥し、膜厚約70nmの発光層とした。

40

【0386】

次にこの発光層上に、50mgの電子輸送材料3を10mlのヘキサフルオロイソプロパノール（HFIP）に溶解した溶液を用いて、2000rpm、30秒の条件でスピコート法により薄膜を形成した。更に60℃で1時間真空乾燥し、第1電子輸送層とした。

【0387】

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、モリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送材料2を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。真空槽を4×10⁻⁶

50

⁴ Paまで減圧した後、電子輸送材料2の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で前記第1電子輸送層の上に蒸着して、更に膜厚20 nmの第2電子輸送層を設けた。

【0388】

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6-1を作製した。

【0389】

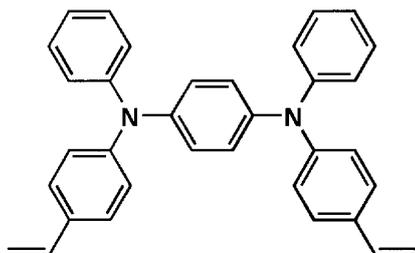
有機EL素子6-1の作製において、比較化合物3を化合物例1-2に置き換えた以外は有機EL素子6-1と同様にして有機EL素子6-2を作製した。

【0390】

【化107】

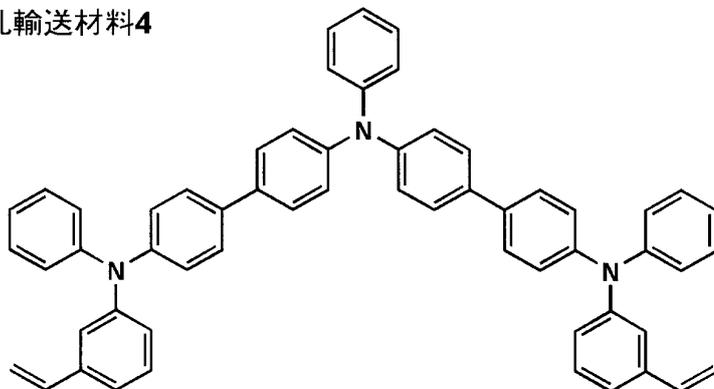
10

正孔輸送材料3



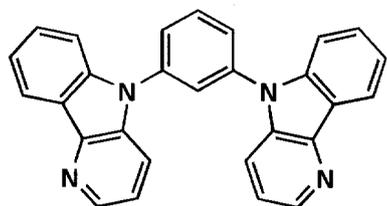
20

正孔輸送材料4



30

電子輸送材料3



40

【0391】

《有機EL素子6-1、6-2の評価》

得られた有機EL素子6-1及び6-2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 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2、図3に示すような照明装置を形成して評価した。

50

【0392】

図2は、照明装置の概略図を示し、有機EL素子201は、ガラスカバー202で覆われている。尚、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子201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。

【0393】

図3は、本発明の照明装置の一態様を示す断面図であり、図3において、205は陰極、206は有機EL層、207は透明電極付きガラス基板を示す。尚、ガラスカバー202内には窒素ガス208が充填され、捕水剤209が設けられている。

【0394】

次いで、下記のようにして外部取り出し量子効率及び発光寿命を測定した。

【0395】

（外部取りだし量子効率）

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。尚、測定には同様に分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタセンシング社製）を用いた。また、表4の外部取りだし量子効率の測定結果は、有機EL素子2-4の測定値を100としたときの相対値で表した。

【0396】

（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。尚、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社製）を用いた。また、表4の寿命の測定結果は、有機EL素子6-1を100とした時の相対値で表した。

【0397】

得られた結果を表4にしめす。

【0398】

【表4】

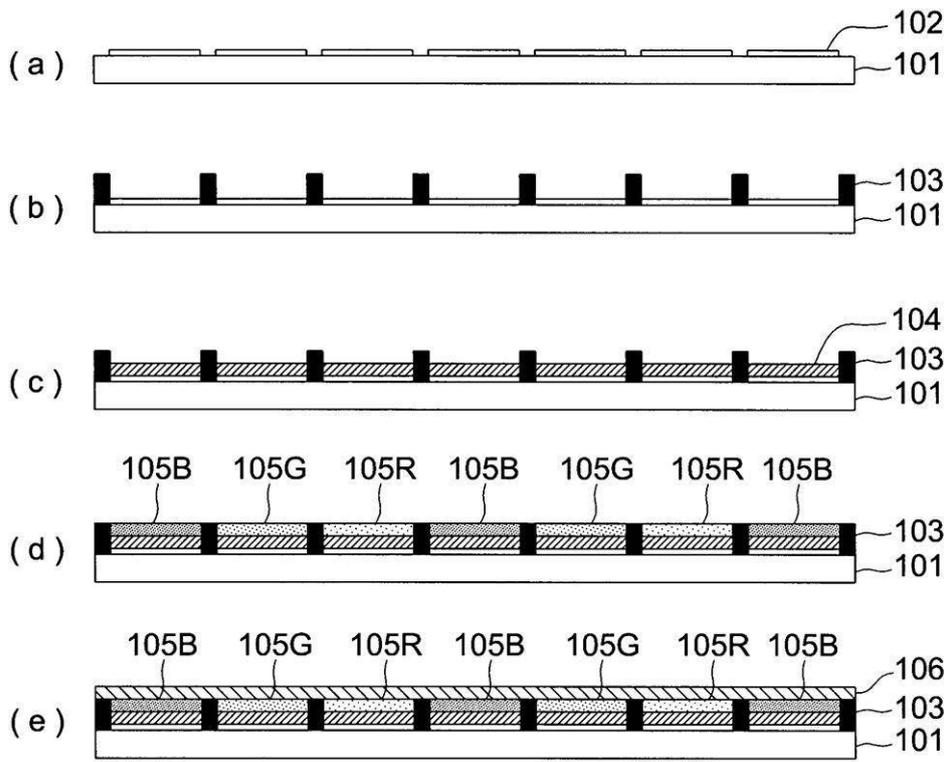
| 有機EL素子 | ホスト | 外部取り出し量子効率 | 寿命 | 備考 |
|--------|---------|------------|-----|-----|
| 6-1 | 比較化合物3 | 100 | 100 | 比較例 |
| 6-2 | 化合物例1-2 | 470 | 780 | 実施例 |

10

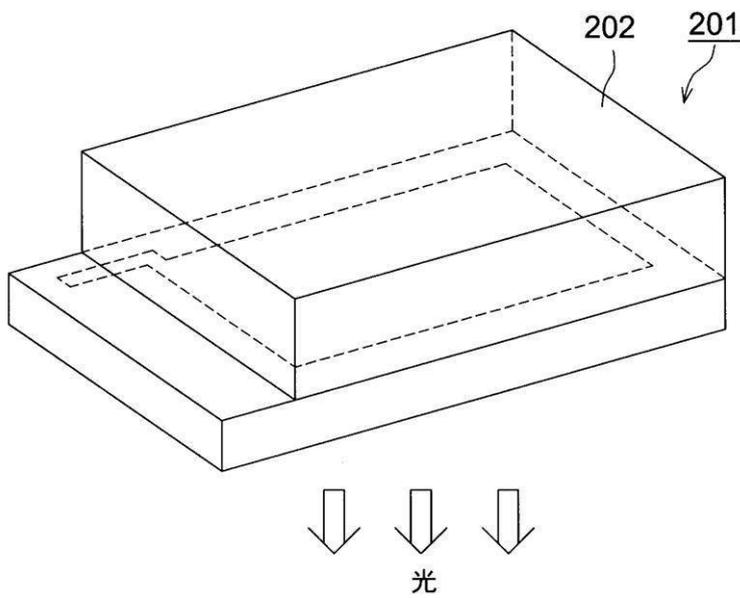
20

30

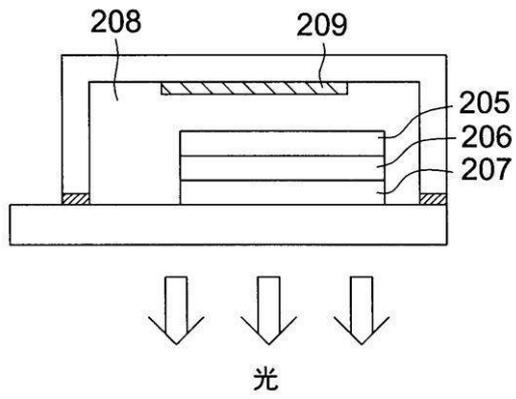
【図1】



【図2】



【 図 3 】



フロントページの続き

| | | | |
|----------------|-----------|----------------|-------|
| (51)Int.Cl. | | F I | |
| C 0 7 D 405/14 | (2006.01) | C 0 7 F 15/00 | E |
| C 0 7 D 519/00 | (2006.01) | C 0 7 D 209/86 | |
| C 0 7 D 409/14 | (2006.01) | C 0 7 D 405/14 | |
| | | C 0 7 D 519/00 | 3 1 1 |
| | | C 0 7 D 409/14 | |

審査官 越河 勉

(56)参考文献 特開2004-171808(JP,A)
 特開2007-180147(JP,A)
 特開2005-093159(JP,A)
 国際公開第2007/119816(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0
 C 0 9 K 1 1 / 0 6
 H 0 5 B 3 3 / 1 0
 C 0 7 D 2 0 9 / 8 6
 C 0 7 D 4 0 5 / 1 4
 C 0 7 D 4 0 9 / 1 4
 C 0 7 D 5 1 9 / 0 0
 C 0 7 F 1 5 / 0 0
 C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)