

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6642567号
(P6642567)

(45) 発行日 令和2年2月5日(2020.2.5)

(24) 登録日 令和2年1月8日(2020.1.8)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 L 51/50	(2006.01)	H O 5 B 33/14	B
H O 5 B 33/10	(2006.01)	H O 5 B 33/10	
C O 7 D 493/04	(2006.01)	C O 7 D 493/04	1 O 1 C
C O 7 D 487/04	(2006.01)	C O 7 D 487/04	1 3 6
C O 7 D 401/14	(2006.01)	C O 7 D 401/14	

請求項の数 10 (全 92 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2017-504955 (P2017-504955)
 (86) (22) 出願日 平成28年2月23日(2016.2.23)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2016/055258
 (87) 国際公開番号 W02016/143508
 (87) 国際公開日 平成28年9月15日(2016.9.15)
 審査請求日 平成30年12月25日(2018.12.25)
 (31) 優先権主張番号 特願2015-44648 (P2015-44648)
 (32) 優先日 平成27年3月6日(2015.3.6)
 (33) 優先権主張国・地域又は機関
 日本国(JP)

(73) 特許権者 000001270
 コニカミノルタ株式会社
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号
 (74) 代理人 110001254
 特許業務法人光陽国際特許事務所
 (72) 発明者 加羽澤 麻由香
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内
 (72) 発明者 関根 昇
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内
 (72) 発明者 中村 優太
 東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コ
 ニカミノルタ株式会社内

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、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法及び有機エレクトロルミネッセンス素子材料

(57) 【特許請求の範囲】

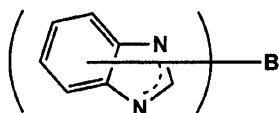
【請求項1】

少なくとも一対の陽極と陰極の間に発光層を含む有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機層が、下記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

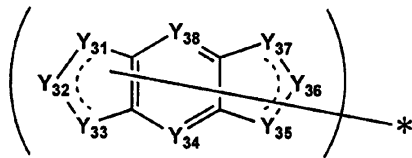
一般式(1)



(一般式(1)において、Bは下記一般式(3)、下記一般式(4)又は下記一般式(6)で表される縮合芳香族複素環を表す。一般式(1)で表される構造を有する化合物は、炭素数3以上の分岐アルキル基、シクロアルキル基、オルト位に置換基を有する炭素数6以上の芳香族炭化水素環基、オルト位に置換基を有する6員環以上の芳香族複素環基、置換基を有するアミノ基、置換基を有するシリル基、置換基を有するホスホリル基及び置換基を有するチオホスホリル基からなる群から選ばれる基を少なくとも一つ含む置換基A₁を少なくとも一つ以上有し、さらにその他の置換基A₂を有してもよい。)

【化2】

一般式(3)

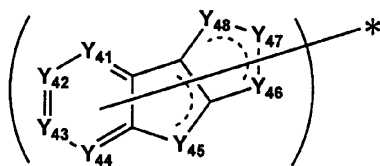


(一般式(3)において、 $Y_{31} \sim Y_{33}$ 及び $Y_{35} \sim Y_{37}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{34} 又は Y_{38} は、CH又はNを表す。また、 $Y_{31} \sim Y_{38}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

10

【化3】

一般式(4)

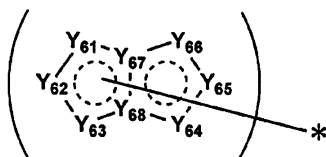


(一般式(4)において、 $Y_{41} \sim Y_{44}$ は、それぞれ独立にCH又はNを表す。 $Y_{45} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、 $Y_{41} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

20

【化4】

一般式(6)



(一般式(6)において、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{67} 及び Y_{68} は、それぞれ独立にCH又はNを表す。また、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

30

【請求項2】

前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、

前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、

前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、

40

前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、下記式(I)を満たすことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

式(I)：[置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

【請求項3】

前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 が、以下の置換基群から選択される基又はその組み合わせからなる置換基であることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

置換基群：

50

アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、シアノ基、シリル基、ホスホリル基

【請求項 4】

前記置換基 A_1 が、置換基を有するシリル基を含む置換基であることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記発光層が、前記一般式 (1) で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする請求項 1 から請求項 4 までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】

前記発光層が、リン光ドーパントとして、Ir 錯体を含有することを特徴とする請求項 5 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

前記発光層が、前記一般式 (1) で表される構造を有する化合物を含む 2 種以上のホスト化合物を含有することを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】

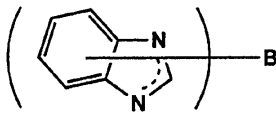
請求項 1 から請求項 7 までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、前記有機層をウェットプロセスで作製することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 9】

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

【化 5】

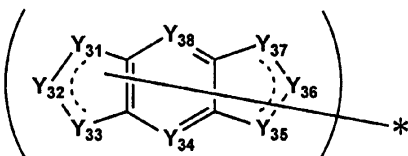
一般式(1)



(一般式 (1) において、B は下記一般式 (3)、下記一般式 (4) 又は下記一般式 (6) で表される縮合芳香族複素環を表す。一般式 (1) で表される構造を有する化合物は、炭素数 3 以上の分岐アルキル基、シクロアルキル基、オルト位に置換基を有する炭素数 6 以上の芳香族炭化水素環基、オルト位に置換基を有する 6 員環以上の芳香族複素環基、置換基を有するアミノ基、置換基を有するシリル基、置換基を有するホスホリル基及び置換基を有するチオホスホリル基からなる群から選ばれる基を少なくとも一つ含む置換基 A_1 を少なくとも一つ以上有し、さらにその他の置換基 A_2 を有してもよい。)

【化 6】

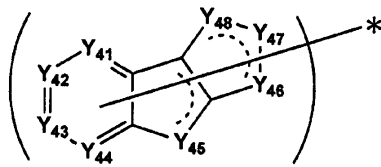
一般式(3)



(一般式 (3) において、 $Y_{31} \sim Y_{33}$ 及び $Y_{35} \sim Y_{37}$ は、それぞれ独立に O、S、N 又は CH を表し、N を表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{34} 又は Y_{38} は、CH 又は N を表す。また、 $Y_{31} \sim Y_{38}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、* は、一般式 (1) で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

【化7】

一般式(4)

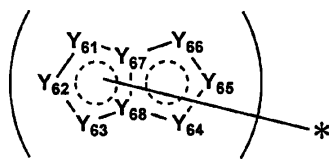


(一般式(4)において、 $Y_{41} \sim Y_{44}$ は、それぞれ独立にCH又はNを表す。 $Y_{45} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、 $Y_{41} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

10

【化8】

一般式(6)



(一般式(6)において、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{67} 及び Y_{68} は、それぞれ独立にCH又はNを表す。また、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

20

【請求項10】

前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、
前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、
前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、

前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、下記式(I)を満たす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材料。

30

式(I)：[置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

【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及び有機エレクトロルミネッセンス素子材料に関する。より詳細には、発光効率等の性能と安定性を両立する有機エレクトロルミネッセンス素子等に関する。

【背景技術】

40

【0002】

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。)は、陽極と陰極の間を、有機発光物質が含有された有機薄膜層(単層部又は多層部)で構成する薄膜型の全固体素子である。

有機EL素子に電圧を印加すると、有機薄膜層に陰極から電子が、陽極から正孔が注入され、これらが発光層(有機発光物質含有層)において再結合して励起子が生じる。有機EL素子はこれら励起子からの光の放出(蛍光・リン光)を利用した発光素子であり、次世代の平面ディスプレイや照明として期待されている技術である。

【0003】

さらに、蛍光発光を利用する有機EL素子に比べ、原理的に約4倍の発光効率の実現可

50

能である励起三重項からのリン光発光を利用する有機EL素子がプリンストン大学から報告されて以来、室温でリン光を示す材料の開発を始めとし、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。

このように、リン光発光方式は大変ポテンシャルの高い方式であるが、リン光発光を利用する有機ELデバイスにおいては、蛍光発光を利用するそれとは大きく異なり、発光中心の位置をコントロールする方法、とりわけ発光層の内部で再結合を行い、いかに発光を安定に行わせることができるかが、素子の効率・寿命を捕らえる上で重要となっている。

【0004】

そこで、発光層に隣接する形で、発光層の陽極側に位置する正孔輸送層や、発光層の陰極側に位置する電子輸送層等を備えた多層積層型の素子や、発光層にリン光発光性化合物とホスト化合物とを含有する混合層を用いる素子が開発されている。

10

一方、材料の観点からは高いキャリア輸送性や熱的、電氣的に安定な材料が求められている。特に青色リン光発光を利用するにあたっては、青色リン光発光性ドーパント自身が高い三重項励起エネルギー準位 (T_1) を有しているために、適用可能な周辺材料の開発と精密な発光中心の制御が強く求められている。

【0005】

青色リン光発光性ドーパントを用いた素子に適用可能な周辺材料の条件の一つとして、高い励起三重項エネルギー (T_1 エネルギー) が挙げられる。特に発光層や発光層に隣接する層に用いる場合は、リン光発光性ドーパントからの逆エネルギー移動を抑制するために、一般的にはリン光発光性ドーパントよりも高い T_1 エネルギーをもった材料が必要である。

20

例えば、リン光発光性ドーパントのホスト化合物としては、CBP、mCPに代表されるカルバゾール誘導体がよく知られている。また、青色リン光発光ドーパントとともに用いられる化合物としては、ジベンゾフラン骨格に複数のカルバゾール骨格が結合した化合物が知られている。しかしながら、これらの化合物は十分に高い T_1 エネルギーレベルを保持するに至っていない。

【0006】

これまでに、青色リン光発光性ドーパントを用いた素子にも適用可能な周辺材料として、ベンズイミダゾール骨格とベンゼン環やピリジン環とを組み合わせた構造を持つ化合物を使用することが知られている (例えば、特許文献1参照。)。また、ベンズイミダゾール骨格と縮合芳香族複素環を有した化合物をリン光発光性ドーパントのホスト化合物として使用することが知られている (例えば、特許文献2参照。)。しかしながら、ベンズイミダゾール骨格は特に5員環部分と、ベンズイミダゾール骨格に置換している基との立体障害が小さいため凝集しやすく、結晶化しやすいという問題があった。

30

【0007】

また、ジベンゾフラン等の縮合芳香族複素環にベンズイミダゾールが置換した化合物が知られている (例えば、特許文献3参照。)。これらの化合物は、ベンズイミダゾール部位と縮合芳香族複素環の同一平面性を阻害することで、電荷移動に必要な相互作用は保持しつつ、立体障害効果により化合物同士の凝集が抑制でき、さらには高い T_1 エネルギーレベルを保持することができる。

40

しかしながら、これらの化合物を用いた場合でも、ベンズイミダゾール骨格とその置換基の部分の同一平面性の阻害が不十分で、成膜した際に凝集したり、駆動時に結晶化してしまうという問題があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特開2007-258692号公報

【特許文献2】特開2011-148780号公報

【特許文献3】国際公開第2012/004765号

【発明の概要】

50

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、前記問題・状況に鑑みてなされたものであり、その解決課題は、発光効率が高く、低駆動電圧及び長寿命であり、かつ駆動時の電圧上昇が小さく、さらに経時安定性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子材料を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明者は、前記課題を解決すべく、前記問題の原因等について検討する過程において、有機層が下記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することで、発光効率が

10

高く、低駆動電圧及び長寿命であり、かつ駆動時の電圧上昇が小さく、さらに経時安定性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子が提供できることを見だし、本発明に至った。

本発明に係る前記課題は、以下の手段により解決される。

【0011】

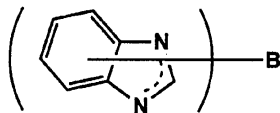
1. 少なくとも一対の陽極と陰極の間に発光層を含む有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機層が、下記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】

20

一般式(1)

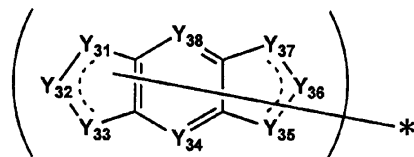


(一般式(1)において、Bは下記一般式(3)、下記一般式(4)又は下記一般式(6)で表される縮合芳香族複素環を表す。一般式(1)で表される構造を有する化合物は、炭素数3以上の分岐アルキル基、シクロアルキル基、オルト位に置換基を有する炭素数6以上の芳香族炭化水素環基、オルト位に置換基を有する6員環以上の芳香族複素環基、置換基を有するアミノ基、置換基を有するシリル基、置換基を有するホスホリル基及び置換基を有するチオホスホリル基からなる群から選ばれる基を少なくとも一つ含む置換基A₁を少なくとも一つ以上有し、さらにその他の置換基A₂を有してもよい。)

30

【化2】

一般式(3)

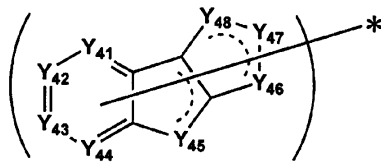


(一般式(3)において、Y₃₁~Y₃₃及びY₃₅~Y₃₇は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。Y₃₄又はY₃₈は、CH又はNを表す。また、Y₃₁~Y₃₈は、それぞれ独立に前記置換基A₁又は前記その他の置換基A₂を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

40

【化3】

一般式(4)

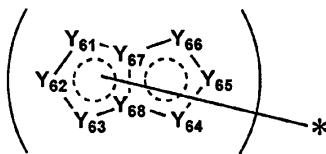


(一般式(4)において、 $Y_{41} \sim Y_{44}$ は、それぞれ独立にCH又はNを表す。 $Y_{45} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、 $Y_{41} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

10

【化4】

一般式(6)



(一般式(6)において、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{67} 及び Y_{68} は、それぞれ独立にCH又はNを表す。また、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

20

【0012】

2. 前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、
前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、
前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、

前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、下記式(I)を満たすことを特徴とする第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

式(I)：[置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

【0013】

3. 前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 が、以下の置換基群から選択される基又はその組み合わせからなる置換基であることを特徴とする第1項又は第2項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

置換基群：

アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、シアノ基、シリル基、ホスホリル基

40

【0019】

4. 前記置換基 A_1 が、置換基を有するシリル基を含む置換基であることを特徴とする第1項から第3項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0020】

5. 前記発光層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする第1項から第4項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0021】

6. 前記発光層が、リン光ドーパントとして、Ir錯体を含有することを特徴とする第5項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【 0 0 2 2 】

7. 前記発光層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含む2種以上のホスト化合物を含有することを特徴とする第6項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【 0 0 2 3 】

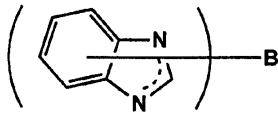
8. 第1項から第7項までのいずれか一項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、前記有機層をウェットプロセスで作製することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【 0 0 2 4 】

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

【化5】

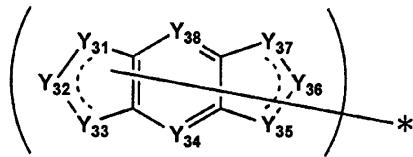
一般式(1)



(一般式(1)において、Bは下記一般式(3)、下記一般式(4)又は下記一般式(6)で表される縮合芳香族複素環を表す。一般式(1)で表される構造を有する化合物は、炭素数3以上の分岐アルキル基、シクロアルキル基、オルト位に置換基を有する炭素数6以上の芳香族炭化水素環基、オルト位に置換基を有する6員環以上の芳香族複素環基、置換基を有するアミノ基、置換基を有するシリル基、置換基を有するホスホリル基及び置換基を有するチオホスホリル基からなる群から選ばれる基を少なくとも一つ含む置換基A₁を少なくとも一つ以上有し、さらにその他の置換基A₂を有してもよい。)

【化6】

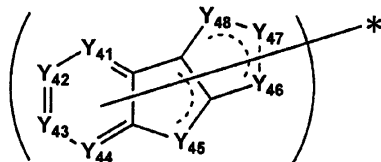
一般式(3)



(一般式(3)において、Y₃₁~Y₃₃及びY₃₅~Y₃₇は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。Y₃₄又はY₃₈は、CH又はNを表す。また、Y₃₁~Y₃₈は、それぞれ独立に前記置換基A₁又は前記その他の置換基A₂を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

【化7】

一般式(4)



(一般式(4)において、Y₄₁~Y₄₄は、それぞれ独立にCH又はNを表す。Y₄₅~Y₄₈は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、Y₄₁~Y₄₈は、それぞれ独立に前記置換基A₁又は前記その他の置換基A₂を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

10

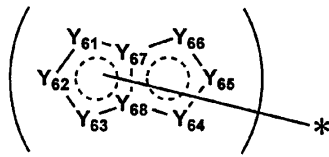
20

30

40

【化 8】

一般式(6)



(一般式(6)において、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{67} 及び Y_{68} は、それぞれ独立にCH又はNを表す。また、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。)

10

【0025】

10. 前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、
前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、
前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、

前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、下記式(I)を満たすことを特徴とする第9項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

式(I)：[置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

20

【発明の効果】

【0026】

本発明によれば、発光効率が高く、低駆動電圧及び長寿命であり、かつ駆動時の電圧上昇が小さく、さらに経時安定性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス素子材料を提供することができる。

【0027】

本発明の効果の発現機構又は作用機構については、明確になっていないが、以下のように推察している。

本発明者らは、縮合芳香族複素環にベンズイミダゾールが置換した化合物に、さらに立体障害性の大きい部位を導入し、青色リン光ドーパントと組み合わせて有機EL素子に適用することで、素子材料としての性能を劣化させることなく、化合物同士の相互作用が抑えられ、膜状態でも凝集が抑えられることを見いだした。

30

そこで、一般式(1)で表される構造を有する化合物を有機層に用いることにより、高い発光輝度と低駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の抑制、さらに発光寿命の長寿命化も同時に達成できることを見だし、本発明に至った。さらに、本発明化合物を用いて作製された有機EL素子は経時安定性の点でも改善された有機EL素子が得られることを見いだした。

【図面の簡単な説明】

【0028】

【図1】本発明に係る化合物の各部位のHOMO準位及びLUMO準位の関係性を示した模式図

40

【図2】有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図

【図3】図2における表示部Aの模式図

【図4】画素の模式図

【図5】パッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図

【図6】照明装置の概略図

【図7】照明装置の模式図

【図8A】有機ELフルカラー表示装置の概略構成図

【図8B】有機ELフルカラー表示装置の概略構成図

50

【図 8 C】有機 EL フルカラー表示装置の概略構成図

【図 8 D】有機 EL フルカラー表示装置の概略構成図

【図 8 E】有機 EL フルカラー表示装置の概略構成図

【発明を実施するための形態】

【0029】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、少なくとも一対の陽極と陰極の間に発光層を含む有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする。この特徴は、各請求項に係る発明に共通する技術的特徴である。

【0030】

本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B の HOMO 準位(以下、HOMO エネルギー準位ともいう。)が、 -5.87 eV 以下であり、前記 B の LUMO 準位(以下、LUMO エネルギー準位ともいう。)が、 -0.24 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 の HOMO 準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 の LUMO 準位が、前記式(I)を満たすことが好ましい。これにより、成膜した際にも高い T_1 エネルギーレベルを保持することが可能となるためである。

【0031】

本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 が、前記置換基群から選択される基又はその組み合わせからなる置換基であることが好ましい。

【0032】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B が、前記一般式(2)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0033】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B が、下記一般式(3)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0034】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B が、下記一般式(4)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0035】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B が、下記一般式(5)で表される、ベンズイミダゾールとは異なる縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0036】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記 B が、下記一般式(6)で表される縮合芳香族複素環であることが好ましい。

【0037】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記置換基 A_1 が、置換基を有するシリル基を含む置換基であることが好ましい。これにより、特に化合物の凝集を抑制することが可能となるためである。

【0038】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記発光層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することが好ましい。

【0039】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記発光層が、リン光ドーパントとして、Ir 錯体を含有することが好ましい。

【0040】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記発光層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含む2種以上のホスト化合物を含有するこ

10

20

30

40

50

とが好ましい。

【0041】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記有機層が、ウェットプロセスで作製されたことが好ましい。

【0042】

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子材料は、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする。

【0043】

また、本発明の実施態様としては、本発明の効果発現の観点から、前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、前記式(I)を満たすことが好ましい。

10

【0044】

以下、本発明とその構成要素及び本発明を実施するための形態・態様について詳細な説明をする。なお、「 \sim 」は、その前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む意味で使用する。

【0045】

《有機エレクトロルミネッセンス素子の構成層》

本発明の有機EL素子における代表的な素子構成としては、以下の構成を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

20

(1) 陽極/発光層/陰極

(2) 陽極/発光層/電子輸送層/陰極

(3) 陽極/正孔輸送層/発光層/陰極

(4) 陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極

(5) 陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極

(6) 陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極

(7) 陽極/正孔注入層/正孔輸送層/(電子阻止層)/発光層/(正孔阻止層)/電子輸送層/電子注入層/陰極

上記の中で(7)の構成が好ましく用いられるが、これに限定されるものではない。

30

【0046】

本発明に係る発光層は、単層又は複数層で構成されており、発光層が複数の場合は各発光層の間に非発光性の中間層を設けてもよい。

必要に応じて、発光層と陰極との間に正孔阻止層(正孔障壁層ともいう。)や電子注入層(陰極バッファ層ともいう。)を設けてもよく、また、発光層と陽極との間に電子阻止層(電子障壁層ともいう。)や正孔注入層(陽極バッファ層ともいう。)を設けてもよい。

【0047】

本発明に用いられる電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する層であり、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。また、複数層で構成されていてもよい。

40

本発明に用いられる正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する層であり、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。また、複数層で構成されていてもよい。

上記の代表的な素子構成において、陽極と陰極を除いた層を「有機層」とする。

【0048】

(タンデム構造)

また、本発明の有機EL素子は、少なくとも1層の発光層を含む発光ユニットを複数積層した、いわゆるタンデム構造の素子であってもよい。

タンデム構造の代表的な素子構成としては、例えば以下の構成を挙げることができる。

50

陽極 / 第 1 発光ユニット / 第 2 発光ユニット / 第 3 発光ユニット / 陰極

陽極 / 第 1 発光ユニット / 中間層 / 第 2 発光ユニット / 中間層 / 第 3 発光ユニット / 陰極

ここで、上記第 1 発光ユニット、第 2 発光ユニット及び第 3 発光ユニットは全て同じであっても、異なっていてよい。また、二つの発光ユニットが同じであり、残る一つが異なっていてよい。

【 0 0 4 9 】

また、第 3 発光ユニットはなくてもよく、一方で第 3 発光ユニットと電極の間にさらに発光ユニットや中間層を設けてもよい。

複数の発光ユニットは直接積層されていても、中間層を介して積層されていてもよく、中間層は、一般的に中間電極、中間導電層、電荷発生層、電子引抜層、接続層、中間絶縁層とも呼ばれ、陽極側の隣接層に電子を、陰極側の隣接層に正孔を供給する機能を持った層であれば、公知の材料及び構成を用いることができる。

【 0 0 5 0 】

中間層に用いられる材料としては、例えば、ITO (インジウム・スズ酸化物)、IZO (インジウム・亜鉛酸化物)、 ZnO_2 、TiN、ZrN、HfN、 TiO_x 、 VO_x 、CuI、InN、GaN、 $CuAlO_2$ 、 $CuGaO_2$ 、 $SrCu_2O_2$ 、 LaB_6 、 RuO_2 、Al 等の導電性無機化合物層や、 Au/Bi_2O_3 等の 2 層膜や、 $SnO_2/Ag/SnO_2$ 、 $ZnO/Ag/ZnO$ 、 $Bi_2O_3/Au/Bi_2O_3$ 、 $TiO_2/TiN/TiO_2$ 、 $TiO_2/ZrN/TiO_2$ 等の多層膜、また C_{60} 等のフラーレン類、オリゴチオフェン等の導電性有機物層、金属フタロシアニン類、無金属フタロシアニン類、金属ポルフィリン類、無金属ポルフィリン類等の導電性有機化合物層等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

【 0 0 5 1 】

発光ユニット内の好ましい構成としては、例えば上記の代表的な素子構成で挙げた (1) ~ (7) の構成から、陽極と陰極を除いたもの等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

タンデム型有機 EL 素子の具体例としては、例えば、米国特許第 6 3 3 7 4 9 2 号明細書、米国特許第 7 4 2 0 2 0 3 号明細書、米国特許第 7 4 7 3 9 2 3 号明細書、米国特許第 6 8 7 2 4 7 2 号明細書、米国特許第 6 1 0 7 7 3 4 号明細書、米国特許第 6 3 3 7 4 9 2 号明細書、国際公開第 2 0 0 5 / 0 0 9 0 8 7 号、特開 2 0 0 6 - 2 2 8 7 1 2 号公報、特開 2 0 0 6 - 2 4 7 9 1 号公報、特開 2 0 0 6 - 4 9 3 9 3 号公報、特開 2 0 0 6 - 4 9 3 9 4 号公報、特開 2 0 0 6 - 4 9 3 9 6 号公報、特開 2 0 1 1 - 9 6 6 7 9 号公報、特開 2 0 0 5 - 3 4 0 1 8 7 号公報、特許第 4 7 1 1 4 2 4 号公報、特許第 3 4 9 6 6 8 1 号公報、特許第 3 8 8 4 5 6 4 号公報、特許第 4 2 1 3 1 6 9 号公報、特開 2 0 1 0 - 1 9 2 7 1 9 号公報、特開 2 0 0 9 - 0 7 6 9 2 9 号公報、特開 2 0 0 8 - 0 7 8 4 1 4 号公報、特開 2 0 0 7 - 0 5 9 8 4 8 号公報、特開 2 0 0 3 - 2 7 2 8 6 0 号公報、特開 2 0 0 3 - 0 4 5 6 7 6 号公報、国際公開第 2 0 0 5 / 0 9 4 1 3 0 号等に記載の素子構成や構成材料等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

次に、有機層に含有される化合物を説明し、各層について説明する。

【 0 0 5 2 】

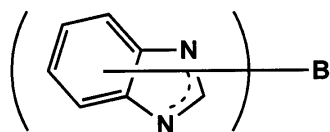
一般式 (1) で表される化合物

本発明に係る有機層は、下記一般式 (1) で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする。また、下記一般式 (1) で表される構造を有する化合物は有機エレクトロルミネッセンス素子材料に含有されていることが好ましい。

【 0 0 5 3 】

【化 8】

一般式(1)



【 0 0 5 4】

一般式(1)において、Bはベンズイミダゾールとは異なる縮合芳香族複素環を表す。一般式(1)で表される構造を有する化合物は、炭素数3以上の分岐アルキル基、シクロアルキル基、オルト位に置換基を有する炭素数6以上の芳香族炭化水素環基、オルト位に置換基を有する6員環以上の芳香族複素環基、置換基を有するアミノ基、置換基を有するシリル基、置換基を有するホスホリル基及び置換基を有するチオホスホリル基からなる群から選ばれる基を少なくとも一つ含む置換基A₁を少なくとも一つ以上有し、さらにその他の置換基A₂を有してもよい。

10

なお、前記6員環以上の芳香族複素環基、前記アミノ基、前記シリル基、前記ホスホリル基及び前記チオホスホリル基が有する置換基は、以下に示すその他の置換基A₂として使用することができる置換基から選択することができる。また、前記分岐アルキル基及び前記シクロアルキル基は、以下に示すその他の置換基A₂として使用することができる置換基を有してもよい。

20

また、置換基A₁は、その他の置換基A₂がさらに置換していてもよい。

なお、Bから構造式を貫く横線は一般式(1)で表される構造のうちいずれかの位置で置換する結合手を表す。以下の一般式(2)~(6)においても同様である。

【 0 0 5 5】

また、その他の置換基A₂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、プロパルギル基等)、芳香族炭化水素基(アリール基ともいい、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)、非芳香族複素環基(例えば、エポキシ環、アジリジン環、チラン環、オキサタン環、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、 β -カプロラクタム環、ペリリジン環、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-ジオキササン環、1,4-ジオキササン環、トリオキササン環、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-ジオキソシド環、ピラノース環、ジアザビシクロ[2,2,2]-オクタン環等)、芳香族複素環基(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)、ハロゲン原子(例えば、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、フッ素原子等)、ア

30

40

50

ルコキシル基（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）、シクロアルコキシル基（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）、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）、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）、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又はアリールスルホニル基（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、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、ジアリールアミノ基（例えば、ジフェニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基等）、ナフチルアミノ基、2 - ピリジルアミノ基等）、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、アルキルシリル基又はアリールシリル基（例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、(t)ブチルジメチルシリル基、トリスプロピルシリル基、(t)ブチルジフェニルシリル基、トリフェニルシリル基、トリナフチルシリル基、2 - ピリジルシリル基等）、アルキルホスフィノ基又はアリールホスフィノ基（ジメチルホスフィノ基、ジエチルホスフィノ基、ジシクロヘキシルホスフィノ基、メチルフェニルホスフィノ基、ジフェニルホスフィノ基、ジナフチルホスフィノ基、ジ(2 - ピリジル)ホスホスフィノ基）、アルキルホスホリル基又はアリールホスホリル基（ジメチルホスホリル基、ジエチルホスホリル基、ジシクロヘキシルホスホリル

10

20

30

40

50

基、メチルフェニルホスホリル基、ジフェニルホスホリル基、ジナフチルホスホリル基、ジ(2-ピリジル)ホスホリル基)、アルキルチオホスホリル基又はアリールチオホスホリル基(ジメチルチオホスホリル基、ジエチルチオホスホリル基、ジシクロヘキシルチオホスホリル基、メチルフェニルチオホスホリル基、ジフェニルチオホスホリル基、ジナフチルチオホスホリル基、ジ(2-ピリジル)チオホスホリル基)等が挙げられ、その他の置換基 A_2 を複数有する場合は、それぞれ独立に上記置換基を選択することができる。なおこれらの基は、さらに上記の置換基によって置換されていてもよいし、また、それらが互いに縮合してさらに環を形成してもよい。

【0056】

本発明において、一般式(1)で表される化合物はベンズイミダゾール骨格に縮合芳香族複素環であるBが置換した構造をもつことで、ベンズイミダゾール骨格と縮合環による立体障害性により同一平面性が阻害され化合物同士の凝集が抑制できる。また、Bが縮合芳香族複素環であるため、高い T_1 エネルギーレベルを保持することができる。さらに、置換基 A_1 が立体障害性の大きい置換基を含む基であることで、成膜した際の凝集も抑制することができる。また、溶解性の向上も可能となるため、ウェットプロセスによる生産適性を向上させることができる。

【0057】

また、前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、下記式(I)を満たすことが好ましい。

式(I): [置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

ここで、置換基のHOMO準位及びLUMO準位とは、「置換基由来化合物」のHOMO準位及びLUMO準位をいう。「置換基由来化合物」とは、当該置換基に水素原子を結合させて形成される化合物をいう。例えば、本発明に係る基であるBの場合は、B-Hが置換基由来化合物である。置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 の場合は、それぞれ、 A_1 -H及び A_2 -Hが置換基由来化合物である。

【0058】

前記B、置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 のHOMO準位及びLUMO準位を規定する理由を説明する。

立体障害性の大きい置換基 A_1 を用いても、成膜した際にはベンズイミダゾール骨格とその置換基の部分は多少の同一平面性が見られる場合がある。その場合、高い T_1 エネルギーレベルを保持するためには、HOMO部位とLUMO部位が別々の部位に局在化することが好ましい。

つまり、一般式(1)中のベンズイミダゾール骨格には、一般式(1)で表される構造を有する化合物のHOMO部位が局在化し、一般式(1)中のBにはLUMO部位が局在化することが好ましい。さらには置換基 A_1 及びその他の置換基 A_2 は、一般式(1)で表される構造を有する化合物の高い T_1 エネルギーレベルを保持するために、HOMO部位とLUMO部位に影響を与えない準位であることが好ましい。つまり、一般式(1)のB、置換基 A_1 、その他の置換基 A_2 のHOMO準位及びLUMO準位を規定の値の範囲とすることで、成膜した際にも高い T_1 エネルギーレベルを保持することが可能となる。

【0059】

一般式(1)で表される化合物のHOMO準位及びLUMO準位の値は、米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian98(Gaussian98, Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.)を用いて計算した時の値であり、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を行うことにより算出した値(eV単位換算値)と定義する。この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

10

20

30

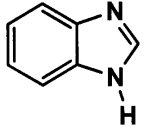
40

50

本発明において、各基のHOMO準位及びLUMO準位は、一般式(1)のベンズイミダゾール環又はBで表される基を水素原子に置き換えて求めた。例えば一般式(1)のイミダゾール環の場合は、Bを水素原子に置き換えた置換基由来化合物について、そのHOMO準位及びLUMO準位を計算すると、下記のような値が算出される。

【0060】

【表1】

置換基由来化合物 (構造式)	HOMO [eV]	LUMO [eV]
	-6.065	-0.340

10

【0061】

また、Bで表される縮合芳香環のHOMO準位及びLUMO準位を求める場合は、ベンズイミダゾール環を水素原子に置き換え、B-Hとして計算する。同様に置換基A₁もA₁-Hとして計算し、その他の置換基A₂もA₂-Hとして計算する。この値を基に、本発明におけるベンズイミダゾール骨格、B並びに置換基A₁又はその他の置換基A₂のそれぞれのHOMO準位及びLUMO準位の関係を図1に表した。

20

図1中、ベンズイミダゾール骨格のHOMO準位及びLUMO準位をそれぞれ「I-HOMO」及び「I-LUMO」と表した。また、Bで表される縮合芳香環のHOMO準位及びLUMO準位をそれぞれ「B-HOMO」及び「B-LUMO」と表した。さらに、置換基A₁又はその他の置換基A₂については、置換基A₁又はその他の置換基A₂のHOMO準位及びLUMO準位として、それぞれ「A₁, A₂-HOMO」及び「A₁, A₂-LUMO」と表した。

【0062】

BにLUMO部位を局在化させるためには、BのHOMO準位及びLUMO準位は、算出したベンズイミダゾール骨格のHOMO準位及びLUMO準位よりも小さいことが好ましい。ただし、ベンズイミダゾール骨格と同程度のHOMO準位及びLUMO準位であっても、ベンズイミダゾールにHOMO、BにLUMOが局在化されていれば本発明の機能を十分に果たす。

30

つまり、実際の分子を組んだ場合に生じる、置換基による電子状態の変化から生じる若干の差も考慮すると、BはHOMO準位が-5.87 eV以下で、かつLUMO準位が-0.24 eV以下となることが好ましい。

【0063】

一方で、置換基A₁及びその他の置換基A₂は、HOMO部位とLUMO部位に影響を与えないために、LUMO準位はLUMO部位であるBよりも大きく、HOMO準位はHOMO部位であるベンズイミダゾール骨格よりも小さいことが好ましい。ただし、Bと同程度のLUMO準位であっても、Bで表される縮合芳香族複素環にLUMOが局在化されていれば本発明の機能を十分に果たし、HOMO準位に関しても同様にベンズイミダゾール骨格にHOMOが局在化されていれば本発明で求められる機能を十分に果たす。

40

つまり、実際の分子を組んだ場合に生じる、置換基による電子状態の変化から生じる若干の差も考慮すると、置換基A₁及びその他の置換基A₂は、HOMO準位が-5.87 eV以下、LUMO準位は、下記式を満たすことが好ましい。

式(I): [置換基A₁及びその他の置換基A₂のLUMO準位] > [BのLUMO準位] - 0.2 eV

【0064】

このようにHOMO部位とLUMO部位を分離させることにより、膜でT₁エネルギー

50

レベルを保持できるだけでなく、プラスの電荷状態とマイナスの電荷状態とが共存した際に、ホスト分子の同部位でエネルギー失活が起こるのを防ぐことができる。これにより、失活時に起こる結合の伸縮や動きを抑えることができ、分子の安定性が向上し、寿命向上にもつながる。

【0065】

また、前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 が、以下の置換基群から選択される基又はその組み合わせからなる置換基であることが好ましい。

置換基群：

アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、非芳香族複素環基、芳香族複素環基、シアノ基、シリル基、ホスホリル基

10

また、置換基 A_1 は、これらの置換基のうち、置換基を有するシリル基を含む置換基であることが特に好ましい。

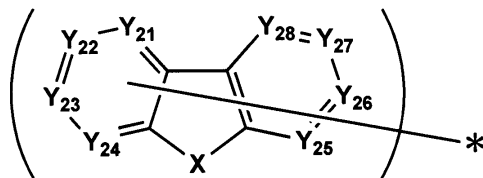
【0066】

また、前記 B が、下記一般式(2)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0067】

【化9】

一般式(2)



20

【0068】

一般式(2)において、XはO又はSを表す。Y₂₁ ~ Y₂₈は、それぞれ独立にCH又はNを表し、前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。なお、以下において*は、一般式(1)で表される構造を有する化合物における結合部位を表す。

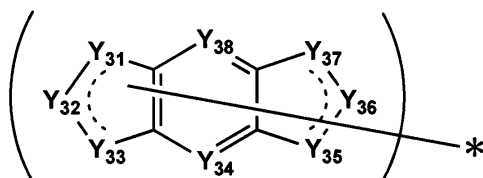
【0069】

また、前記 B が、下記一般式(3)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【0070】

【化10】

一般式(3)



40

【0071】

一般式(3)において、Y₃₁ ~ Y₃₃及びY₃₅ ~ Y₃₇は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。Y₃₄又はY₃₈は、CH又はNを表す。また、Y₃₁ ~ Y₃₈は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。

【0072】

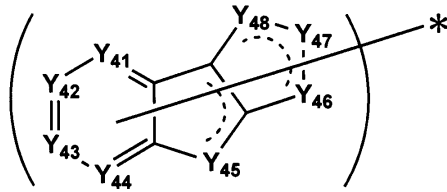
また、前記 B が、下記一般式(4)で表される縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

50

【 0 0 7 3 】

【 化 1 1 】

一般式(4)



10

【 0 0 7 4 】

一般式(4)において、 $Y_{41} \sim Y_{44}$ は、それぞれ独立にCH又はNを表す。 $Y_{45} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、 $Y_{41} \sim Y_{48}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。

【 0 0 7 5 】

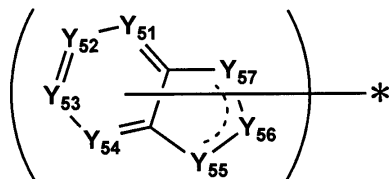
また、前記Bが、下記一般式(5)で表される、ベンズイミダゾールとは異なる縮合芳香族複素環基であることが好ましい。

【 0 0 7 6 】

【 化 1 2 】

20

一般式(5)



【 0 0 7 7 】

一般式(5)において、 $Y_{51} \sim Y_{54}$ は、それぞれ独立にCH又はNを表す。 $Y_{55} \sim Y_{57}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。また、 $Y_{51} \sim Y_{57}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換基 A_2 を有してもよい。

30

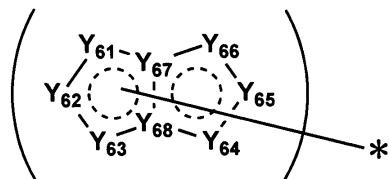
【 0 0 7 8 】

また、前記Bが、下記一般式(6)で表される縮合芳香族複素環であることが好ましい。

【 0 0 7 9 】

【 化 1 3 】

一般式(6)



40

【 0 0 8 0 】

$Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立にO、S、N又はCHを表し、Nを表す場合は水素原子、非共有電子対又は置換基を有する。 Y_{67} 及び Y_{68} は、それぞれ独立にCH又はNを表す。また、 $Y_{61} \sim Y_{66}$ は、それぞれ独立に前記置換基 A_1 又は前記その他の置換

50

基 A₂ を有してもよい。

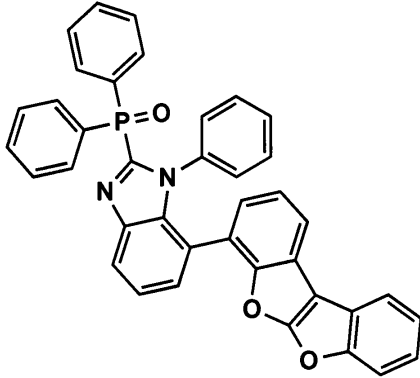
【 0 0 8 1 】

以下、本発明に係る一般式 (1) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

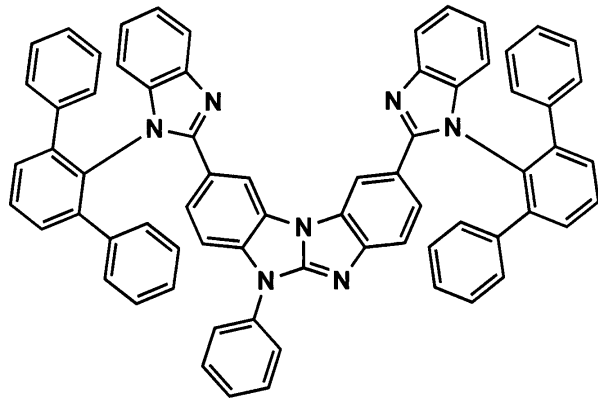
【 0 0 8 2 】

【 化 1 4 】

H1-1

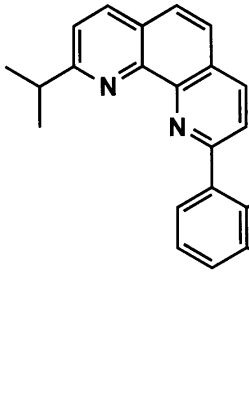


H1-2

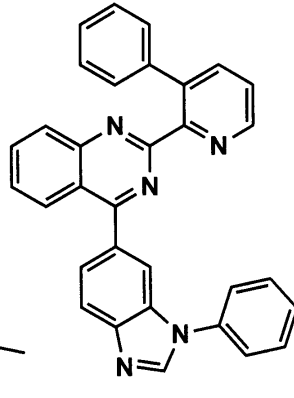


10

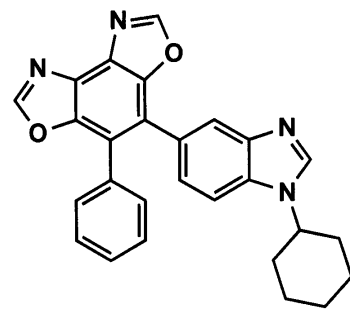
H1-3



H1-4

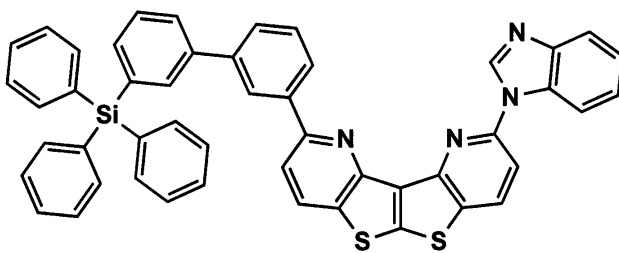


H1-5

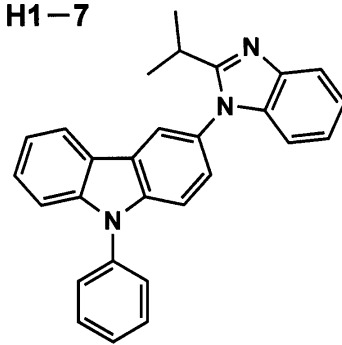


20

H1-6

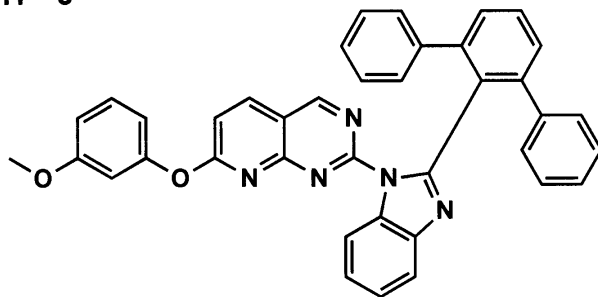


H1-7

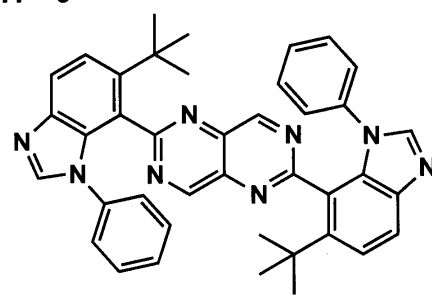


30

H1-8



H1-9

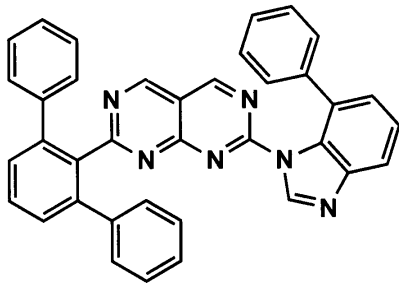


40

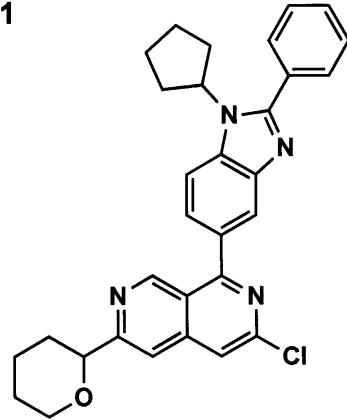
【 0 0 8 3 】

【化 1 5】

H1-10

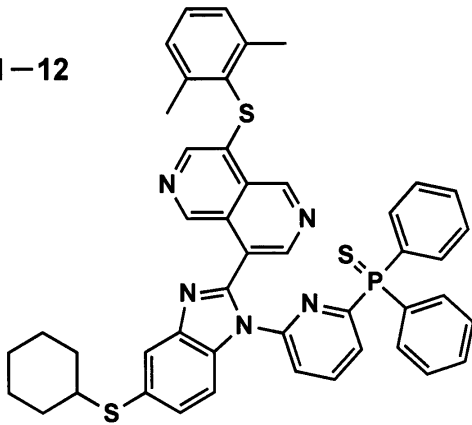


H1-11

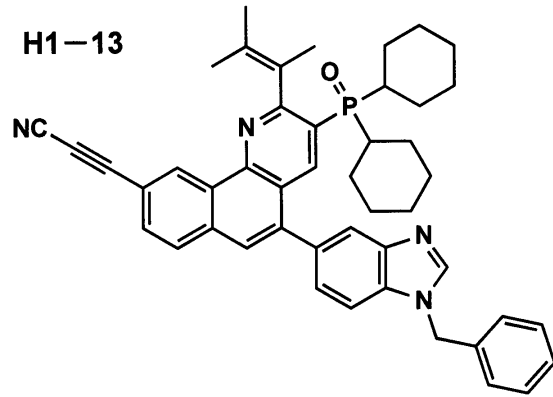


10

H1-12

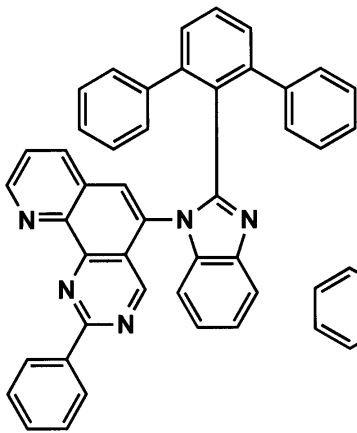


H1-13

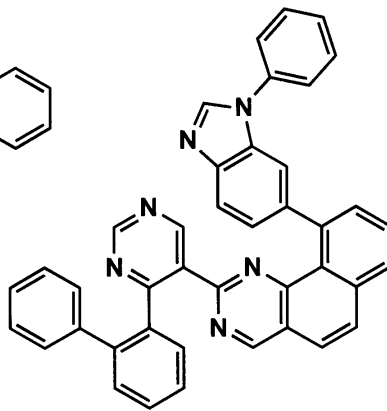


20

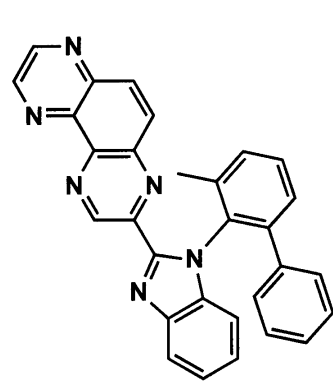
H1-14



H1-15

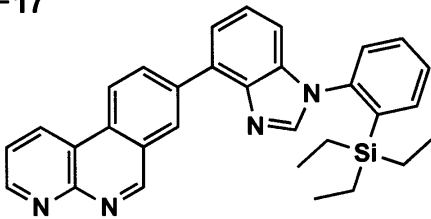


H1-16

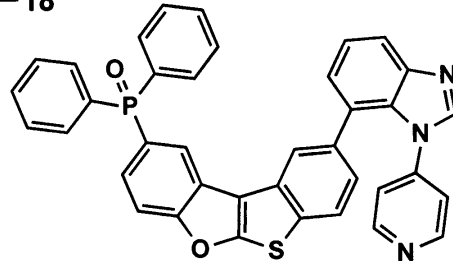


30

H1-17



H1-18

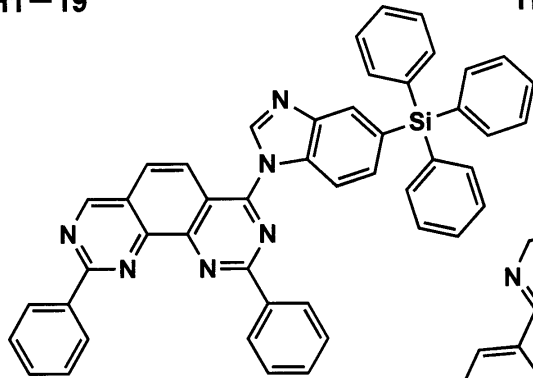


40

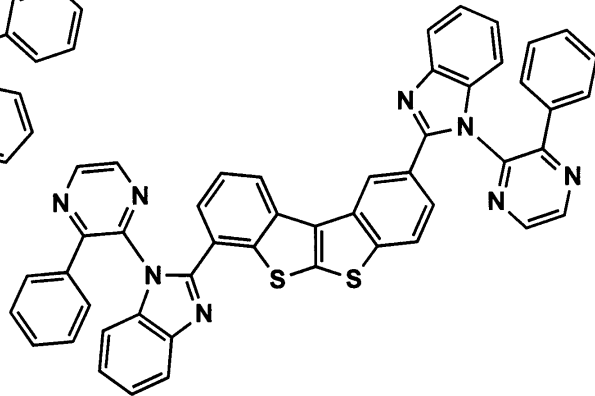
【 0 0 8 4 】

【化 1 6】

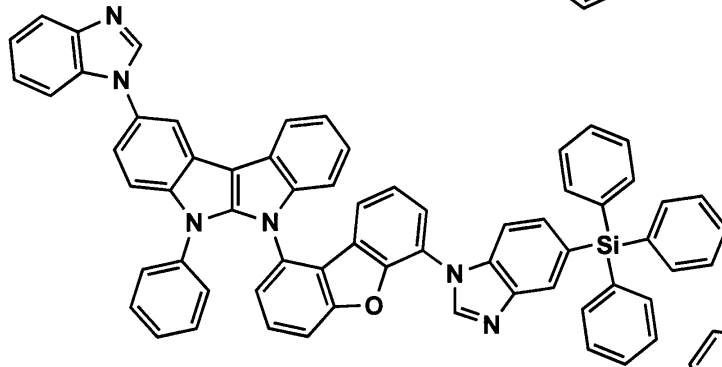
H1-19



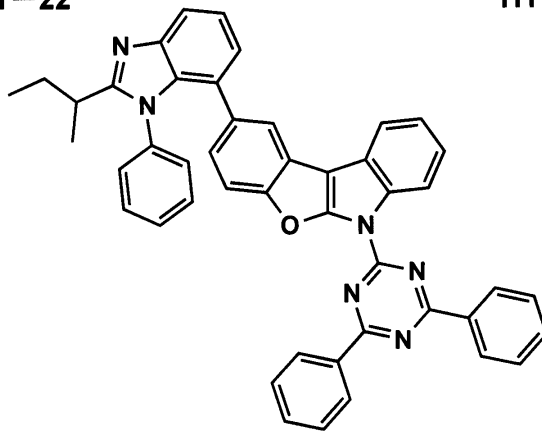
H1-20



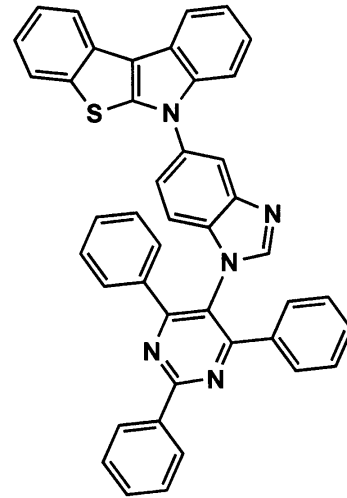
H1-21



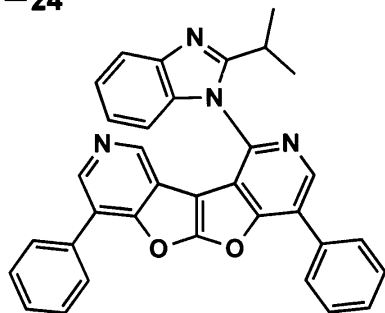
H1-22



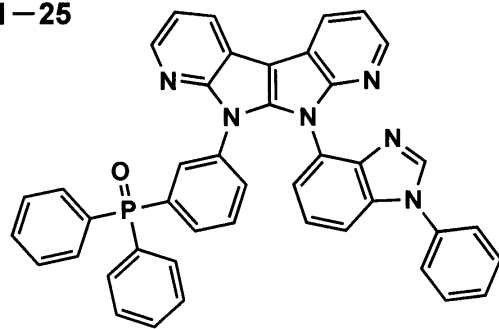
H1-23



H1-24



H1-25



10

20

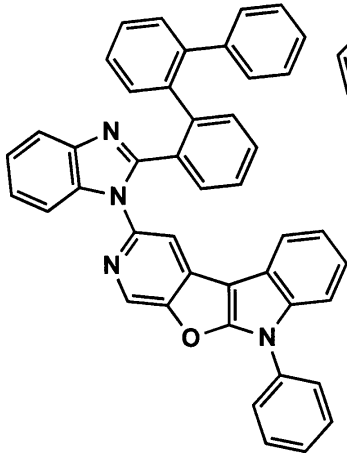
30

40

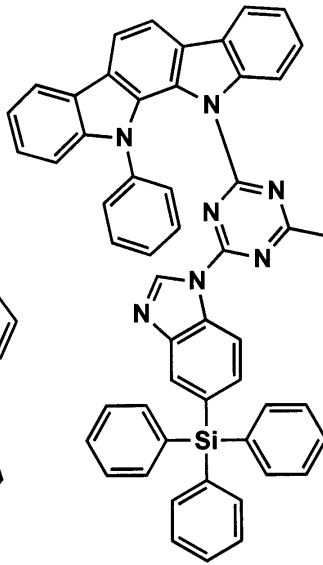
【 0 0 8 5 】

【化 17】

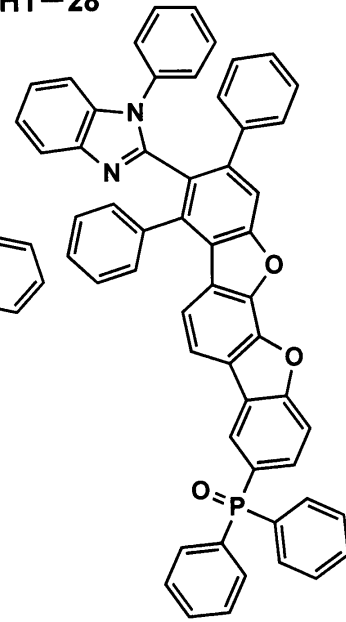
H1-26



H1-27

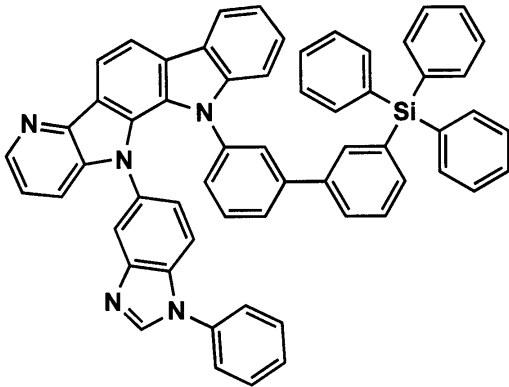


H1-28

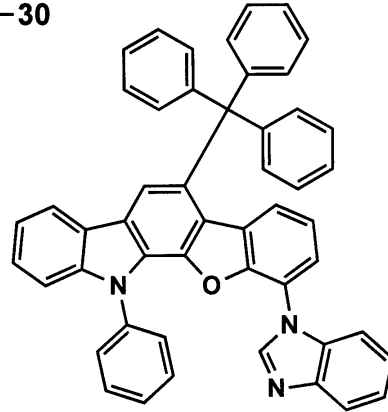


10

H1-29

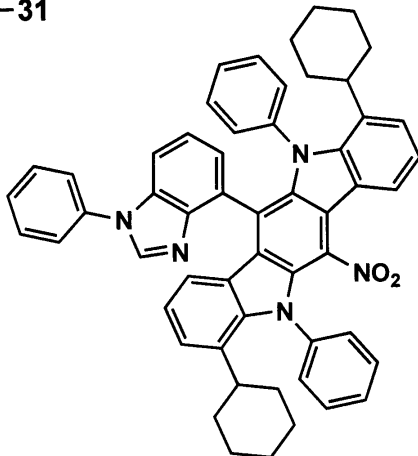


H1-30

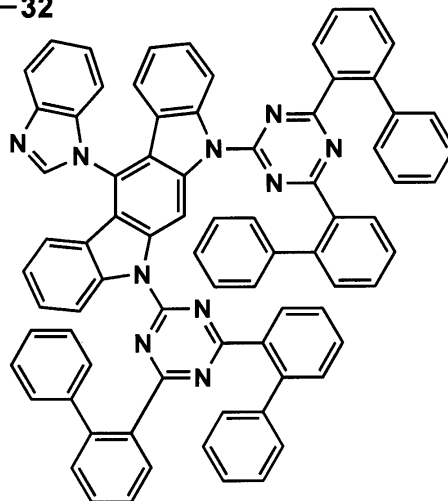


20

H1-31



H1-32



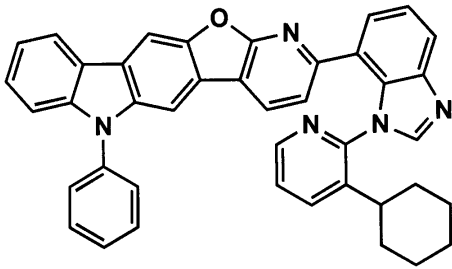
30

40

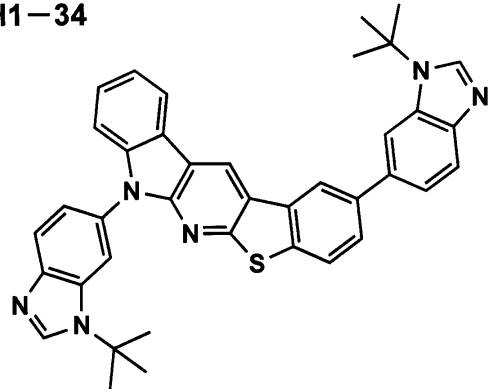
【0086】

【化 1 8】

H1-33

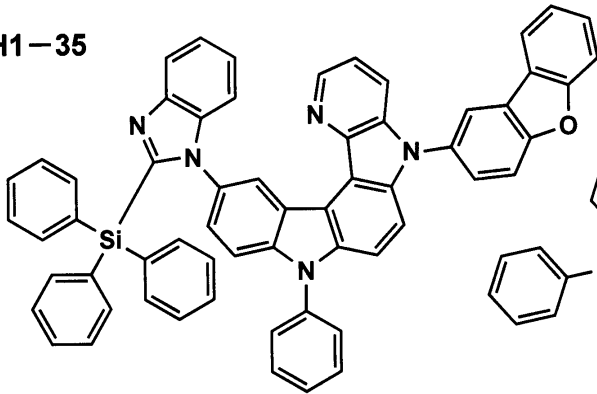


H1-34

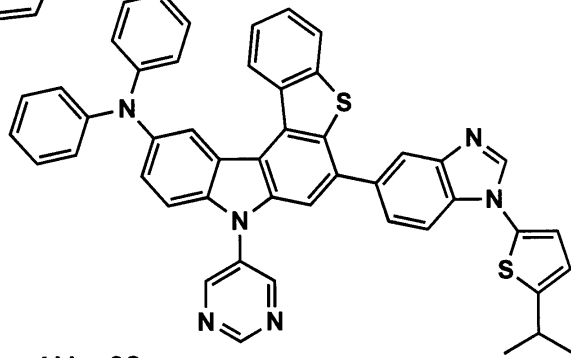


10

H1-35

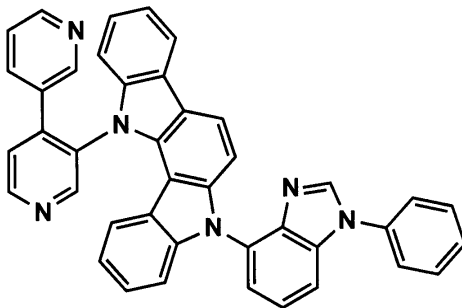


H1-36

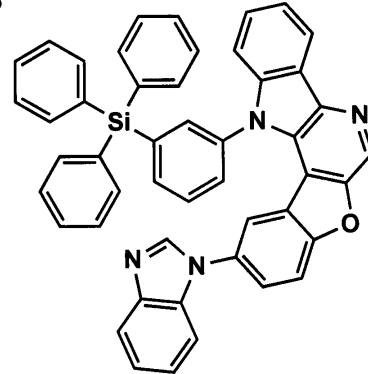


20

H1-37

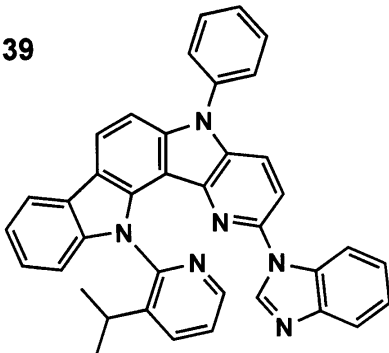


H1-38

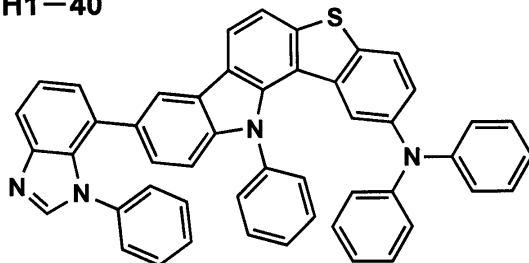


30

H1-39



H1-40

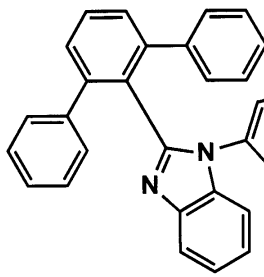


40

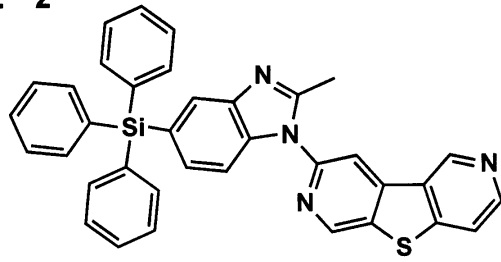
【 0 0 8 7 】

【化 19】

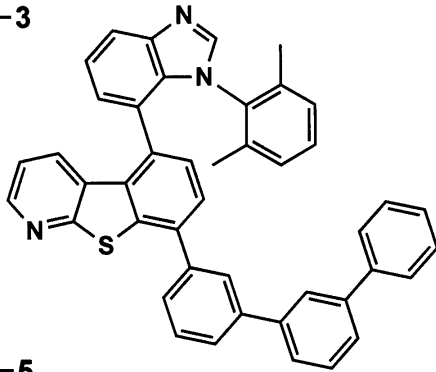
H2-1



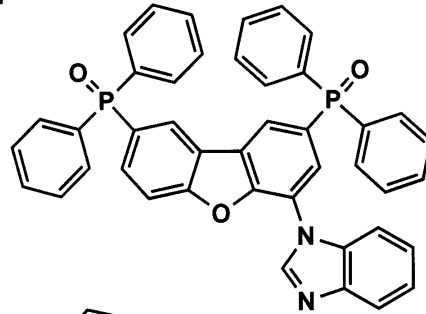
H2-2



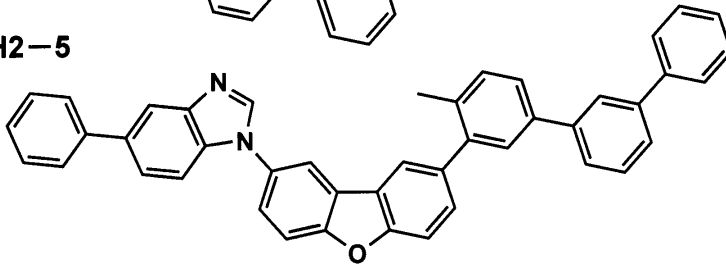
H2-3



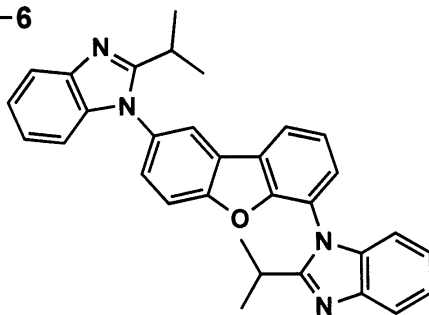
H2-4



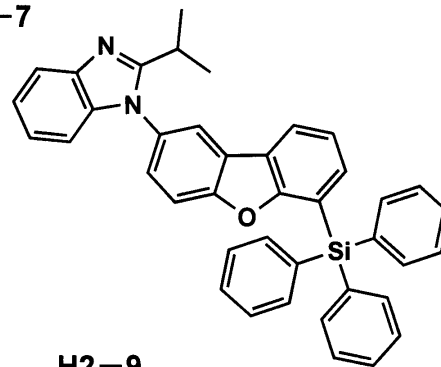
H2-5



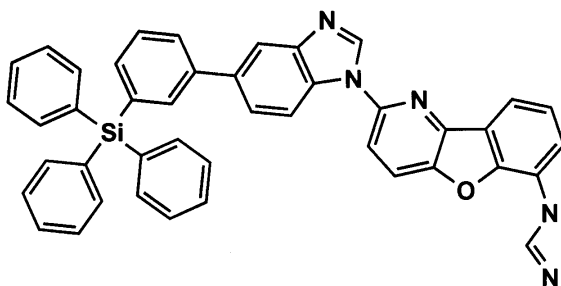
H2-6



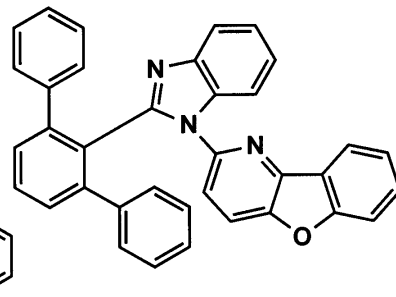
H2-7



H2-8



H2-9



【 0 0 8 8 】

10

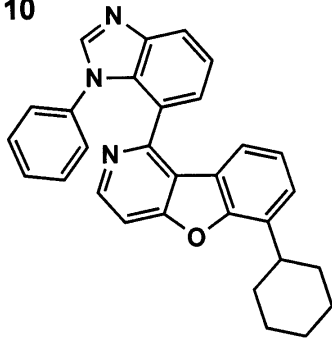
20

30

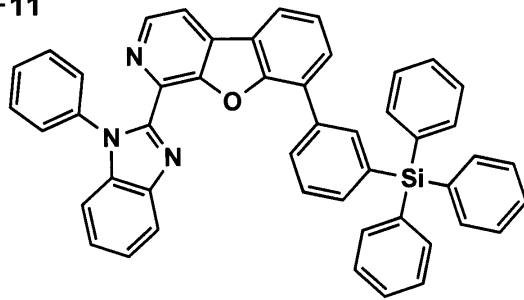
40

【化 20】

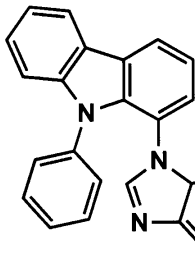
H2-10



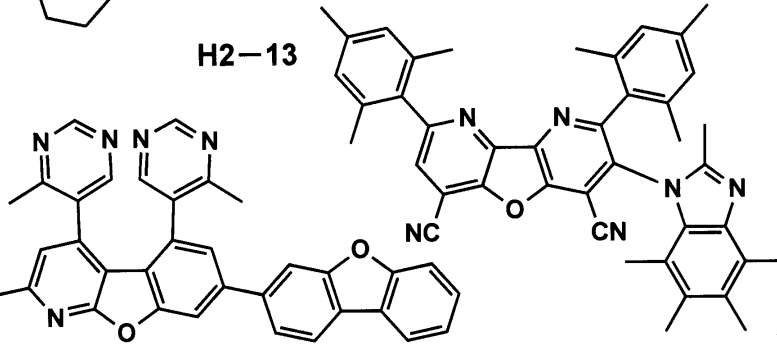
H2-11



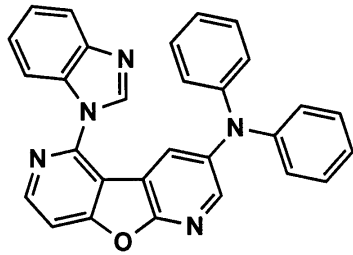
H2-12



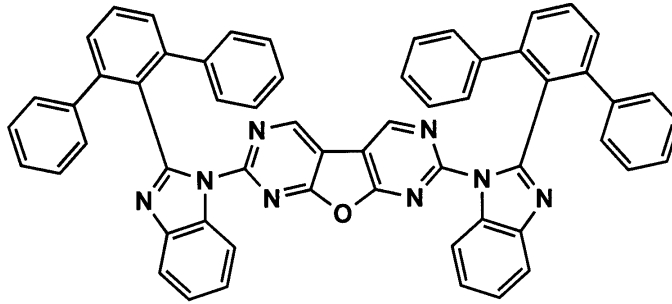
H2-13



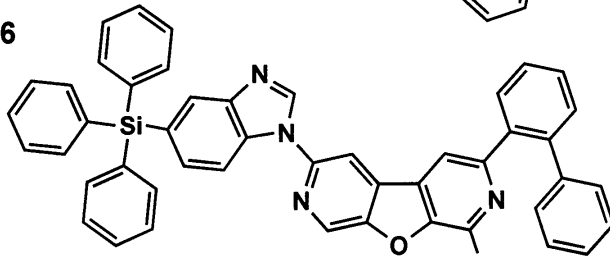
H2-14



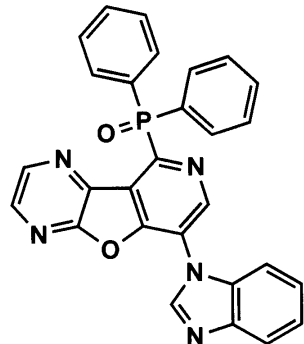
H2-15



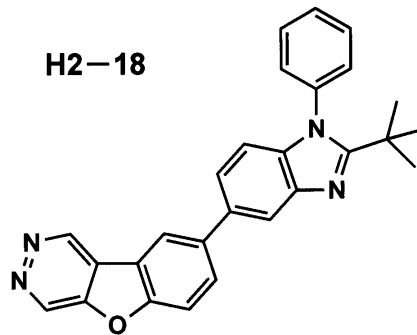
H2-16



H2-17



H2-18



10

20

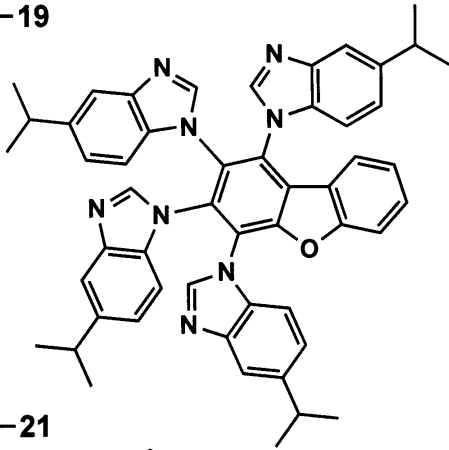
30

40

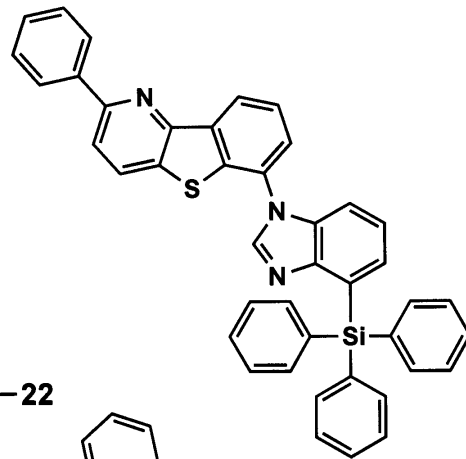
【0089】

【化 2 1】

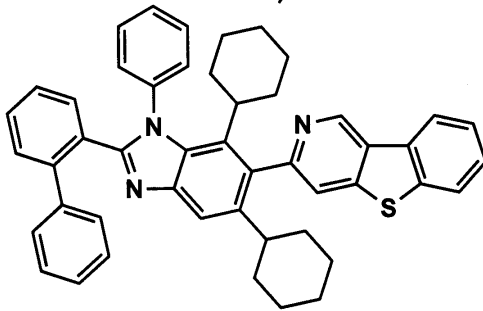
H2-19



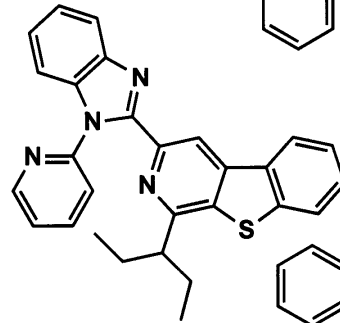
H2-20



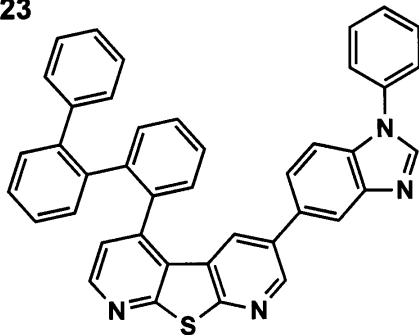
H2-21



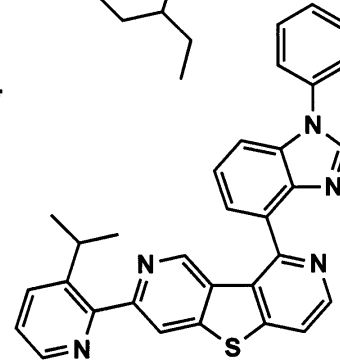
H2-22



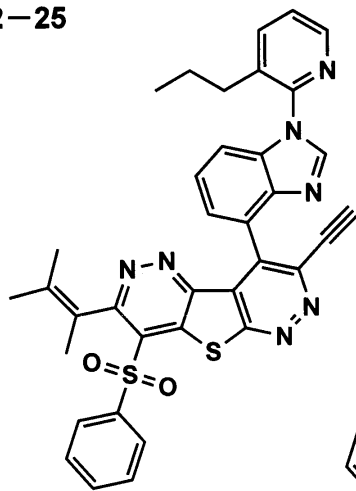
H2-23



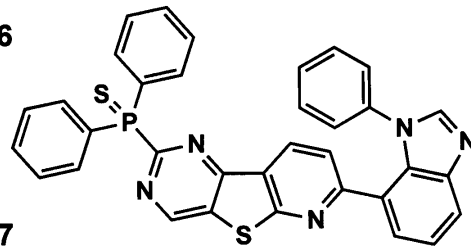
H2-24



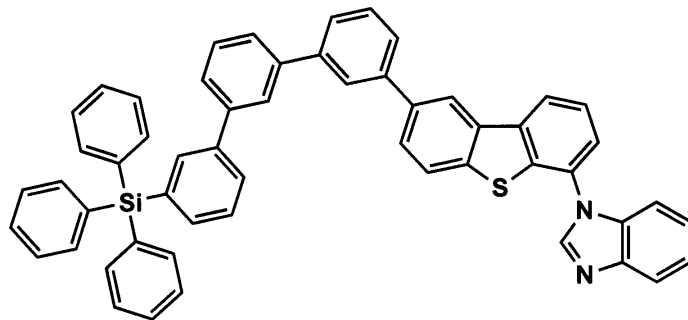
H2-25



H2-26



H2-27



10

20

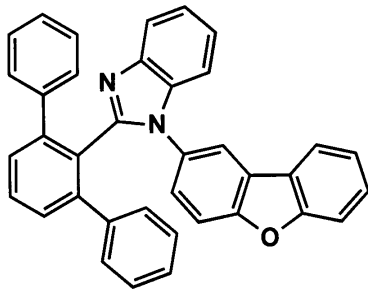
30

40

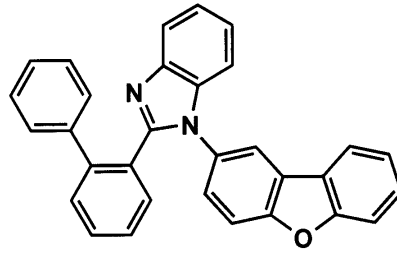
【 0 0 9 0 】

【化 2 2】

H2-28

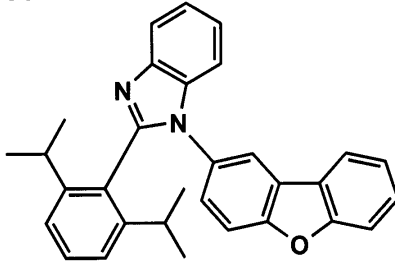


H2-29

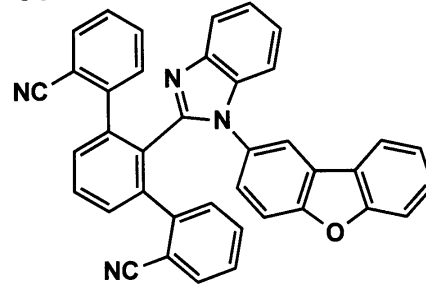


10

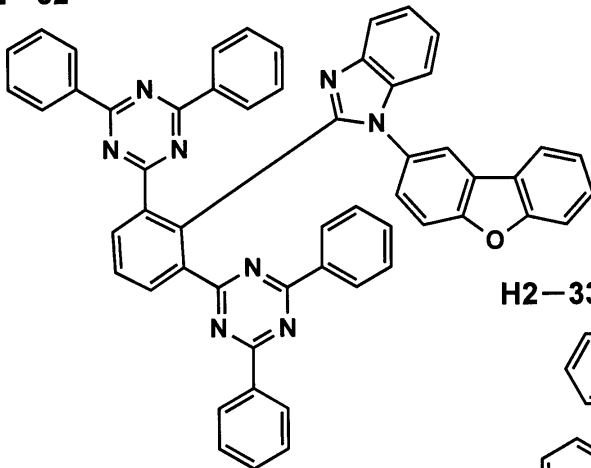
H2-30



H2-31

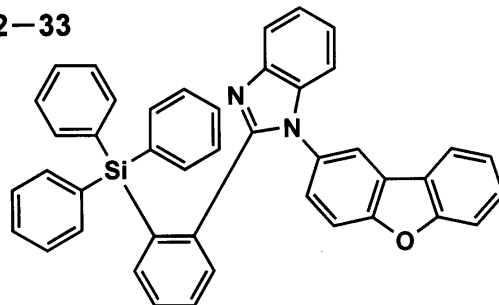


H2-32



20

H2-33

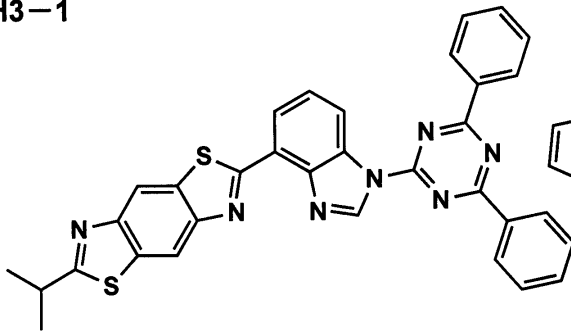


30

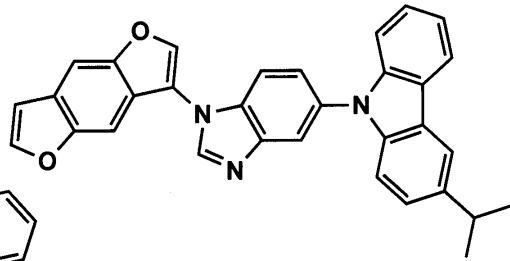
【 0 0 9 1 】

【化 2 3】

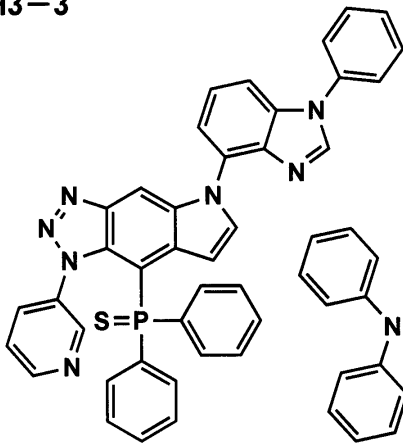
H3-1



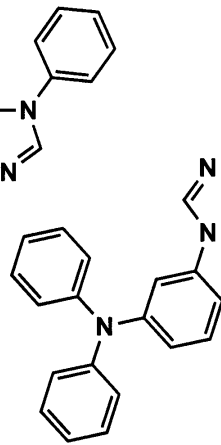
H3-2



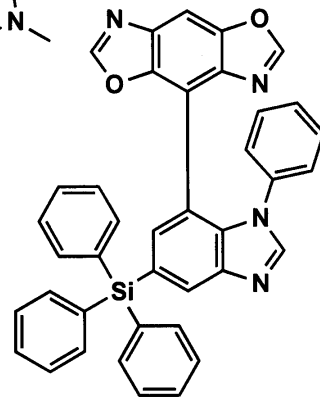
H3-3



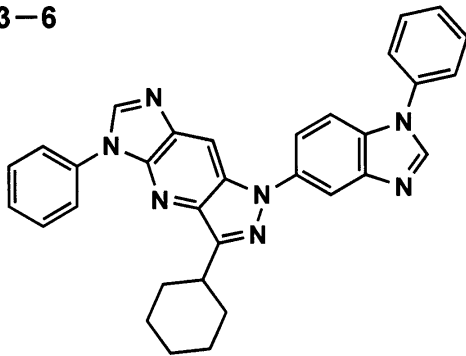
H3-4



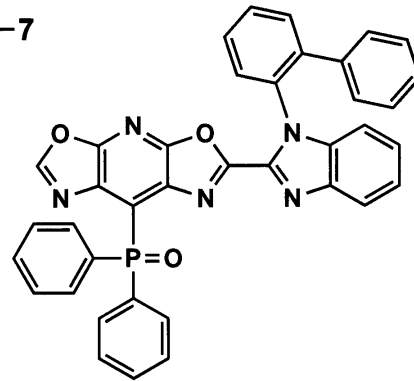
H3-5



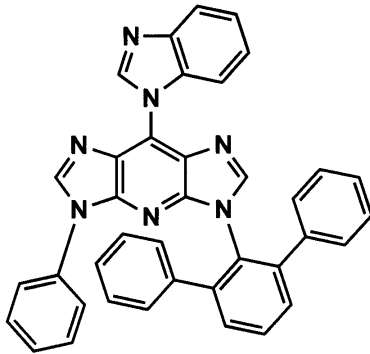
H3-6



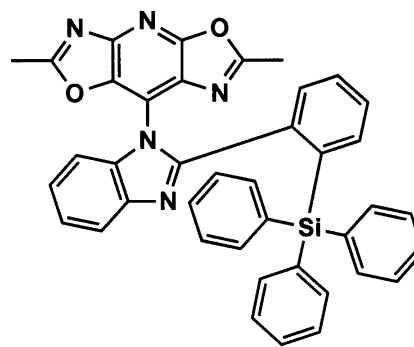
H3-7



H3-8



H3-9



10

20

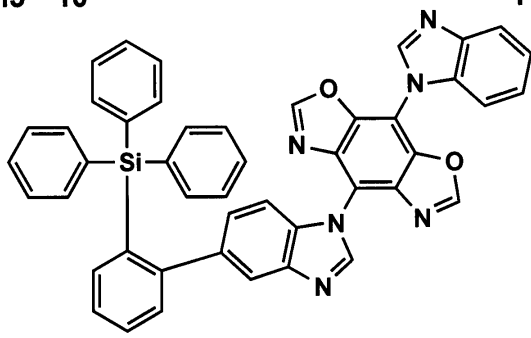
30

40

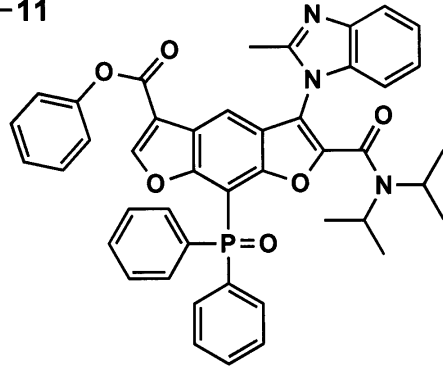
【 0 0 9 2】

【化 2 4】

H3-10

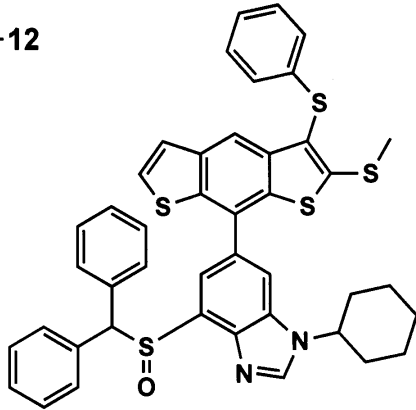


H3-11

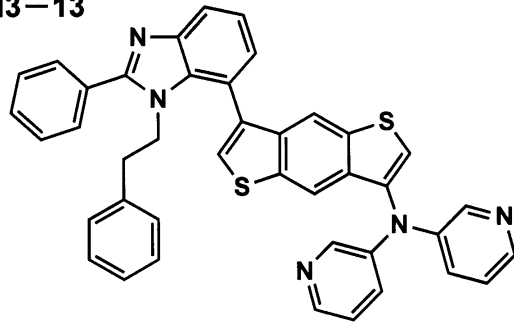


10

H3-12

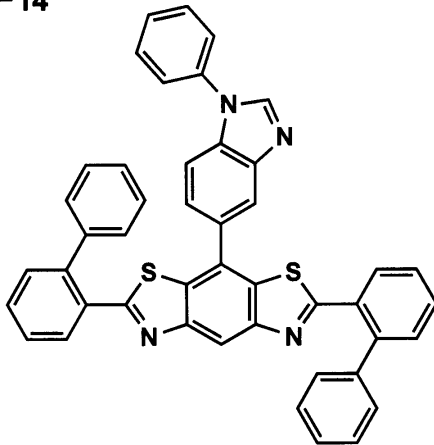


H3-13

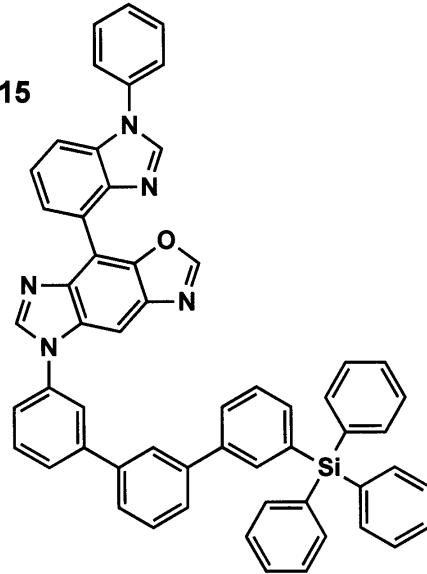


20

H3-14

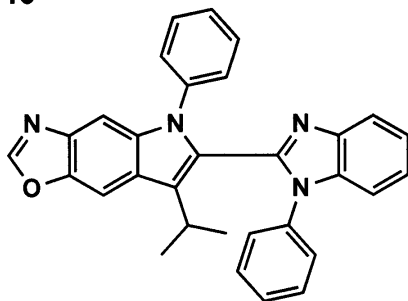


H3-15

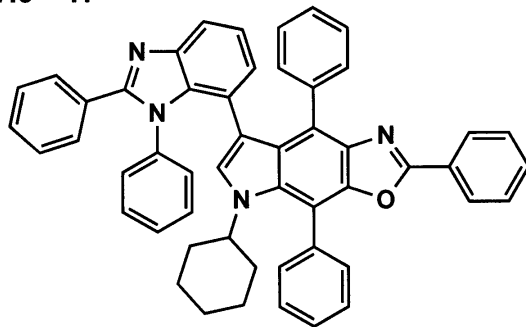


30

H3-16



H3-17

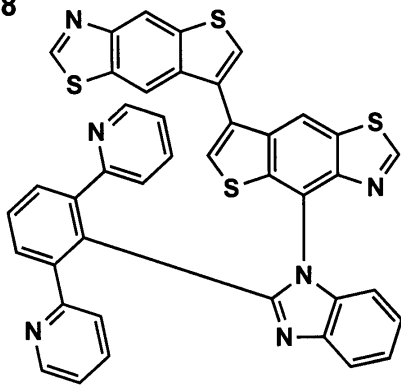


40

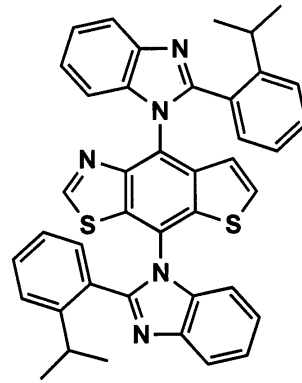
【 0 0 9 3】

【化 2 5】

H3-18

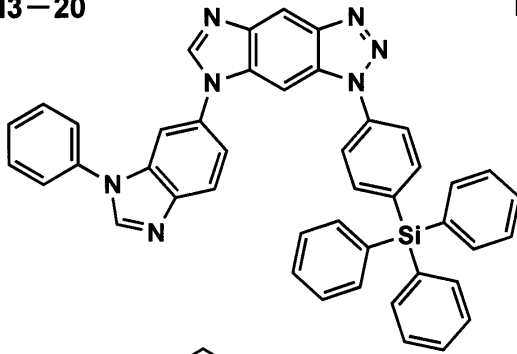


H3-19

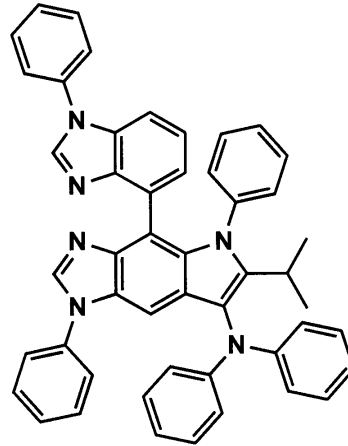


10

H3-20

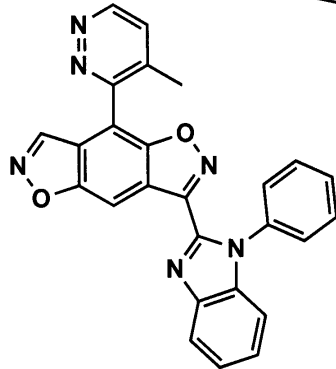


H3-21

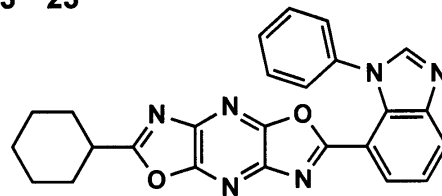


20

H3-22

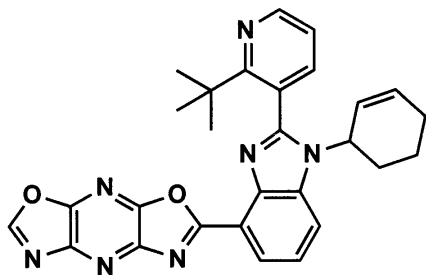


H3-23

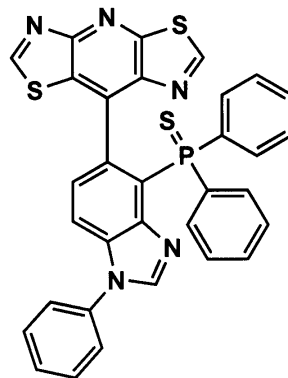


30

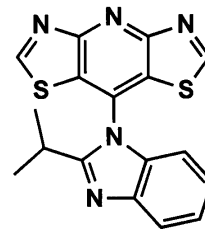
H3-24



H3-25



H3-26

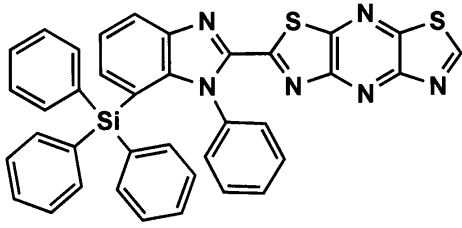


40

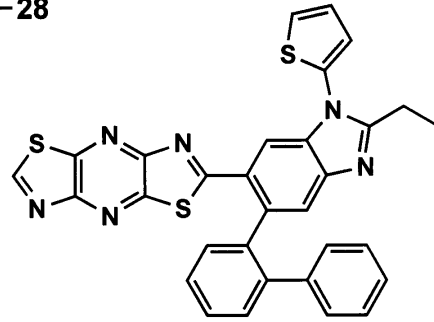
【 0 0 9 4】

【化 2 6】

H3-27

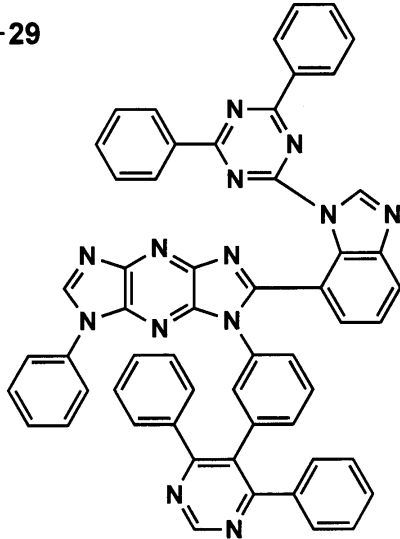


H3-28

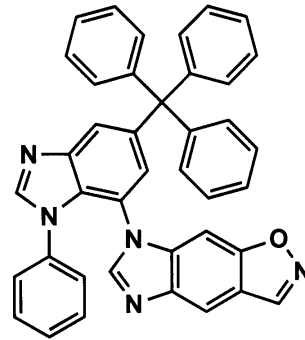


10

H3-29

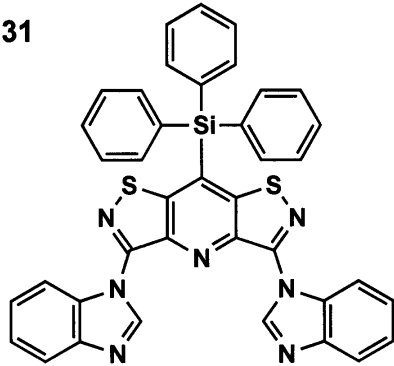


H3-30

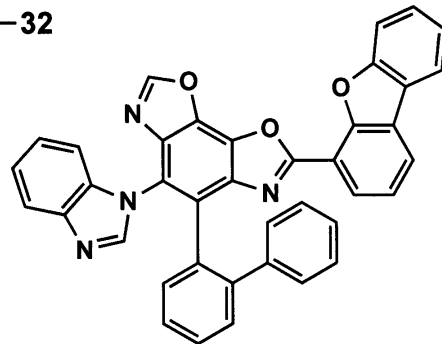


20

H3-31

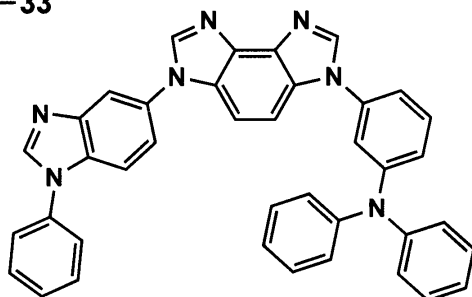


H3-32

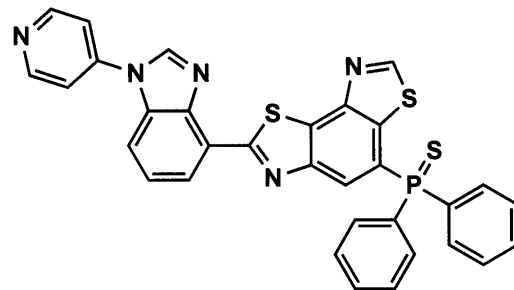


30

H3-33



H3-34

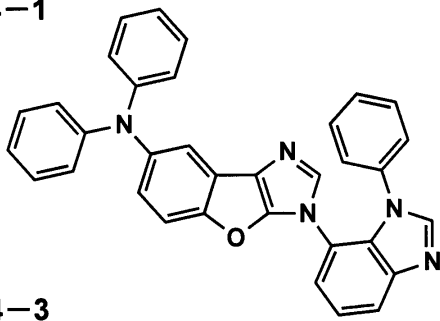


40

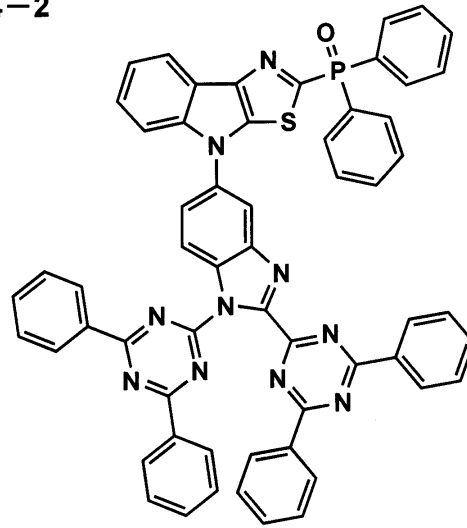
【 0 0 9 5 】

【化 27】

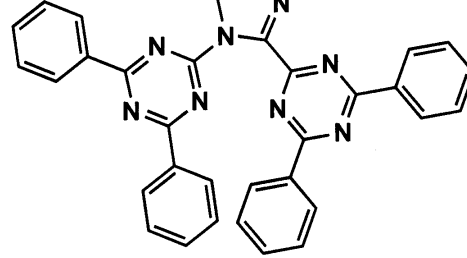
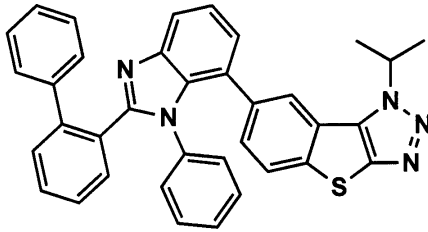
H4-1



H4-2

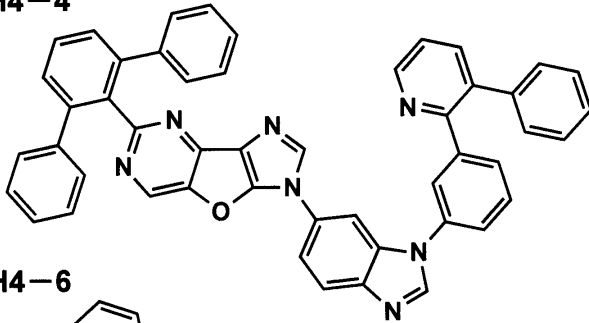


H4-3

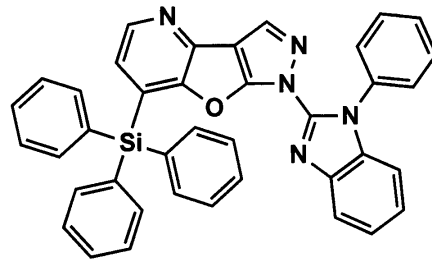


10

H4-4

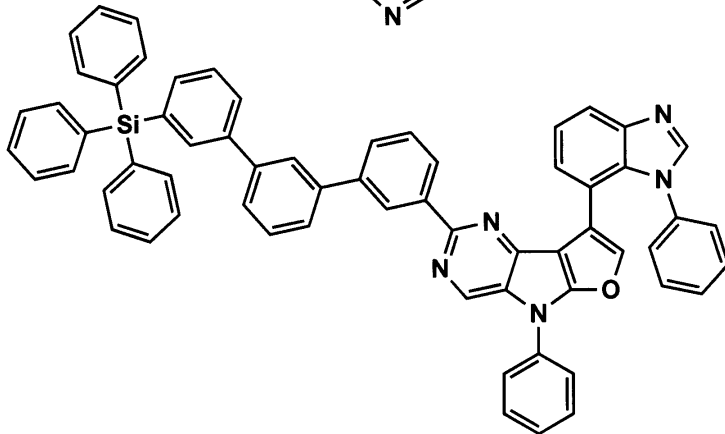


H4-5



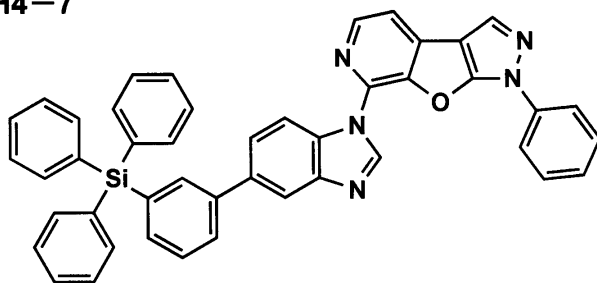
20

H4-6

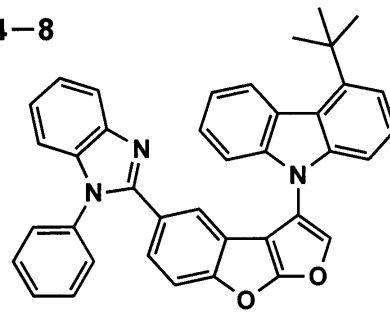


30

H4-7



H4-8

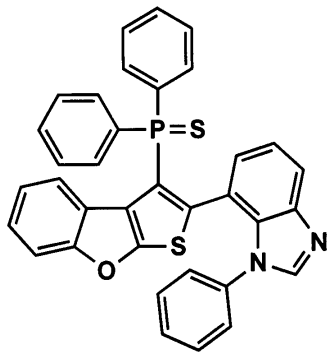


40

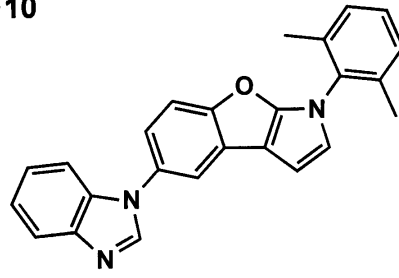
【0096】

【化 2 8】

H4-9

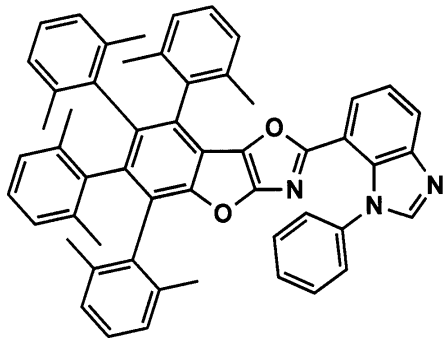


H4-10

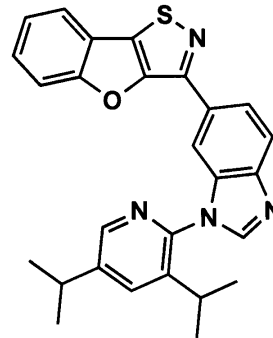


10

H4-11

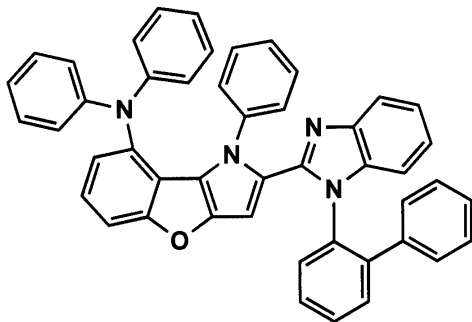


H4-12

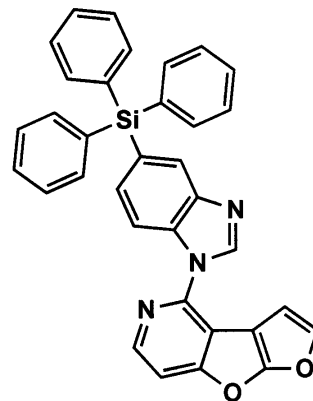


20

H4-13

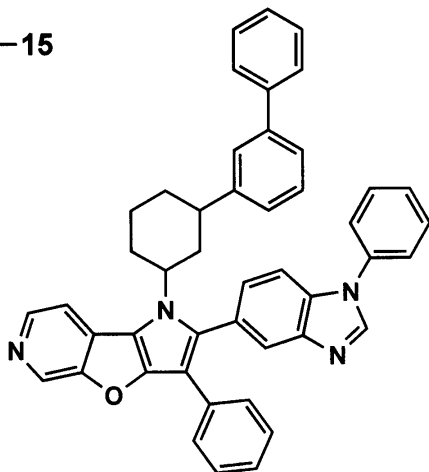


H4-14

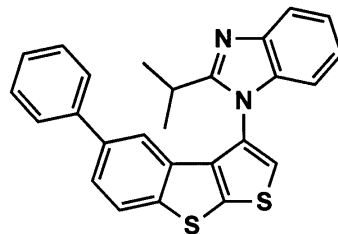


30

H4-15



H4-16

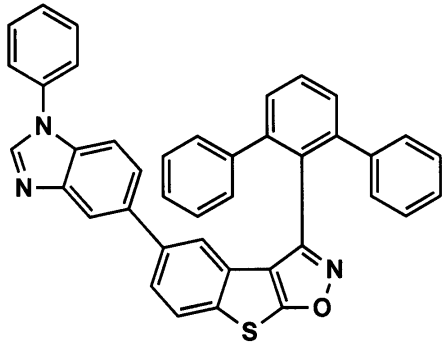


40

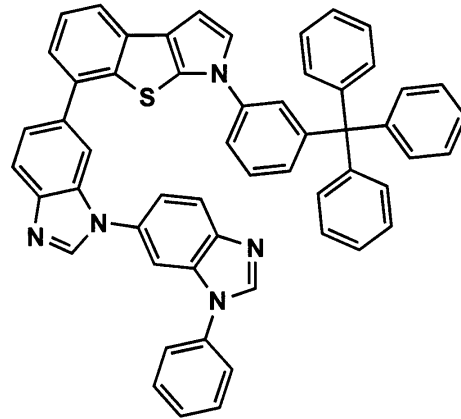
【0097】

【化 2 9】

H4-17

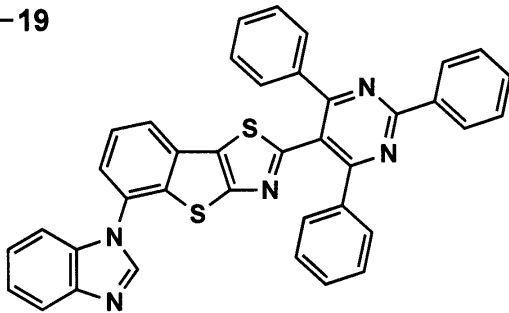


H4-18

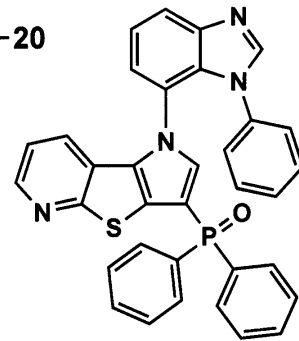


10

H4-19

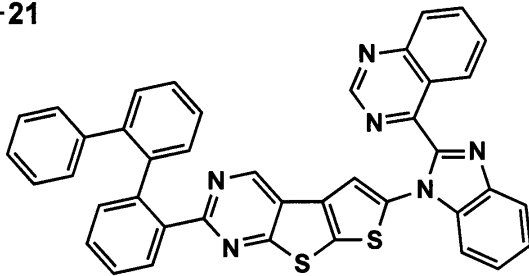


H4-20

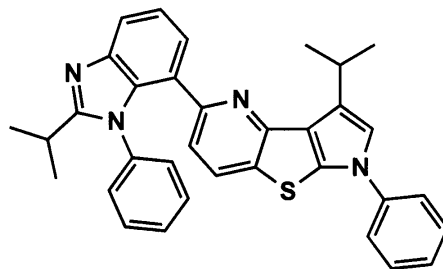


20

H4-21

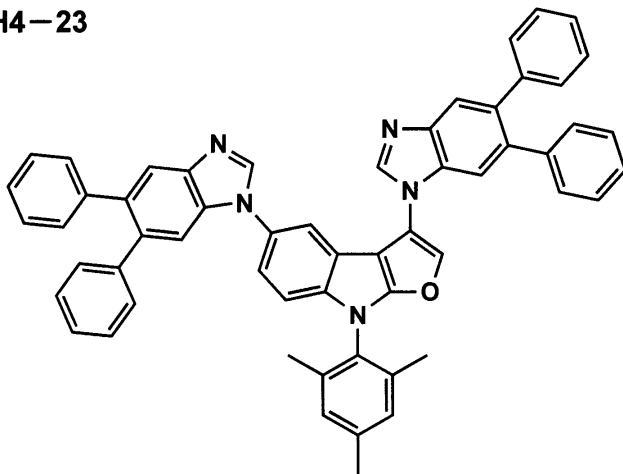


H4-22

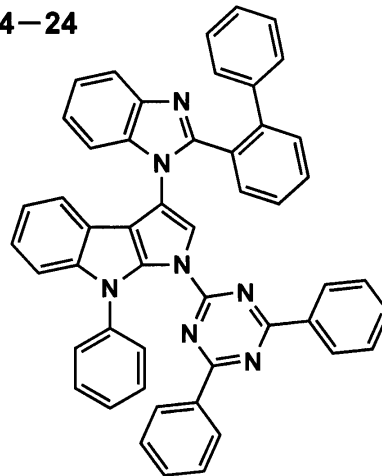


30

H4-23



H4-24

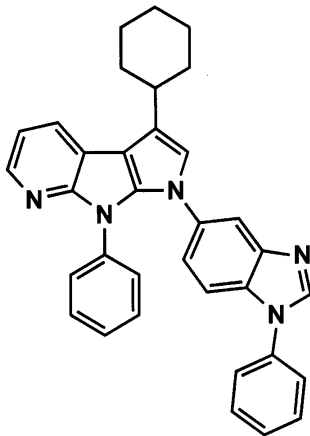


40

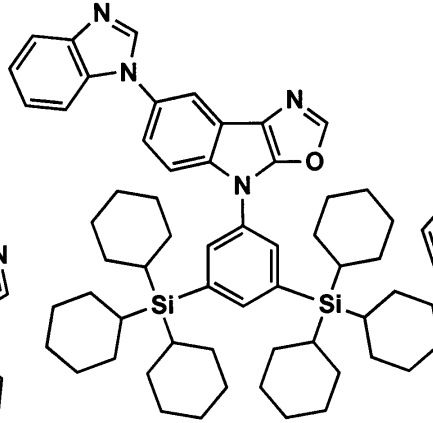
【 0 0 9 8 】

【化 3 0】

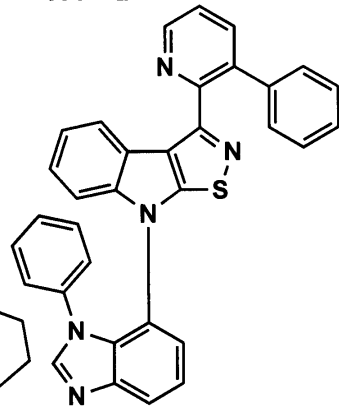
H4-25



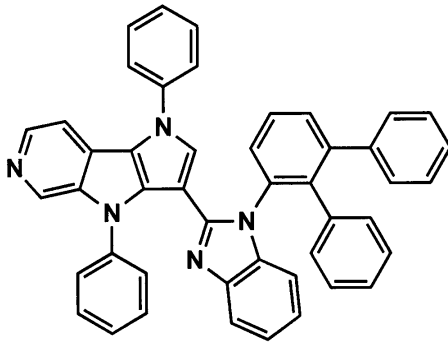
H4-26



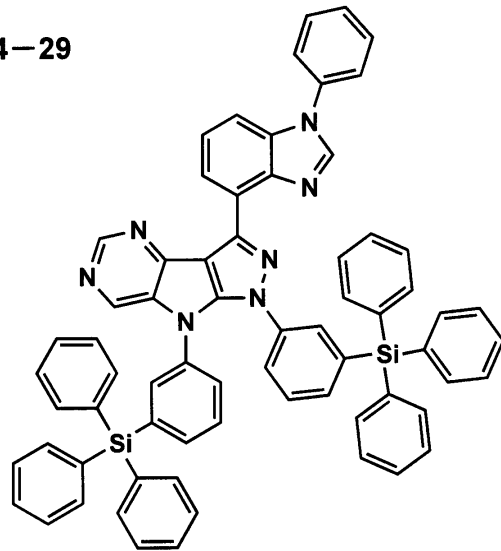
H4-27



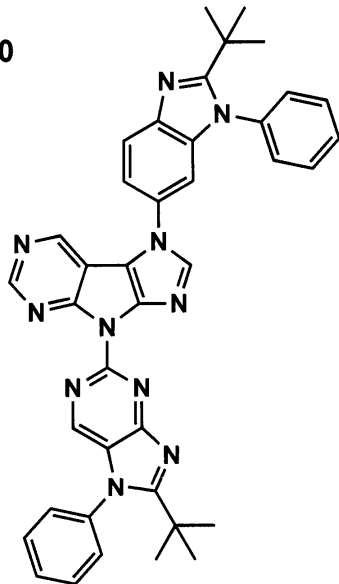
H4-28



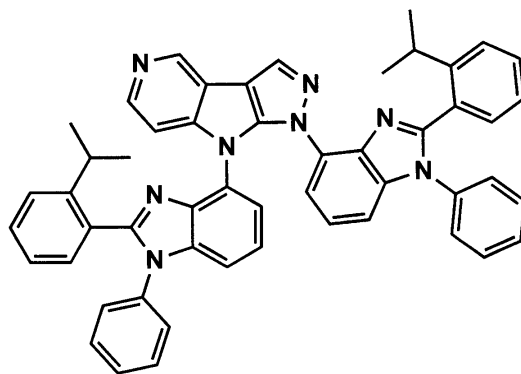
H4-29



H4-30



H4-31



10

20

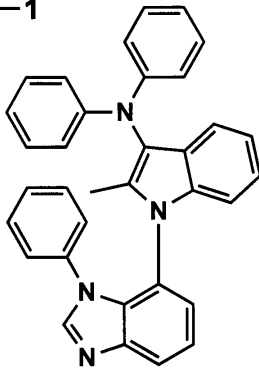
30

40

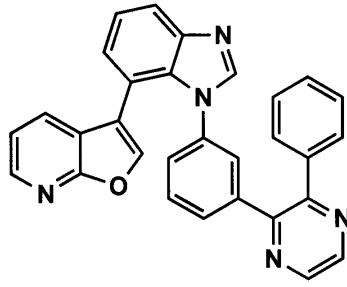
【 0 0 9 9 】

【化 3 1】

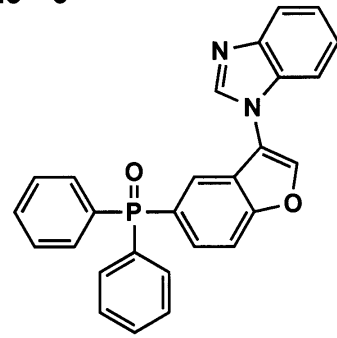
H5-1



H5-2

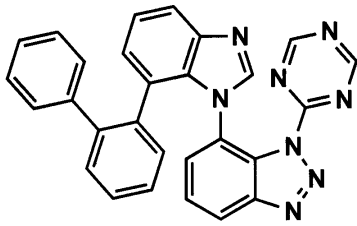


H5-3

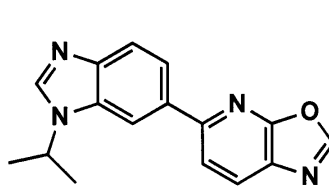


10

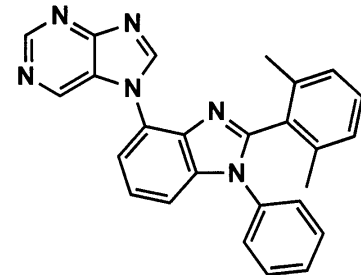
H5-4



H5-5

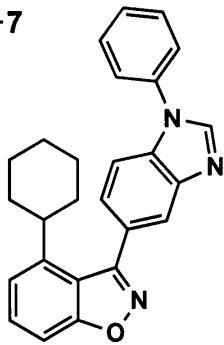


H5-6

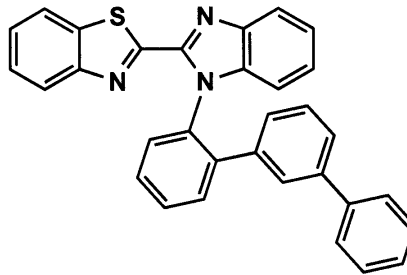


20

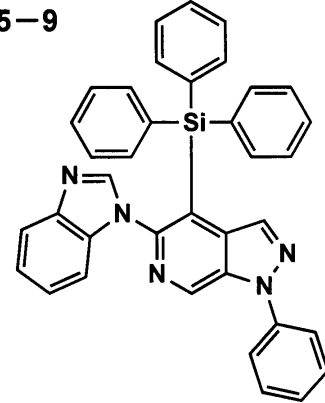
H5-7



H5-8

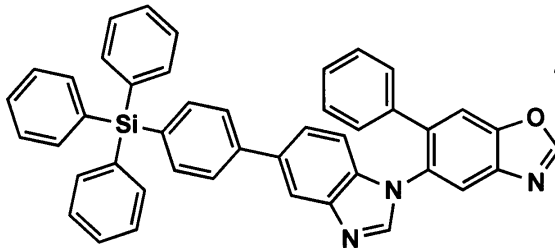


H5-9

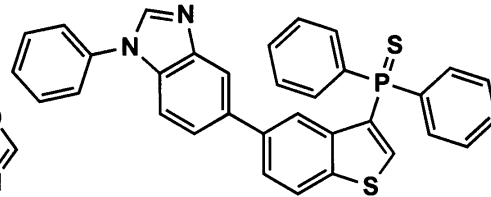


30

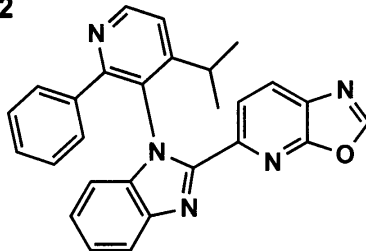
H5-10



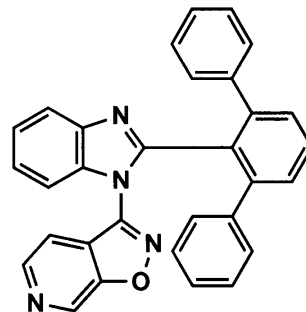
H5-11



H5-12



H5-13

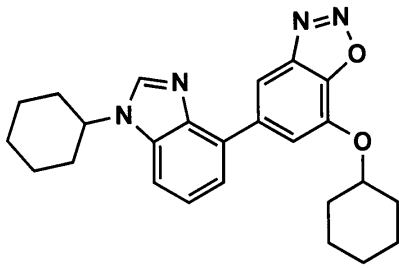


40

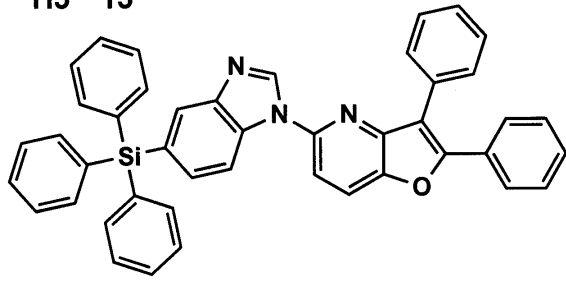
【 0 1 0 0 】

【化 3 2】

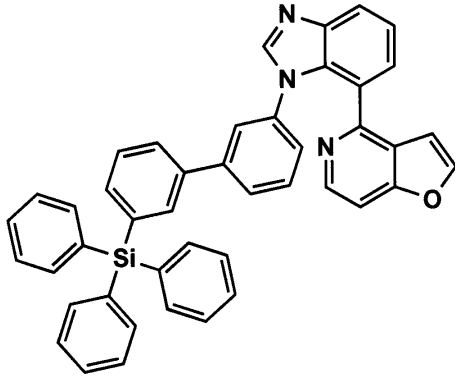
H5-14



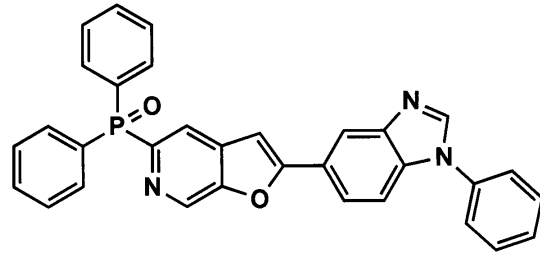
H5-15



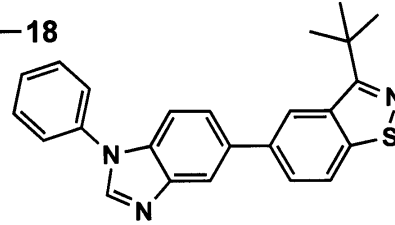
H5-16



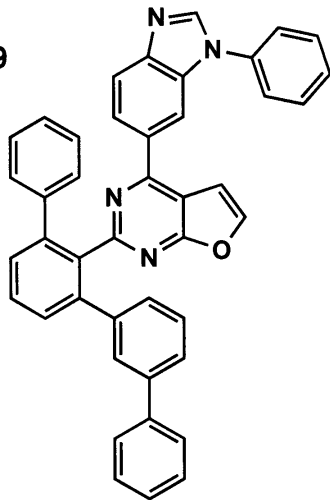
H5-17



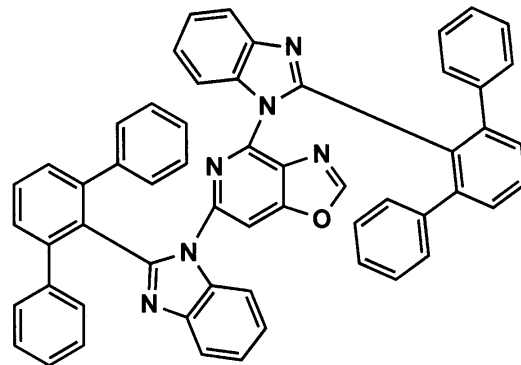
H5-18



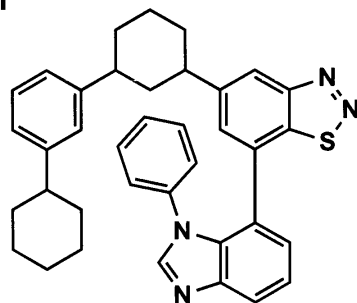
H5-19



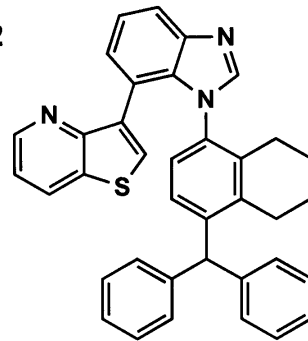
H5-20



H5-21



H5-22



10

20

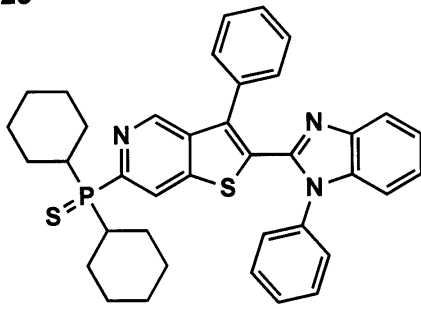
30

40

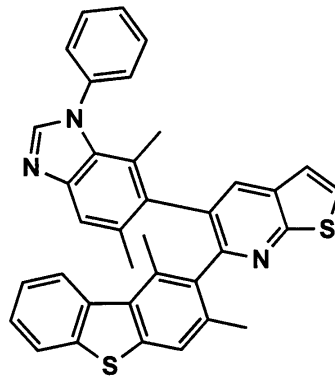
【 0 1 0 1 】

【化 3 3】

H5-23

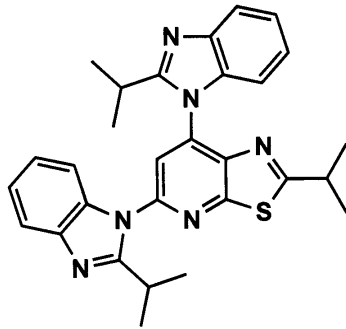


H5-24

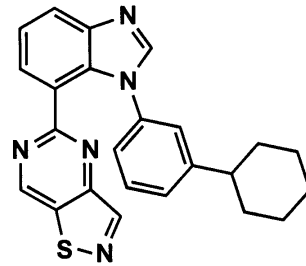


10

H5-25

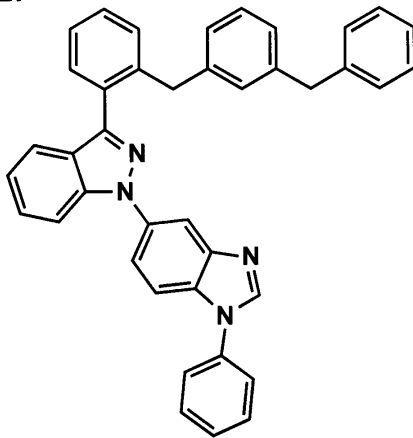


H5-26

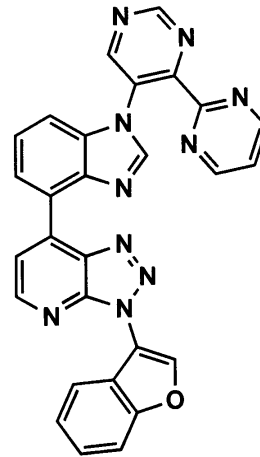


20

H5-27

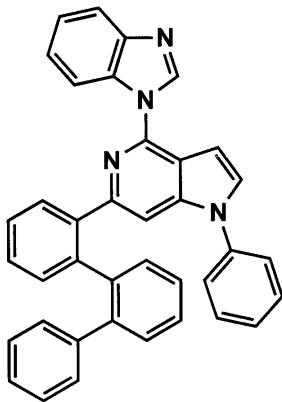


H5-28

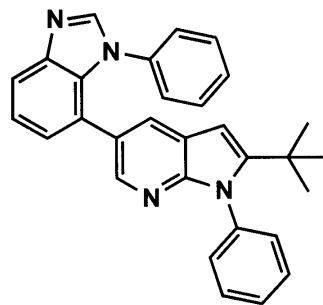


30

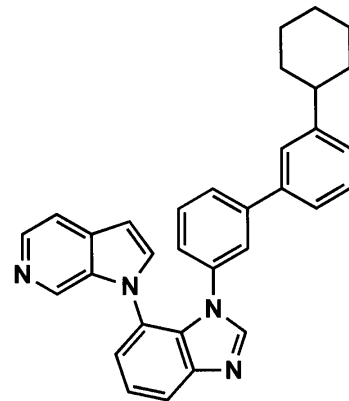
H5-29



H5-30



H5-31

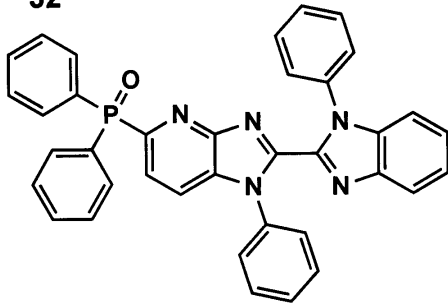


40

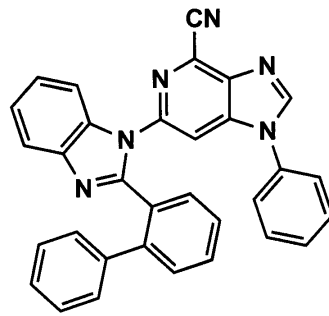
【 0 1 0 2】

【化 3 4】

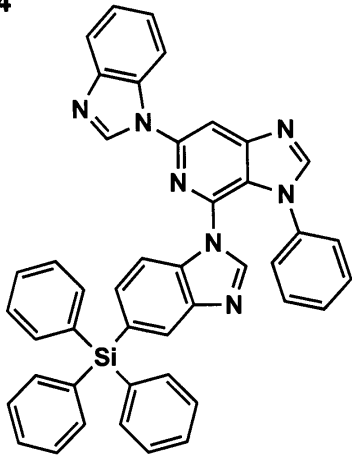
H5-32



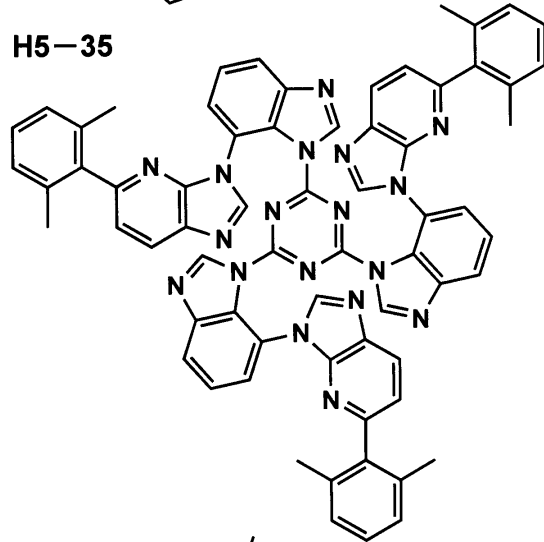
H5-33



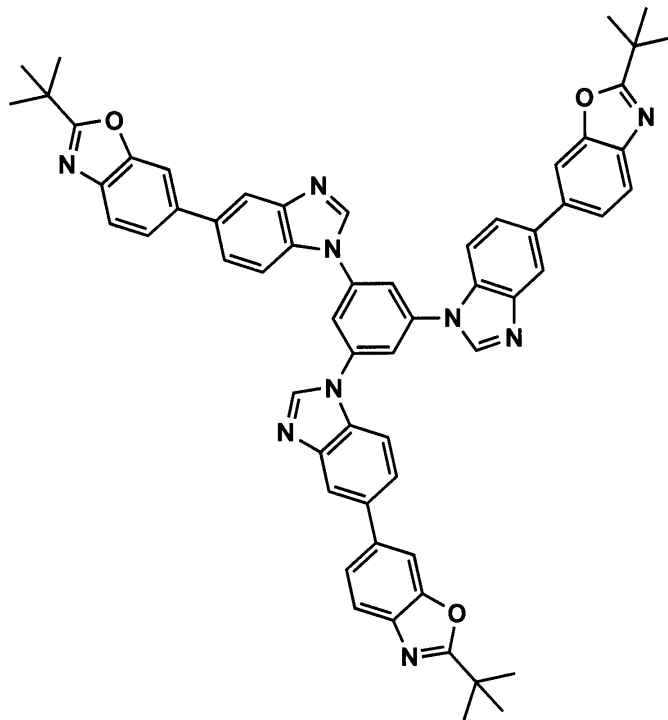
H5-34



H5-35



H5-36



10

20

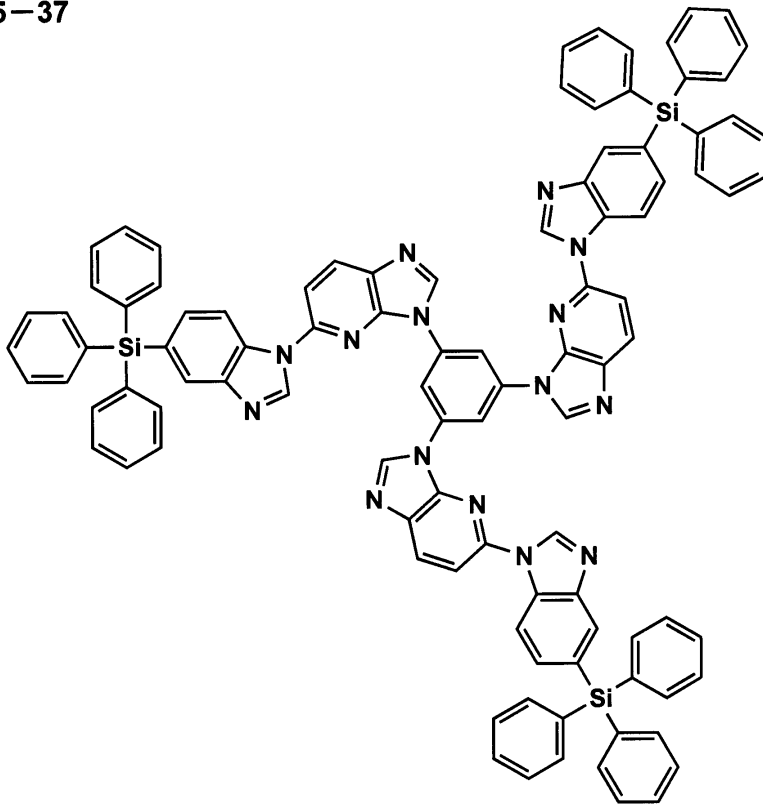
30

40

【 0 1 0 3 】

【化 3 5】

H5-37



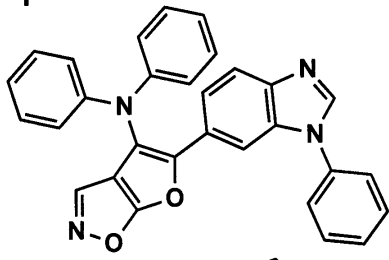
10

20

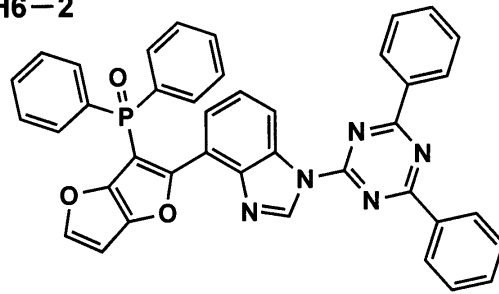
【 0 1 0 4】

【化 3 6】

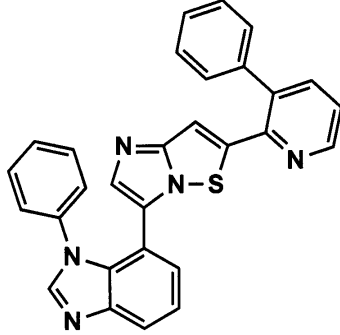
H6-1



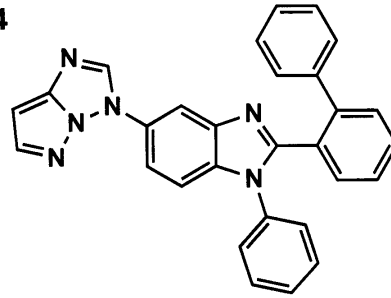
H6-2



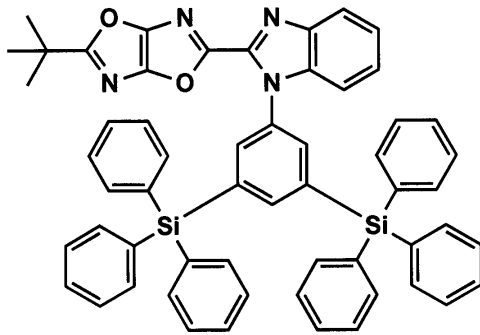
H6-3



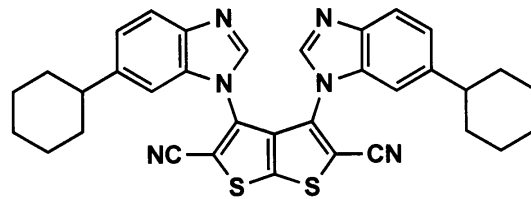
H6-4



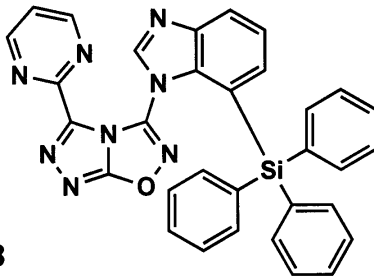
H6-5



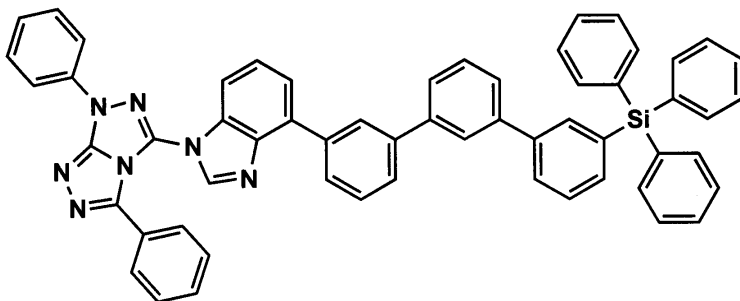
H6-6



H6-7



H6-8



【 0 1 0 5 】

10

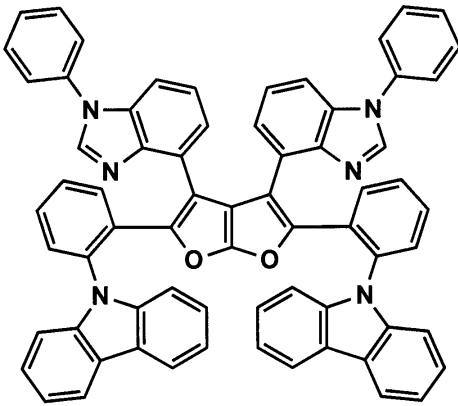
20

30

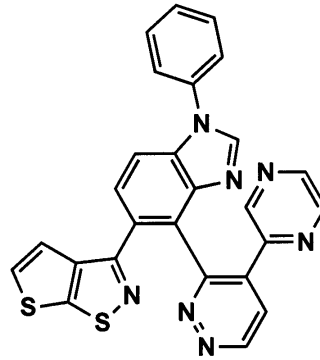
40

【化 3 7】

H6-9

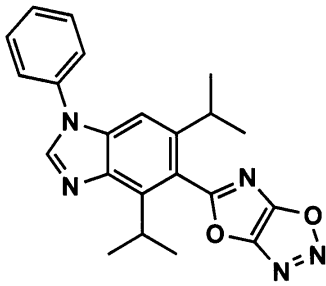


H6-10

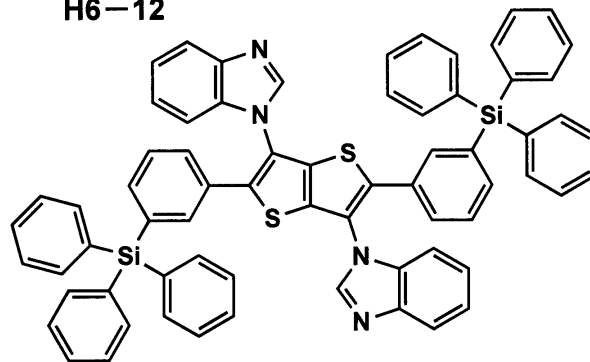


10

H6-11

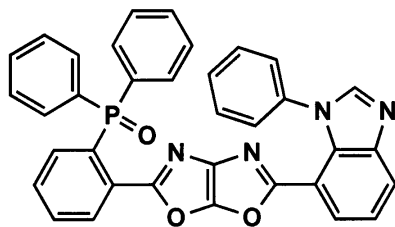


H6-12

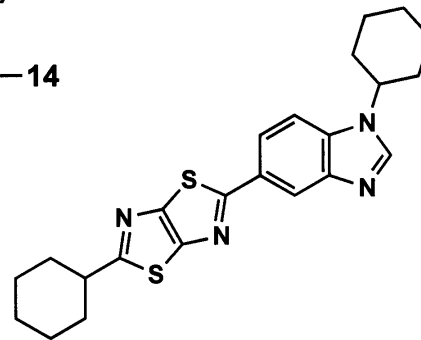


20

H6-13

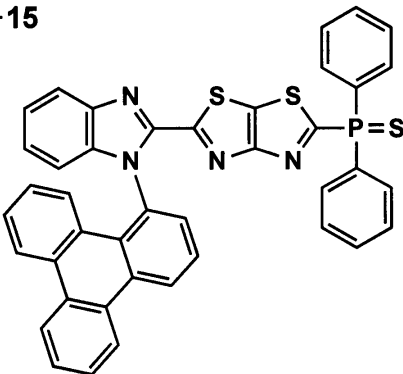


H6-14

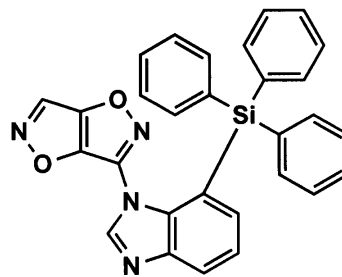


30

H6-15



H6-16

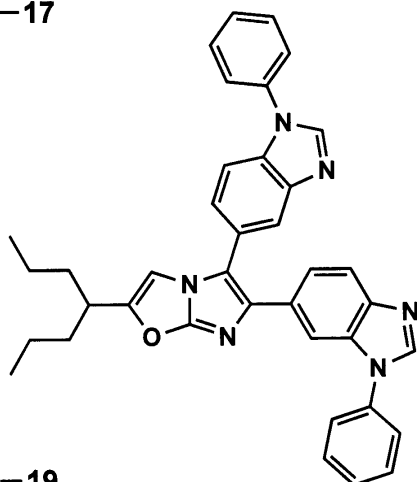


40

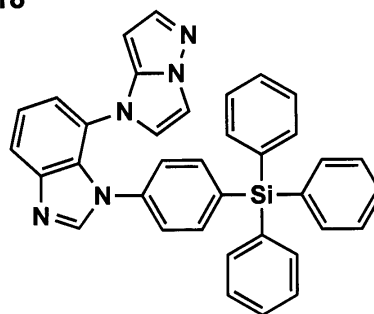
【 0 1 0 6 】

【化38】

H6-17

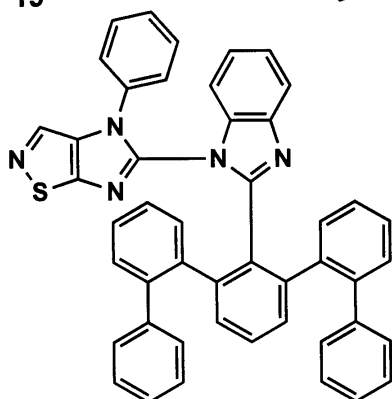


H6-18



10

H6-19



20

【0107】

合成例

以下に、一般式(1)で表される化合物の合成例を説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。前記具体例のうち例示化合物H2-6と例示化合物H2-7の合成方法を例にとって以下に説明する。

30

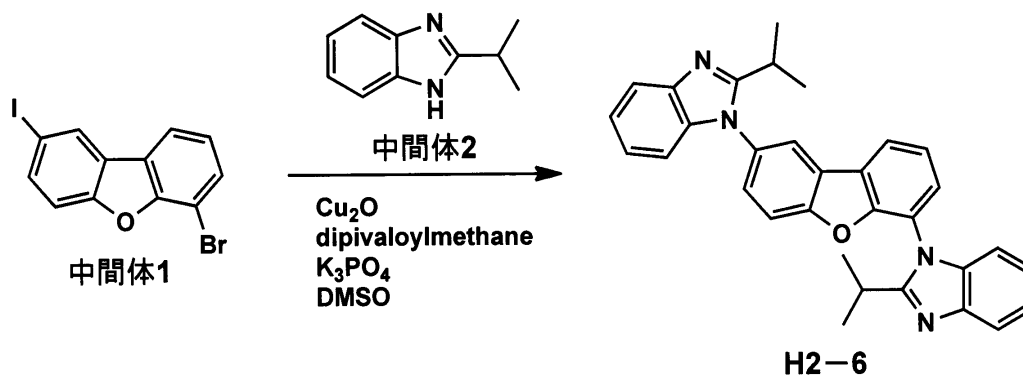
【0108】

<例示化合物H2-6の合成>

例示化合物H2-6は以下のスキームに従って合成できる。

【0109】

【化39】



40

【0110】

窒素気流下、フラスコに5.0g(13.4mmol)の中間体1と、4.72g(29.5mmol)の中間体2と、リン酸カリウム10.2g(48.2mmol)と、酸

50

化銅 (I) 0.58 g (4.02 mmol) と、ジピバロイルメタン 1.48 g (8.04 mmol) を入れ、ジメチルスルホキシド (DMSO) 135 mL を加え、17 時間 160 °C で加熱した。反応液を室温まで放冷した後、水を加え、酢酸エチルで抽出し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、例示化合物 H2-6 を 1.9 g (収率 29%) 得た。構造は核磁気共鳴スペクトルで確認した。なお、後述する有機 EL 素子の作製にはこの化合物をさらに昇華精製したものをを用いた。

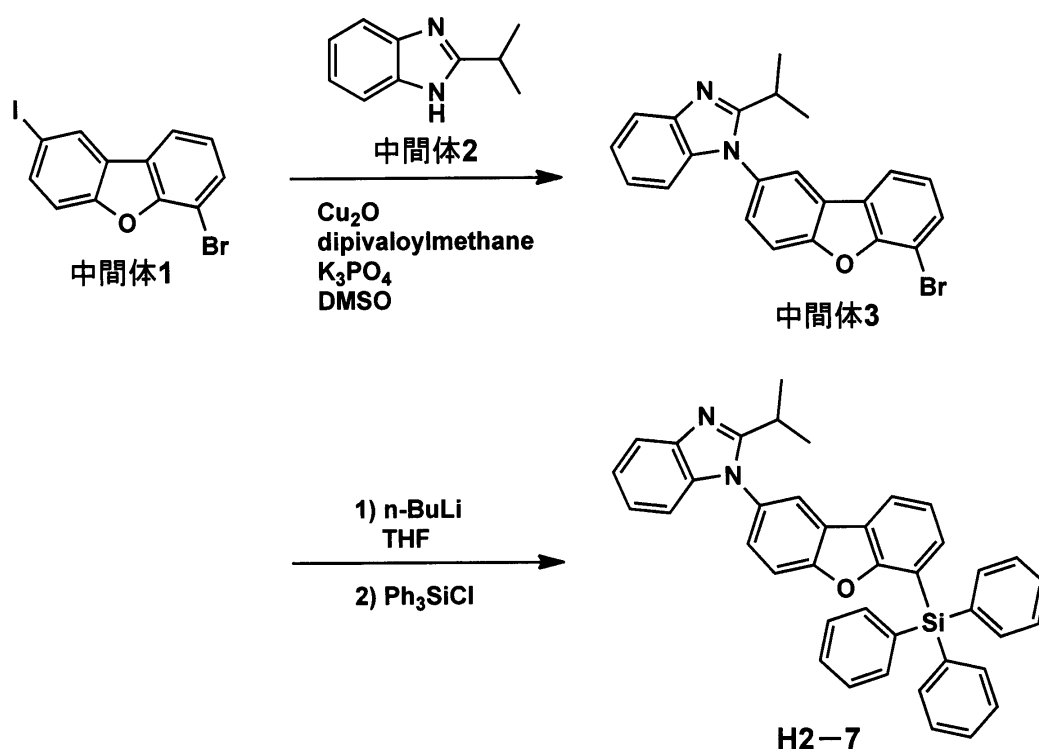
【0111】

< 例示化合物 H2-7 の合成 >

例示化合物 H2-7 は以下のスキームに従って合成できる。

【0112】

【化40】



【0113】

(中間体 3 の合成)

窒素気流下、フラスコに 10.0 g (26.8 mmol) の中間体 1 と、4.51 g (28.1 mmol) の中間体 2 と、リン酸カリウム 20.5 g (96.5 mmol) と、酸化銅 (I) 1.15 g (8.04 mmol) と、ジピバロイルメタン 2.96 g (16.1 mmol) を入れ、ジメチルスルホキシド 270 mL を加え、3 時間 160 °C で加熱した。反応液を室温まで放冷した後、水を加え、酢酸エチルで抽出し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成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 3 を 3.95 g (収率 30%) 得た。

【0114】

(例示化合物 H2-7 の合成)

窒素気流下、2.65 g の中間体 3 (5.46 mmol) のテトラヒドロフラン溶液 54 mL を -78 °C に冷却した後、n-ブチルリチウムのヘキサン溶液 (1.6 mol/L) 5 mL をゆっくりと滴下した。この反応液にトリフェニルシリルクロライド 2.9 g (9.9 mmol) を加えた。反応液を室温に戻し、攪拌を 4 時間行った。水を加え、酢酸エチルで抽出し、減圧下で濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、例示化合物 H2-7 を 3.0 g (収率 96%) 得た。構造は核磁気共鳴

10

20

30

40

50

スペクトルで確認した。なお、後述する有機EL素子の作製にはこの化合物をさらに昇華精製したものをを用いた。

【0115】

《発光層》

本発明に係る有機層は、発光層を有する。本発明に係る発光層は、電極又は隣接層から注入されてくる電子及び正孔が再結合し、励起子を經由して発光する場を提供する層であり、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。本発明に係る発光層は、本発明で規定する要件を満たしていれば、その構成に特に制限はない。

本発明に係る一般式(1)で表される構造を有する化合物は、有機層に含有されていればよく、発光層に含有されることが好ましい。

10

【0116】

発光層の層厚の総和は、特に制限はないが、形成する層の均質性や、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、2nm~5μmの範囲に調整することが好ましく、より好ましくは2~500nmの範囲に調整され、更に好ましくは5~200nmの範囲に調整される。

また、本発明において個々の発光層の層厚としては、2nm~1μmの範囲に調整することが好ましく、より好ましくは2~200nmの範囲に調整され、更に好ましくは3~150nmの範囲に調整される。

本発明に係る発光層には、発光ドーパント(発光性ドーパント化合物、ドーパント化合物、単にドーパントともいう)と、ホスト化合物(マトリックス材料、発光ホスト化合物、単にホストともいう)とを含有することが好ましい。

20

【0117】

ホスト化合物

本発明においては、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物をホスト化合物として用いることが好ましい。また、前記発光層が、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含む2種以上のホスト化合物を含有することも好ましい。

本発明に用いられるホスト化合物は、発光層において主に電荷の注入及び輸送を担う化合物であり、有機EL素子においてそれ自体の発光は実質的に観測されない。

好ましくは室温(25)においてリン光発光のリン光量子収率が、0.1未満の化合物であり、さらに好ましくはリン光量子収率が0.01未満の化合物である。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。

30

また、ホスト化合物の励起状態エネルギーは、同一層内に含有される発光ドーパントの励起状態エネルギーよりも高いことが好ましい。

ホスト化合物は、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。

【0118】

本発明で用いることができるホスト化合物としては、特に制限はなく、従来有機EL素子で用いられる化合物を用いることができる。低分子化合物でも繰り返し単位を有する高分子化合物でもよく、また、ビニル基やエポキシ基のような反応性基を有する化合物でもよい。

40

公知のホスト化合物としては、正孔輸送能又は電子輸送能を有しつつ、かつ発光の長波長化を防ぎ、さらに、有機EL素子を高温駆動時や素子駆動中の発熱に対して安定して動作させる観点から、高いガラス転移温度(Tg)を有することが好ましい。好ましくはTgが90以上であり、より好ましくは120以上である。

ここで、ガラス転移温度(Tg)とは、DSC(Differential Scanning Colorimetry: 示差走査熱量法)を用いて、JIS K 7121-2012に準拠した方法により求められる値である。

【0119】

50

本発明の有機EL素子に用いられる、公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

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、米国特許公開第2003/0175553号明細書、米国特許公開第2006/0280965号明細書、米国特許公開第2005/0112407号明細書、米国特許公開第2009/0017330号明細書、米国特許公開第2009/0030202号明細書、米国特許公開第2005/0238919号明細書、国際公開第2001/039234号、国際公開第2009/021126号、国際公開第2008/056746号、国際公開第2004/093207号、国際公開第2005/089025号、国際公開第2007/063796号、国際公開第2007/063754号、国際公開第2004/107822号、国際公開第2005/030900号、国際公開第2006/114966号、国際公開第2009/086028号、国際公開第2009/003898号、国際公開第2012/023947号、特開2008-074939号公報、特開2007-254297号公報、欧州特許第2034538号明細書等である。

【0120】

発光ドーパント

本発明で用いられる発光ドーパントとしては、蛍光発光性ドーパント（蛍光ドーパント、蛍光性化合物ともいう。）と、リン光発光性ドーパント（リン光ドーパント、リン光性化合物ともいう。）が好ましく用いられる。本発明においては、少なくとも1層の発光層がリン光ドーパントを含有することが好ましい。

発光層中の発光ドーパントの濃度については、使用される特定のドーパント及びデバイスの必要条件に基づいて、任意に決定することができ、発光層の層厚方向に対し、均一な濃度で含有されていてもよく、また任意の濃度分布を有していてもよい。

【0121】

また、本発明に用いられる発光ドーパントは、複数種を併用して用いてもよく、構造の異なるドーパント同士の組み合わせや、蛍光発光性ドーパントとリン光発光性ドーパントとを組み合わせ用いてもよい。これにより、任意の発光色を得ることができる。

本発明の有機EL素子や本発明に用いられ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5.16において、分光放射輝度計CS-1000（コニカミノルタ（株）製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

本発明においては、1層又は複数層の発光層が、発光色の異なる複数の発光ドーパントを含有し、白色発光を示すことも好ましい。

白色を示す発光ドーパントの組み合わせについては特に限定はないが、例えば青と橙や、青と緑と赤の組み合わせ等が挙げられる。

本発明の有機EL素子における白色とは、特に限定はなく、橙色寄りの白色であっても青色寄りの白色であってもよいが、2度視野角正面輝度を前述の方法により測定した際に、 1000cd/m^2 でのCIE1931表色系における色度が $x = 0.39 \pm 0.09$

10

20

30

40

50

、 $y = 0.38 \pm 0.08$ の領域内にあることが好ましい。

【0122】

(リン光ドーパント)

本発明に係るリン光ドーパント(以下、「リン光発光性ドーパント」ともいう。)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。

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

10

【0123】

リン光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ドーパントに移動させることでリン光ドーパントからの発光を得るというエネルギー移動型である。もう一つはリン光ドーパントがキャリアトラップとなり、リン光ドーパント上でキャリアの再結合が起こりリン光ドーパントからの発光が得られるというキャリアトラップ型である。いずれの場合においても、リン光ドーパントの励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

本発明において使用できるリン光ドーパントとしては、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。

20

【0124】

本発明に使用できる公知のリン光ドーパントの具体例としては、以下の文献に記載されている化合物等が挙げられる。

Nature, 395, 151 (1998)、Appl. Phys. Lett., 78, 1622 (2001)、Adv. Mater., 19, 739 (2007)、Chem. Mater., 17, 3532 (2005)、Adv. Mater., 17, 1059 (2005)、国際公開第2009/100991号、国際公開第2008/101842号、国際公開第2003/040257号、米国特許公開第2006/835469号、米国特許公開第2006/0202194号明細書、米国特許公開第2007/0087321号明細書、米国特許公開第2005/0244673号明細書、Inorg. Chem., 40, 1704 (2001)、Chem. Mater., 16, 2480 (2004)、Adv. Mater., 16, 2003 (2004)、Angew. Chem. Int. Ed., 2006, 45, 7800、Appl. Phys. Lett., 86, 153505 (2005)、Chem. Lett., 34, 592 (2005)、Chem. Commun., 2906 (2005)、Inorg. Chem., 42, 1248 (2003)、国際公開第2009/050290号、国際公開第2002/015645号、国際公開第2009/000673号、米国特許公開第2002/0034656号明細書、米国特許第7332232号明細書、米国特許公開第2009/0108737号明細書、米国特許公開第2009/0039776号明細書、米国特許第6921915号明細書、米国特許第6687266号明細書、米国特許公開第2007/0190359号明細書、米国特許公開第2006/0008670号明細書、米国特許公開第2009/0165846号明細書、米国特許公開第2008/0015355号明細書、米国特許第7250226号明細書、米国特許第7396598号明細書、米国特許公開第2006/0263635号明細書、米国特許公開第2003/0138657号明細書、米国特許公開第2003/0152802号明細書、米国特許第7090928号明細書、Angew. Chem. Int. Ed., 47, 1 (2008)、Chem. Mater., 18, 5119 (2006)、Inorg. Chem., 46, 4308 (2007)、Organometallics, 23, 3745 (2004)、Appl. Phys. Lett., 74, 1361 (1999)、国際公開第2002/0027

30

40

50

14号、国際公開第2006/009024号、国際公開第2006/056418号、国際公開第2005/019373号、国際公開第2005/123873号、国際公開第2005/123873号、国際公開第2007/004380号、国際公開第2006/082742号、米国特許公開第2006/0251923号明細書、米国特許公開第2005/0260441号明細書、米国特許第7393599号明細書、米国特許第7534505号明細書、米国特許第7445855号明細書、米国特許公開第2007/0190359号明細書、米国特許公開第2008/0297033号明細書、米国特許第7338722号明細書、米国特許公開第2002/0134984号明細書、米国特許第7279704号明細書、米国特許公開第2006/098120号明細書、米国特許公開第2006/103874号明細書、国際公開第2005/076380号、国際公開第2010/032663号、国際公開第2008/140115号、国際公開第2007/052431号、国際公開第2011/134013号、国際公開第2011/157339号、国際公開第2010/086089号、国際公開第2009/113646号、国際公開第2012/020327号、国際公開第2011/051404号、国際公開第2011/004639号、国際公開第2011/073149号、米国特許公開第2012/228583号明細書、米国特許公開第2012/212126号明細書、特開2012-069737号公報、特開2012-195554号公報、特開2009-114086号公報、特開2003-81988号公報、特開2002-302671号公報、特開2002-363552号公報等である。

10

中でも、好ましいリン光ドーパントとしてはIrを中心金属に有する有機金属錯体が挙げられる。さらに好ましくは、金属-炭素結合、金属-窒素結合、金属-酸素結合及び金属-硫黄結合のうち、少なくとも一つの配位様式を含む錯体が好ましい。

20

【0125】

(蛍光ドーパント)

本発明に用いられる蛍光ドーパント(以下、「蛍光発光性ドーパント」ともいう。)は、励起一重項からの発光が可能な化合物であり、励起一重項からの発光が観測される限り特に限定されない。

本発明に用いられる蛍光ドーパントとしては、例えば、アントラセン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体、フルオランテン誘導体、ペリレン誘導体、フルオレン誘導体、アリアルアセチレン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、スチリルアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、ハウ素錯体、クマリン誘導体、ピラン誘導体、シアニン誘導体、クロコニウム誘導体、スクアリウム誘導体、オキソベンツアントラセン誘導体、フルオレセイン誘導体、ローダミン誘導体、ピリリウム誘導体、ペリレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、又は希土類錯体系化合物等が挙げられる。

30

【0126】

また、近年では遅延蛍光を利用した発光ドーパントも開発されており、これらを用いてもよい。

遅延蛍光を利用した発光ドーパントの具体例としては、例えば、国際公開第2011/156793号、特開2011-213643号公報、特開2010-93181号公報等に記載の化合物が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

40

【0127】

《電子輸送層》

本発明において電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する材料からなり、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い。

本発明に用いられる電子輸送層の総層厚については特に制限はないが、通常は2nm~5μmの範囲であり、より好ましくは2~500nmであり、さらに好ましくは5~200nmである。

また、有機EL素子においては発光層で生じた光を電極から取り出す際、発光層から直接取り出される光と、光を取り出す電極と対極に位置する電極によって反射されてから取り出される光とが干渉を起こすことが知られている。光が陰極で反射される場合は、電子

50

輸送層の層厚を数 nm ~ 数 μm の間で適宜調整することにより、この干渉効果を効率的に利用することが可能である。

【0128】

一方で、電子輸送層の層厚を厚くすると電圧が上昇しやすくなるため、特に層厚が厚い場合においては、電子輸送層の電子移動度は $1 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上であることが好ましい。

電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という。）としては、電子の注入性又は輸送性、正孔の障壁性のいずれかを有していればよく、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。

【0129】

例えば、含窒素芳香族複素環誘導体（カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体（カルバゾール環を構成する炭素原子の一つ以上が窒素原子に置換されたもの）、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、ピリダジン誘導体、トリアジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、フェナントロリン誘導体、アザトリフェニレン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、ベンズチアゾール誘導体等）、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、シロール誘導体、芳香族炭化水素環誘導体（ナフタレン誘導体、アントラセン誘導体、トリフェニレン等）等が挙げられる。

【0130】

また、配位子にキノリノール骨格やジベンゾキノリノール骨格を有する金属錯体、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 - ジプロモ - 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 に置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。

【0131】

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。

また、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。

【0132】

本発明に用いられる電子輸送層においては、電子輸送層にドーブ材をゲスト材料としてドーブして、n 性の高い（電子リッチ）電子輸送層を形成してもよい。ドーブ材としては、金属錯体やハロゲン化金属など金属化合物等の n 型ドーパントが挙げられる。このような構成の電子輸送層の具体例としては、例えば、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) 等の文献に記載されたものが挙げられる。

【0133】

本発明の有機 EL 素子に用いられる、公知の好ましい電子輸送材料の具体例としては、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

米国特許第 6528187 号明細書、米国特許第 7230107 号明細書、米国特許公開第 2005 / 0025993 号明細書、米国特許公開第 2004 / 0036077 号明細書、米国特許公開第 2009 / 0115316 号明細書、米国特許公開第 2009 / 0101870 号明細書、米国特許公開第 2009 / 0179554 号明細書、国際公開第

10

20

30

40

50

2003/060956号、国際公開第2008/132085号、Appl. Phys. Lett., 75, 4 (1999)、Appl. Phys. Lett., 79, 449 (2001)、Appl. Phys. Lett., 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett., 81, 162 (2002)、Appl. Phys. Lett., 79, 156 (2001)、米国特許第7964293号明細書、米国特許公開第2009/030202号明細書、国際公開第2004/080975号、国際公開第2004/063159号、国際公開第2005/085387号、国際公開第2006/067931号、国際公開第2007/086552号、国際公開第2008/114690号、国際公開第2009/069442号、国際公開第2009/066779号、国際公開第2009/054253号、国際公開第2011/086935号、国際公開第2010/150593号、国際公開第2010/047707号、EP2311826号、特開2010-251675号公報、特開2009-209133号公報、特開2009-124114号公報、特開2008-277810号公報、特開2006-156445号公報、特開2005-340122号公報、特開2003-45662号公報、特開2003-31367号公報、特開2003-282270号公報、国際公開第2012/115034号等である。

10

【0134】

本発明におけるより好ましい電子輸送材料としては、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、ピラジン誘導体、トリアジン誘導体、ジベンゾフラン誘導体、ジベンゾチオフェン誘導体、カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、ベンズイミダゾール誘導体が挙げられる。

20

本発明の有機EL素子の電子輸送層に用いる化合物として好ましい具体例を以下に挙げるが、本発明はこれらに限定されない。

電子輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0135】

《正孔阻止層》

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

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

30

本発明の有機EL素子に設ける正孔阻止層は、発光層の陰極側に隣接して設けられることが好ましい。

本発明に用いられる正孔阻止層の層厚としては、好ましくは3～100nmの範囲であり、更に好ましくは5～30nmの範囲である。

正孔阻止層に用いられる材料としては、前述の電子輸送層に用いられる材料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も正孔阻止層に好ましく用いられる。

【0136】

《電子注入層》

本発明に用いられる電子注入層（「陰極バッファ層」ともいう。）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陰極と発光層との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いる。

40

本発明において電子注入層は必要に応じて設け、上記のように陰極と発光層との間、又は陰極と電子輸送層との間に存在させてもよい。

電子注入層はごく薄い膜であることが好ましく、素材にもよるがその層厚は0.1～5nmの範囲が好ましい。また構成材料が断続的に存在する不均一な膜であってもよい。

【0137】

電子注入層は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-7

50

4586号公報等にもその詳細が記載されており、電子注入層に好ましく用いられる材料の具体例としては、ストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化カリウム等に代表されるアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウム等に代表されるアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウムに代表される金属酸化物、リチウム8-ヒドロキシキノレート(Liq)等に代表される金属錯体等が挙げられる。また、前述の電子輸送材料を用いることも可能である。

また、上記の電子注入層に用いられる材料は単独で用いてもよく、複数種を併用して用いてもよい。

【0138】

《正孔輸送層》

本発明において正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する材料からなり、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有していればよい。

本発明に用いられる正孔輸送層の総層厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μmの範囲であり、より好ましくは2~500nmであり、さらに好ましくは5~200nmである。

正孔輸送層に用いられる材料(以下、正孔輸送材料ともいう。)としては、正孔の注入性又は輸送性、電子の障壁性のいずれかを有していればよく、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。

【0139】

例えば、ポルフィリン誘導体、フタロシアニン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、トリアリールアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、イソインドール誘導体、アントラセンやナフタレン等のアセン系誘導体、フルオレン誘導体、フルオレノン誘導体、及びポリビニルカルバゾール、芳香族アミンを主鎖又は側鎖に導入した高分子材料又はオリゴマー、ポリシラン、導電性ポリマー又はオリゴマー(例えばPEDOT/PSS、アニリン系共重合体、ポリアニリン、ポリチオフェン等)等が挙げられる。

【0140】

トリアリールアミン誘導体としては、-NPDに代表されるベンジジン型や、MTDA TAに代表されるスターバースト型、トリアリールアミン連結コア部にフルオレンやアントラセンを有する化合物等が挙げられる。

また、特表2003-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサアザトリフェニレン誘導体も同様に正孔輸送材料として用いることができる。

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

【0141】

また、特開平11-251067号公報、J. Huang et al. 著文献(J. Appl. Phys. Lett., 80(2002), p. 139)に記載されているような、いわゆるp型正孔輸送材料やp型-Si、p型-SiC等の無機化合物を用いることもできる。さらにIr(ppy)₃に代表されるような中心金属にIrやPtを有するオルトメタル化有機金属錯体も好ましく用いられる。

【0142】

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、トリアリールアミン誘導体、カルバゾール誘導体、インドロカルバゾール誘導体、アザトリフェニレン誘導体、有機金属錯体、芳香族アミンを主鎖又は側鎖に導入した高分子材料又はオリゴマー等が好ましく用いられる。

10

20

30

40

50

本発明の有機EL素子に用いられる、公知の好ましい正孔輸送材料の具体例としては、上記で挙げた文献の他、以下の文献に記載の化合物等が挙げられるが、本発明はこれらに限定されない。

例えば、Appl. Phys. Lett., 69, 2160 (1996)、J. Lumin., 72-74, 985 (1997)、Appl. Phys. Lett., 78, 673 (2001)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 90, 183503 (2007)、Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)、Synth. Met., 87, 171 (1997)、Synth. Met., 91, 209 (1997)、Synth. Met., 111, 421 (2000)、SID Symposium Digest, 37, 923 (2006)、J. Mater. Chem., 3, 319 (1993)、Adv. Mater., 6, 677 (1994)、Chem. Mater., 15, 3148 (2003)、米国特許公開第2003/0162053号明細書、米国特許公開第2002/0158242号明細書、米国特許公開第2006/0240279号明細書、米国特許公開第2008/0220265号明細書、米国特許第5061569号明細書、国際公開第2007/002683号、国際公開第2009/018009号、EP650955、米国特許公開第2008/0124572号明細書、米国特許公開第2007/0278938号明細書、米国特許公開第2008/0106190号明細書、米国特許公開第2008/0018221号明細書、国際公開第2012/115034号、特表2003-519432号公報、特開2006-135145号公報、米国特許出願番号13/585981号等である。

10

20

正孔輸送材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0143】

《電子阻止層》

電子阻止層とは、広い意味では正孔輸送層の機能を有する層であり、好ましくは正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が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、前述する正孔輸送層の構成を必要に応じて、本発明に用いられる電子阻止層として用いることができる。

本発明の有機EL素子に設ける電子阻止層は、発光層の陽極側に隣接して設けられることが好ましい。

30

本発明に用いられる電子阻止層の層厚としては、好ましくは3~100nmの範囲であり、更に好ましくは5~30nmの範囲である。

電子阻止層に用いられる材料としては、前述の正孔輸送層に用いられる材料が好ましく用いられ、また、前述のホスト化合物として用いられる材料も電子阻止層に好ましく用いられる。

【0144】

《正孔注入層》

本発明に用いられる正孔注入層（「陽極バッファ層」ともいう。）とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために陽極と発光層との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いる。

40

本発明において正孔注入層は必要に応じて設け、上記のように陽極と発光層又は陽極と正孔輸送層との間に存在させてもよい。

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、正孔注入層に用いられる材料としては、例えば前述の正孔輸送層に用いられる材料等が挙げられる。

【0145】

中でも銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニン誘導体、特表2003-519432号公報や特開2006-135145号公報等に記載されているようなヘキサザト

50

リフェニレン誘導体、酸化バナジウムに代表される金属酸化物、アモルファスカーボン、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、トリス（2 - フェニルピリジン）イリジウム錯体等に代表されるオルトメタル化錯体、トリアリールアミン誘導体等が好ましい。

前述の正孔注入層に用いられる材料は単独で用いてもよく、また複数種を併用して用いてもよい。

【0146】

《その他の添加化合物》

前述した本発明における有機層は、更に他の添加含有物が含まれていてもよい。

添加含有物としては、例えば臭素、ヨウ素及び塩素等のハロゲン元素やハロゲン化合物、Pd、Ca、Na等のアルカリ金属やアルカリ土類金属、遷移金属の化合物や錯体、塩等が挙げられる。

添加含有物の含有量は、任意に決定することができるが、含有される層の全質量%に対して1000ppm以下であることが好ましく、より好ましくは500ppm以下であり、さらに好ましくは50ppm以下である。

ただし、電子や正孔の輸送性を向上させる目的や、励起子のエネルギー移動を有利にするための目的などによってはこの範囲内ではない。

【0147】

《有機層の形成方法》

本発明に係る有機層（正孔注入層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層等）の形成方法について説明する。

本発明に係る有機層の形成方法は、特に制限はなく、従来公知の例えば真空蒸着法、湿式法（ウェットプロセスともいう。）等による形成方法を用いることができるが、湿式法により形成することがより好ましい。

湿式法としては、スピコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法、ダイコート法、ブレードコート法、ロールコート法、スプレーコート法、カーテンコート法、LB法（ラングミュア - プロジェクト法）等があるが、均質な薄膜が得られやすく、かつ高生産性の点から、ダイコート法、ロールコート法、インクジェット法、スプレーコート法などのロール to ロール方式適性の高い方法が好ましい。

【0148】

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

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。

【0149】

更に層毎に異なる成膜法を適用してもよい。成膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は使用する化合物の種類等により異なるが、一般にポート加熱温度50～450、真空度 10^{-6} ～ 10^{-2} Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度-50～300、層厚0.1nm～5μm、好ましくは5～200nmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

本発明に係る有機層の形成は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる成膜法を施しても構わない。その際は作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。

【0150】

《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（4eV以上、好ましくは4.5eV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

10

20

30

40

50

好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、インジウム・スズ酸化物(ITO)、 SnO_2 、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。

また、IDIXO($\text{In}_2\text{O}_3 - \text{ZnO}$)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。

【0151】

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、又はパターン精度を余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。

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

陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1 μm 、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

【0152】

《陰極》

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(Al_2O_3)混合物、インジウム、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第2金属との混合物、例えば、マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)混合物、リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。

【0153】

陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 / 以下が好ましく、膜厚は通常10nm~5 μm 、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。

なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極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。

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

【0154】

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

【0155】

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(TAC)、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-

10

20

30

40

50

トフタレート、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、シンジオタクティックポリスチレン、ポリカーボネート、ノルボルネン樹脂、ポリメチルペンテン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン類、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトンイミド、ポリアミド、フッ素樹脂、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、アクリル又はポリアリレート類、アトロン（商品名J S R社製）又はアベル（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のフィルムを挙げられる。

【0156】

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（ 25 ± 0.5 、相対湿度（ 90 ± 2 ）%）が $0.01 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下のガスバリアー性フィルムであることが好ましく、更には、JIS K 7126 - 1987に準拠した方法で測定された酸素透過度が、 $10^{-3} \text{ ml} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm})$ 以下、水蒸気透過度が、 $10^{-5} \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下の高ガスバリアー性フィルムであることが好ましい。

【0157】

ガスバリアー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、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ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。

【0158】

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

【0159】

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。

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量子効率、1%以上であることが好ましく、5%以上であるとより好ましい。

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

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として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。

【0160】

《封止》

本発明の有機EL素子の封止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。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いればよく、凹板状でも、平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性は特に限定されない。

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

10

20

30

40

50

鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム及びタンタルからなる群から選ばれる１種以上の金属又は合金からなるものが挙げられる。

【 0 1 6 1 】

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

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

【 0 1 6 2 】

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。

なお、有機 E L 素子が熱処理により劣化する場合があるので、室温から 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

【 0 1 6 3 】

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、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、窒化ケイ素等を用いることができる。

【 0 1 6 4 】

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

30

封止部材と有機 E L 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。

【 0 1 6 5 】

40

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、ヨウ化バリウム、ヨウ化マグネシウム等）、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。

【 0 1 6 6 】

《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又は前記封止用フィルムの外側に、素

50

子の機械的強度を高めるために、保護膜又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、軽量か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。

【0167】

《光取り出し向上技術》

有機エレクトロルミネセンス素子は、空気よりも屈折率の高い（屈折率1.6～2.1程度の範囲内）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、透明電極又は発光層と透明基板との間で光が全反射を起こし、光が透明電極又は発光層を導波し、結果として、光が素子側面方向に逃げるためである。

10

【0168】

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（例えば、米国特許第4774435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（例えば、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（例えば、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（例えば、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（例えば、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）などが挙げられる。

20

【0169】

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、又は基板、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。

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

30

【0170】

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さで形成すると、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。

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、フッ素系ポリマーなどが挙げられる。透明基板の屈折率は一般に1.5～1.7程度の範囲内であるので、低屈折率層は、屈折率がおよそ1.5以下であることが好ましい。またさらに1.35以下であることが好ましい。

【0171】

また、低屈折率媒質の厚さは、媒質中の波長の2倍以上となるのが望ましい。これは、低屈折率媒質の厚さが、光の波長程度になってエバネセントで染み出した電磁波が基板内に入り込む層厚になると、低屈折率層の効果が薄れるからである。

40

全反射を起こす界面又は、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、いわゆる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。

【0172】

50

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一次元回折格子では、特定の方向に進む光しか回折されず、光の取り出し効率がさほど上がらない。

しかしながら、屈折率分布を二次元的な分布にすることにより、あらゆる方向に進む光が回折され、光の取り出し効率が上がる。

回折格子を導入する位置としては、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）でも良いが、光が発生する場所である有機発光層の近傍が望ましい。このとき、回折格子の周期は、媒質中の光の波長の約 $1/2 \sim 3$ 倍程度の範囲内が好ましい。回折格子の配列は、正方形のラチス状、三角形のラチス状、ハニカムラチス状など、二次元的に配列が繰り返されることが好ましい。

10

【0173】

《集光シート》

本発明の有機EL素子は、支持基板（基板）の光取り出し側に、例えばマイクロレンズアレイ上の構造を設けるように加工したり、又はいわゆる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。

マイクロレンズアレイの例としては、基板の光取り出し側に一辺が $30 \mu\text{m}$ でその頂角が 90 度となるような四角錐を二次元に配列する。一辺は $10 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲内が好ましい。これより小さくなると回折の効果が発生して色付く、大きすぎると厚さが厚くなり好ましくない。

20

【0174】

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）など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 $50 \mu\text{m}$ の 状のストライプが形成されたものであってもよいし、頂角が丸みを帯びた形状、ピッチをランダムに変化させた形状、その他の形状であってもよい。

また、有機EL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）などを用いることができる。

30

【0175】

《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。

本発明の有機EL素子においては、必要に応じ成膜時にメタルマスクやインクジェットプリンティング法等でパターン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。

40

【0176】

《表示装置》

本発明の有機EL素子は、表示装置に用いることができる。表示装置は単色でも多色でもよいが、ここでは多色表示装置について説明する。

多色表示装置の場合は発光層形成時のみシャドーマスクを設け、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

発光層のみパターンニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、イ

50

ンクジェット法、スピンコート法、印刷法である。

【0177】

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

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

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

10

【0178】

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

表示デバイス、ディスプレイとしては、テレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合は単純マトリクス(パッシブマトリクス)方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。

20

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

【0179】

以下、本発明の有機EL素子を有する表示装置の一例を図面に基づいて説明する。

図2は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B、表示部Aと制御部Bとを電気的に接続する配線部C等を有する。

30

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

【0180】

図3はアクティブマトリクス方式による表示装置の模式図である。

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

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

40

【0181】

配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している(詳細は図示していない)。

画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。

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

【0182】

次に、画素の発光プロセスを説明する。図4は画素の回路を示した概略図である。

50

画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサー13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色及び青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

【0183】

図4において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサー13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

10

【0184】

画像データ信号の伝達により、コンデンサー13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

【0185】

制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサー13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

20

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

【0186】

ここで、有機EL素子10の発光は複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。また、コンデンサー13の電位の保持は次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

30

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

【0187】

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

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

40

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

本発明の有機EL素子を用いることにより、発光効率が向上した表示装置が得られた。

【0188】

本発明の照明装置の一態様

本発明の有機EL素子を具備した、本発明の照明装置の一態様について説明する。

本発明の有機EL素子の非発光面をガラスケースで覆い、厚さ300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材として、エポキシ系光硬化型接着剤(東亜合成社製ラックストラックLC0629B)を適用し、これを陰極上に重ねて透明支持基板

50

と密着させ、ガラス基板側からUV光を照射して、硬化させて、封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成することができる。

図6は、照明装置の概略図を示し、本発明の有機EL素子101はガラスカバー102で覆われている（なお、ガラスカバーでの封止作業は、有機EL素子101を大気に接触させることなく窒素雰囲気下のグローブボックス（純度99.999%以上の高純度窒素ガスの雰囲気下）で行った。）。

図7は、照明装置の断面図を示し、図7において、105は陰極、106は有機EL層、107は透明電極付きガラス基板を示す。なお、ガラスカバー102内には窒素ガス108が充填され、捕水剤109が設けられている。

【0189】

《有機EL素子材料》

本発明の有機EL素子材料は、前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有することを特徴とする。

また、前記一般式(1)中、前記BのHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記BのLUMO準位が、 -0.24 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のHOMO準位が、 -5.87 eV 以下であり、前記置換基 A_1 及び前記その他の置換基 A_2 のLUMO準位が、前記式(I)を満たすことが好ましい。

前記一般式(1)で表される構造を有する化合物を含有する本発明の有機EL素子材料を用いることで、発光効率が高く、低駆動電圧及び長寿命であり、かつ駆動時の電圧上昇が小さく、さらに経時安定性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することができる。

【実施例】

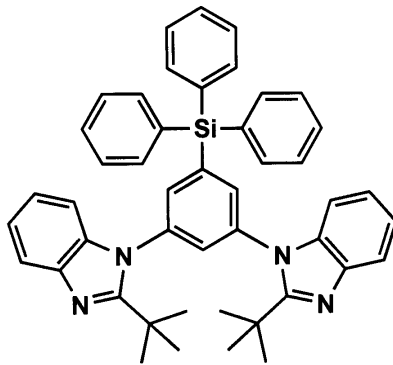
【0190】

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例において「部」又は「%」の表示を用いるが、特に断りがない限り「体積%」を表す。また、下記に実施例で使用した比較化合物1~4の構造を示す。

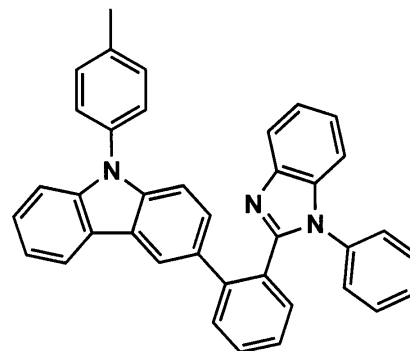
【0191】

【化41】

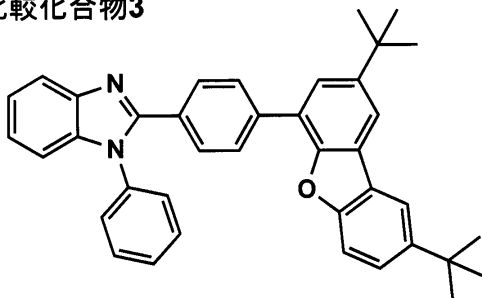
比較化合物1



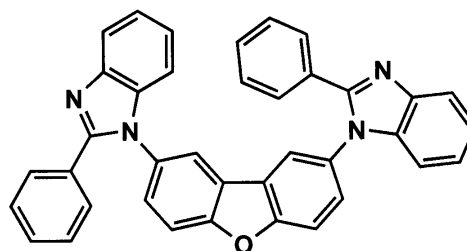
比較化合物2



比較化合物3



比較化合物4



【0192】

10

20

30


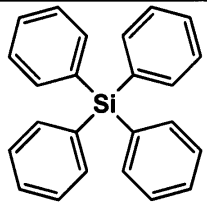
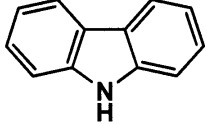

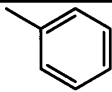
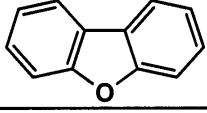


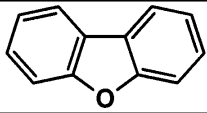

40

50

また、各比較化合物の分子計算結果を下記表に示す。

【0193】

【表2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
比較化合物1	縮合芳香族複素環	なし	—	—
	立体障害性基		-8.640	2.339
	置換基		-6.577	-0.527
比較化合物2	縮合芳香族複素環		-5.440	-0.643
	立体障害性基	 オルト置換	-6.699	0.098
	置換基		-6.401	0.101
比較化合物3	縮合芳香族複素環		-6.005	-0.920
	立体障害性基		-8.640	2.339
	置換基		-6.699	0.098
比較化合物4	縮合芳香族複素環		-6.005	-0.920
	立体障害性基	なし	—	—
	置換基		-6.699	0.098

【0194】

また、以下の実施例で使用する化合物の構造式を示す。

【0195】

10

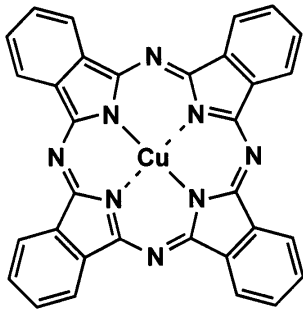
20

30

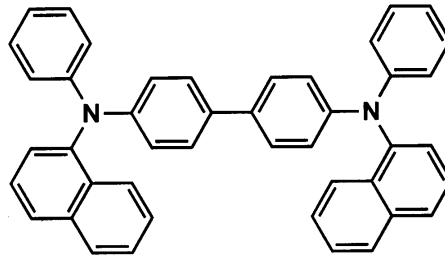
40

【化 4 2】

HT-1(CuPc)

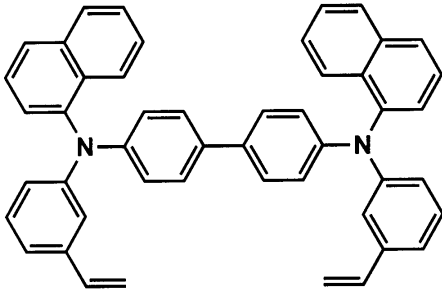


HT-2(α -NPD)

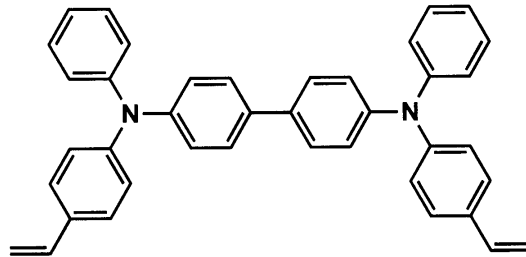


10

HT-3

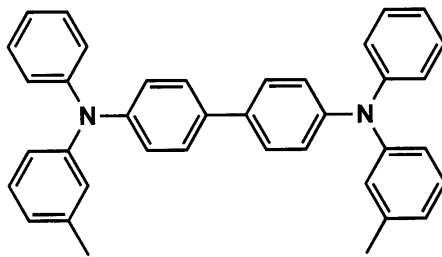


HT-4

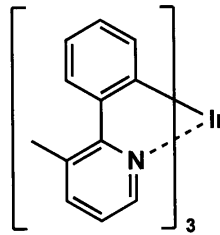


20

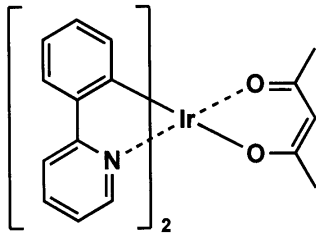
HT-5(TPD)



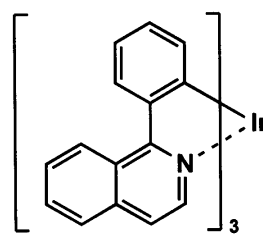
HT-6



D-1

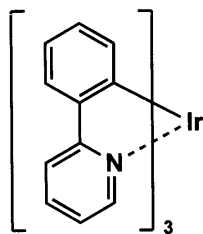


D-2(Ir(piqa)3)

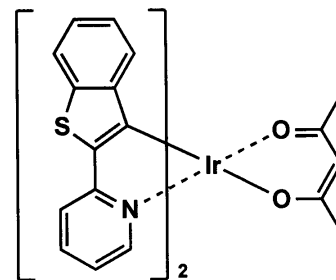


30

D-3(Ir(ppy)3)



D-4(Btp2Ir(acac))

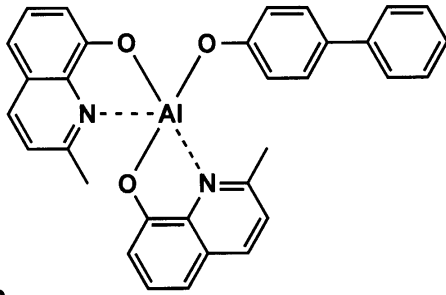


40

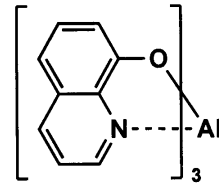
【 0 1 9 6 】

【化 4 3】

ET-1(BAlq)

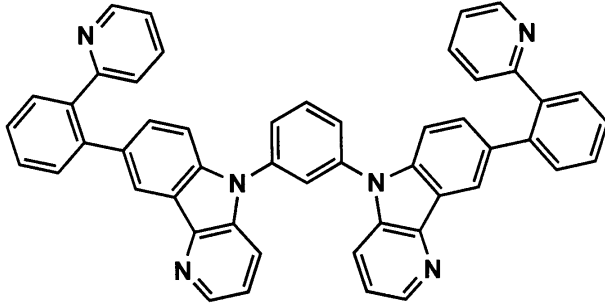


ET-2(Alq₃)



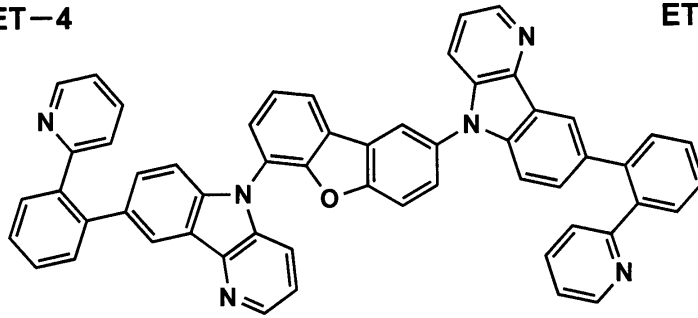
10

ET-3

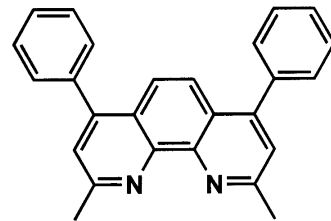


20

ET-4



ET-5(BCP)

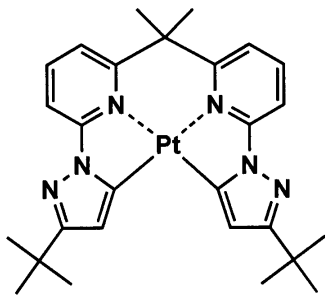


【 0 1 9 7 】

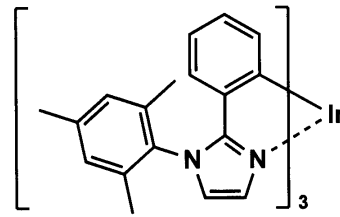
30

【化 4 4】

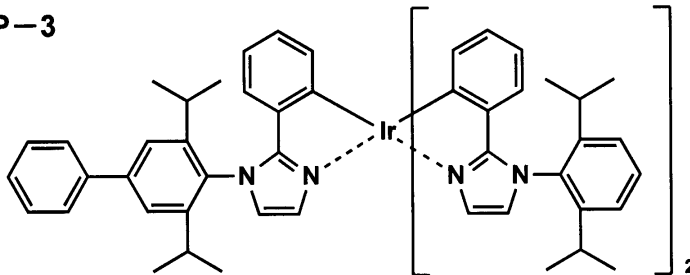
DP-1



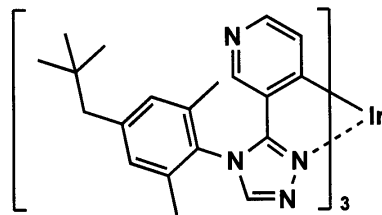
DP-2



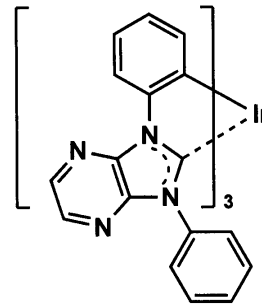
DP-3



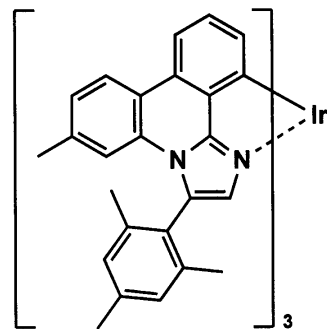
DP-4



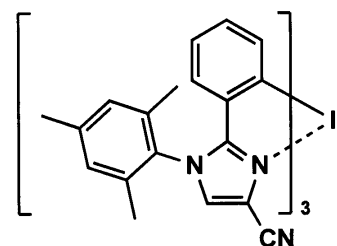
DP-5



DP-6



DP-7



【 0 1 9 8 】

[実施例 1]

《有機EL素子1-1の作製》

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

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートにHT-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにHT-2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDP-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにET-1を200mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートにET-2を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

【 0 1 9 9 】

次いで真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、HT-1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で、透明支持基板に蒸着し 10 nm の正孔注入層を設けた。

更に HT-2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で、前記正孔注入層上に蒸着し 30 nm の正孔輸送層を設けた。

更に比較化合物 1 と DP-1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm/秒 、 0.010 nm/秒 で、前記正孔輸送層上に共蒸着し 40 nm の発光層を設けた。

【0200】

更に ET-1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で、前記発光層上に蒸着し 10 nm の正孔阻止層を設けた。

10

更に ET-2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm/秒 で、前記正孔阻止層上に蒸着し 30 nm の電子輸送層を設けた。

引き続き、電子注入層（陰極バッファ層）としてフッ化リチウム 0.5 nm を蒸着し、更にアルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 1-1 を作製した。

【0201】

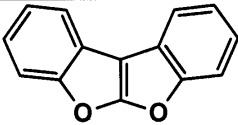
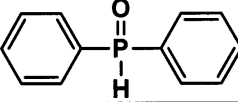

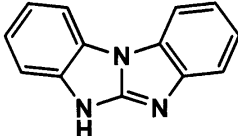
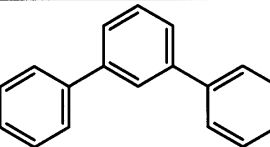

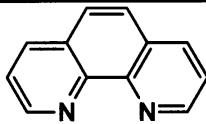

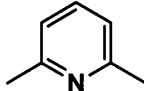
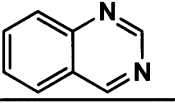
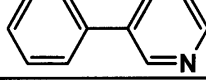

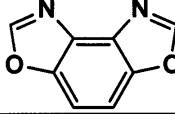


有機 EL 素子 1-2 ~ 1-10 の作製

有機 EL 素子 1-1 の作製において、比較化合物 1 を表 2、表 3-1 及び表 3-2 に記載の化合物に変えた以外は同様にして有機 EL 素子 1-2 ~ 1-10 を作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表 3-1 及び表 3-2 に示す。

20

【0202】

【表 3 - 1】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H1-1	B-H		-5.542	-0.381
	A ₁ -H		-6.943	-0.886
	A ₁ -H		-6.699	0.098
H1-2	B-H		-5.380	-0.497
	A ₁ -H		-5.962	-0.828
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H1-3	B-H		-6.246	-1.410
	A ₁ -H		-8.830	2.613
	A ₂ -H		-6.565	-0.474
H1-4	B-H		-6.732	-1.815
	A ₁ -H		-6.149	-1.079
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H1-5	B-H		-6.514	-1.224
	A ₁ -H		-7.941	2.387
	A ₂ -H		-6.699	0.098

【 0 2 0 3 】

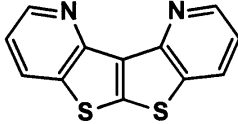
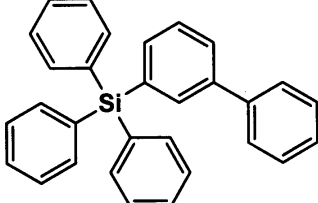
10

20

30

40

【表 3 - 2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H1-6	B-H		-6.068	-1.267
	A ₁ -H		-6.008	-0.770

10

【0204】

《有機EL素子1-1~1-10の評価》

得られた有機EL素子1-1~1-10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、厚さ300 μ mのガラス基板を封止用基板として用いて、周囲にシール材としてエポキシ系光硬化型接着剤（東亜合成社製ラックストラックLC0629B）を適用し、これを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、図6及び図7に示すような照明装置を作製して評価した。

20

このようにして作製した各サンプルについて下記の評価を行った。

【0205】

(1) 外部取り出し量子効率

有機EL素子を室温（約23 $^{\circ}$ C）、2.5mA/cm²の定電流条件下による点灯を行い、点灯開始直後の発光輝度[c d/m²]を測定することにより、外部取り出し量子効率(%)を算出した。

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

30

【0206】

(2) 半減寿命

下記に示す測定法に従って、半減寿命の評価を行った。各有機EL素子を初期輝度1000cd/m²を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の1/2（500cd/m²）になる時間を求め、これを半減寿命の尺度とした。なお、半減寿命は有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

【0207】

(3) 駆動電圧

有機EL素子を室温（約23 $^{\circ}$ C）、2.5mA/cm²の定電流条件下で駆動したときの電圧を各々測定し、測定結果を下記に示すように、有機EL素子1-1を100として各々相対値で示した。

40

$$\text{電圧} = (\text{各素子の駆動電圧} / \text{有機EL素子1-1の駆動電圧}) \times 100$$

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動電圧が低いことを示す。

【0208】

(4) 駆動時の電圧上昇

有機EL素子を室温（約23 $^{\circ}$ C）、2.5mA/cm²の定電流条件下により駆動した時の電圧を各々測定し、測定結果を下記に示した計算式により計算し、得られた結果を表4に示した。

有機EL素子1-1を100とする相対値で表した。

$$\text{駆動時の電圧上昇(相対値)} = \text{輝度半減時の駆動電圧} - \text{初期駆動電圧}$$

50

なお、値が小さいほうが比較に対して駆動時の電圧上昇が小さいことを示す。

【0209】

(5) 経時安定性

有機EL素子を60、70%RHの条件で1ヶ月保存後、保存前後における各電力効率を求め、各々の電力効率比を下式に従って求め、これを経時安定性の尺度とした。

経時安定性(%) = 保存後の電力効率 / 保存前の電力効率 × 100

なお、電力効率は分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタ社製)を用いて、各有機EL素子の正面輝度及び輝度角度依存性を測定し、正面輝度1000cd/m²において求めたものを用いた。以上の評価結果を表4に示す。

【0210】

【表4】

有機EL素子番号	ホスト化合物	外部取り出し量子効率(相対値)	半減寿命(相対値)	駆動電圧(相対値)	駆動時の電圧上昇(相対値)	経時安定性[%]	備考
1-1	比較化合物1	100	100	100	100	55	比較例
1-2	比較化合物2	109	124	95	108	45	比較例
1-3	比較化合物3	112	169	94	101	52	比較例
1-4	比較化合物4	119	189	91	110	44	比較例
1-5	H1-1	125	258	87	88	64	本発明
1-6	H1-2	128	289	85	85	65	本発明
1-7	H1-3	135	324	81	81	72	本発明
1-8	H1-4	143	367	78	79	74	本発明
1-9	H1-5	141	389	78	77	76	本発明
1-10	H1-6	158	401	74	68	86	本発明

【0211】

表4から明らかとなっており、本発明に係る一般式(1)で表される構造を有する化合物を用いた有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

【0212】

[実施例2]

《有機EL素子2-1の作製》

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

この透明支持基板の上に、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、H.C.スタルク社製、Clevious PVP AI 4083)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、層厚20nmの第1正孔輸送層を設けた。

【0213】

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ポートに正孔輸送材料としてHT-2を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにホスト化合物として比較化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに電子輸送材料としてET-1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにドーパント化合物としてDP-2を100mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

10

20

30

40

50

【 0 2 1 4 】

次いで真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、H T - 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で透明支持基板上に蒸着し、層厚 20 nm の第 2 正孔輸送層を設けた。

更に、ホスト化合物として比較化合物 1 とドーパント化合物として D P - 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0.1 nm / 秒、 0.006 nm / 秒で前記第 2 正孔輸送層上に共蒸着して層厚 40 nm の発光層を設けた。

【 0 2 1 5 】

更に E T - 1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0.1 nm / 秒で前記発光層上に蒸着して層厚 30 nm の電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き、フッ化リチウムを蒸着して層厚 0.5 nm の電子注入層を形成し、更にアルミニウムを蒸着して膜厚 110 nm の陰極を形成し、有機 E L 素子 2 - 1 を作製した。

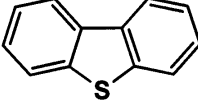
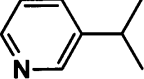
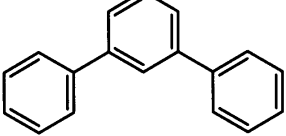
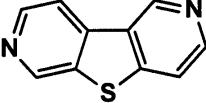
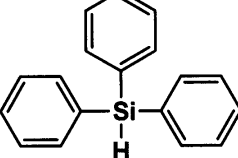
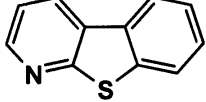
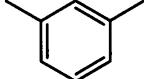
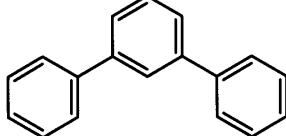
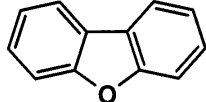
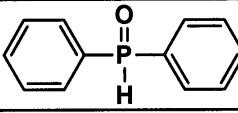
【 0 2 1 6 】

《有機 E L 素子 2 - 2 ~ 2 - 1 2 の作製》

有機 E L 素子 2 - 1 の作製において、比較化合物 1 を表 2、表 5 - 1 及び表 5 - 2 に記載の化合物に変更した。それ以外は同様にして、有機 E L 素子 2 - 2 ~ 2 - 1 2 を各々作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表 5 - 1 及び表 5 - 2 に示す。

【 0 2 1 7 】

【表 5 - 1】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H2-1	B-H		-5.817	-0.946
	A ₁ -H		-6.724	-0.489
	A ₂ -H		-5.962	-0.828
H2-2	B-H		-6.842	-1.654
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
	A ₂ -H	CH ₄	-10.579	3.207
H2-3	B-H		-6.277	-1.319
	A ₁ -H		-6.274	0.103
	A ₂ -H		-5.962	-0.828
H2-4	B-H		-6.005	-0.920
	A ₁ -H		-6.943	-0.886

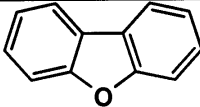
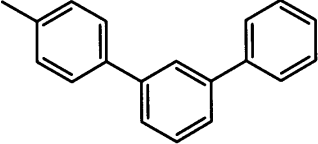

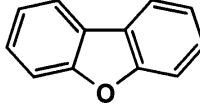

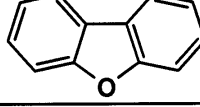

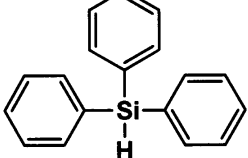
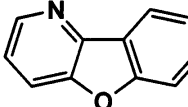
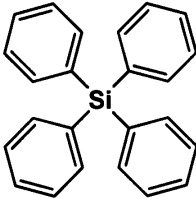
【 0 2 1 8 】

10

20

30

【表 5 - 2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H2-5	B-H		-6.005	-0.920
	A ₁ -H		-5.852	-0.781
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H2-6	B-H		-6.005	-0.920
	A ₁ -H		-8.830	2.613
H2-7	B-H		-6.005	-0.920
	A ₁ -H		-8.830	2.613
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
H2-8	B-H		-6.243	-1.295
	A ₁ -H		-6.577	-0.527

10

20

30

【0219】

有機EL素子2-1~2-12の評価

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1~1-10と同様に封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結果を表6に示す。なお、表6における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子2-1の測定値を100とする相対値で表した。

【0220】

40

【表6】

有機EL素子番号	ホスト化合物	外部取り出し量子効率(相対値)	半減寿命(相対値)	駆動電圧(相対値)	駆動時の電圧上昇(相対値)	経時安定性[%]	備考
2-1	比較化合物1	100	100	100	100	51	比較例
2-2	比較化合物2	102	113	99	112	46	比較例
2-3	比較化合物3	111	149	96	103	49	比較例
2-4	比較化合物4	118	168	94	116	43	比較例
2-5	H2-1	125	239	91	90	61	本発明
2-6	H2-2	130	301	85	86	65	本発明
2-7	H2-3	136	389	82	80	69	本発明
2-8	H2-4	141	367	81	79	69	本発明
2-9	H2-5	145	421	79	75	72	本発明
2-10	H2-6	151	399	76	74	75	本発明
2-11	H2-7	149	410	74	69	79	本発明
2-12	H2-8	159	458	71	63	81	本発明

10

【0221】

表6から明らかとなっており、本発明に係る一般式(1)で表される構造を有する化合物を用いた有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

20

【0222】

[実施例3]

《有機EL素子3-1の作製》

100mm×100mm×1.1mmのガラス基板の上に、陽極としてITOを100nm成膜した基板(Avanstrate株式会社製、NA-45)にパターニングを行った。その後、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て、UVオゾン洗浄を5分間行った。

この透明支持基板の上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフエン)-ポリスチレンスルホネート(PEDOT/PSS、Bayer株式会社製、Baytron P A14083)を純水で70%に希釈した溶液を用い、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、層厚30nmの第1正孔輸送層を設けた。

30

【0223】

この第1正孔輸送層上に、正孔輸送材料Poly(N,N'-ビス(4-ブチルフェニル)-N,N'-ビス(フェニル))ベンジジン(American Dye Source株式会社製、ADS-254)のクロロベンゼン溶液を用い、スピコート法により薄膜を形成した。150℃で1時間加熱乾燥し、層厚40nmの第2正孔輸送層を設けた。

この第2正孔輸送層上に、ホスト化合物としての比較化合物1及びドーパント化合物としてのDP-3の酢酸ブチル溶液を用い、スピコート法により薄膜を形成し、120℃で1時間加熱乾燥し、層厚30nmの発光層を設けた。

40

【0224】

この発光層上に、電子輸送材料としてのET-3の1-ブタノール溶液を用い、スピコート法により薄膜を形成し、層厚20nmの電子輸送層を設けた。

この基板を、真空蒸着装置に取付け、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した。次いで、フッ化リチウムを蒸着して層厚1.0nmの電子注入層を形成し、アルミニウムを蒸着して膜厚110nmの陰極を形成し、有機EL素子3-1を作製した。

【0225】

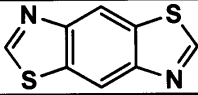

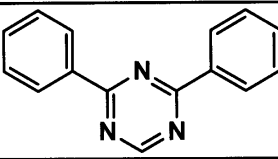
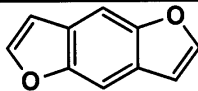
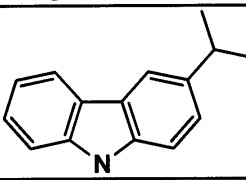
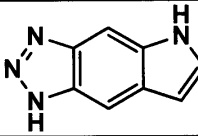
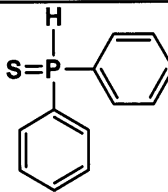


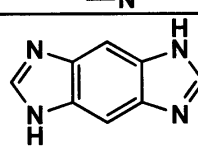
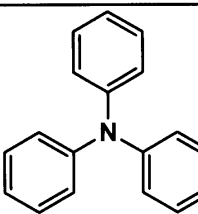
《有機EL素子3-2~3-14の作製》

50

有機EL素子3-1の作製において、発光層における比較化合物1を表2及び表7-1～表7-3に示す化合物に変更した。それ以外は同様にして、有機EL素子3-2～3-14を各々作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表7-1～表7-3に示す。

【0226】

【表7-1】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H3-1	B-H		-6.256	-1.555
	A ₁ -H		-8.830	2.613
	A ₂ -H		-6.719	-1.902
H3-2	B-H		-5.535	-0.799
	A ₁ -H		-5.339	-0.616
H3-3	B-H		-5.426	-1.145
	A ₁ -H		-5.992	-1.004
	A ₂ -H		-6.699	0.098
	A ₂ -H		-6.875	-0.614
H3-4	B-H		-5.524	-0.629
	A ₁ -H		-4.944	-0.297
	A ₂ -H	CH ₄	-10.579	3.207

【0227】

10

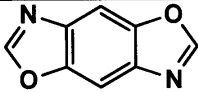
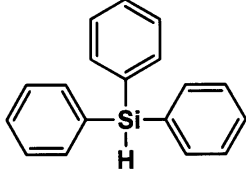

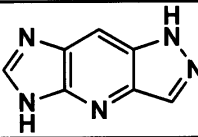


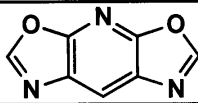
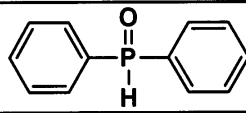
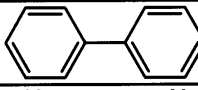
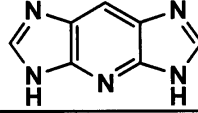
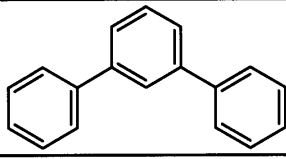

20

30

40

50

【表 7 - 2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H3-5	B-H		-6.460	-1.320
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
	A ₁ -H		-6.699	0.098
H3-6	B-H		-6.056	-1.468
	A ₁ -H		-7.941	2.387
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H3-7	B-H		-6.920	-1.721
	A ₁ -H		-6.943	-0.886
	A ₂ -H		-6.044	-0.674
H3-8	B-H		-6.045	-1.041
	A ₁ -H		-5.962	-0.828
	A ₂ -H		-6.699	0.098

【 0 2 2 8 】

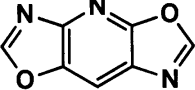
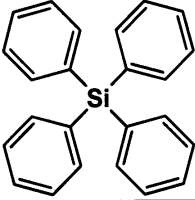
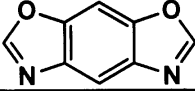
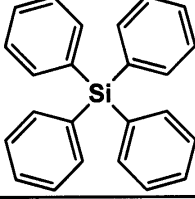
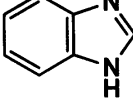
10

20

30

40

【表 7 - 3】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H3-9	B-H		-6.840	-1.836
	A ₁ -H		-6.577	-0.527
	A ₂ -H	CH ₄	-10.579	3.207
H3-10	B-H		-6.589	-1.195
	A ₁ -H		-6.577	-0.527
	A ₂ -H		-6.065	-0.340

10

20

【0229】

《有機EL素子3-2~3-14の評価》

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1~1-10と同様に封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結果を表8に示す。なお、表8における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子3-1の測定値を100とする相対値で表した。

30

【0230】

【表 8】

有機EL 素子 番号	ホスト化合物	外部取り出し 量子効率 (相対値)	半減 寿命 (相対値)	駆動 電圧 (相対値)	駆動時の 電圧上昇 (相対値)	経時 安定性 [%]	備考
3-1	比較化合物 1	100	100	100	100	42	比較例
3-2	比較化合物 2	103	111	99	116	37	比較例
3-3	比較化合物 3	112	159	98	105	40	比較例
3-4	比較化合物 4	119	168	98	118	38	比較例
3-5	H3-1	128	226	93	93	56	本発明
3-6	H3-2	132	269	90	90	59	本発明
3-7	H3-3	141	258	87	87	62	本発明
3-8	H3-4	148	268	85	89	60	本発明
3-9	H3-5	158	312	79	71	70	本発明
3-10	H3-6	162	346	77	71	73	本発明
3-11	H3-7	165	335	75	69	75	本発明
3-12	H3-8	169	389	73	65	80	本発明
3-13	H3-9	171	378	71	60	85	本発明
3-14	H3-10	179	415	65	55	89	本発明

【0231】

表 8 から明らかとなっており、本発明に係る一般式 (1) で表される構造を有する化合物を用いた有機 EL 素子は、比較例の有機 EL 素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

【0232】

[実施例 4]

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

この透明支持基板上に、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 P A1 4083) を純水で 70% に希釈した溶液を用いて 3000 rpm、30 秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した後、200 °C で 1 時間乾燥し、層厚 20 nm の第 1 正孔輸送層を設けた。

この基板を窒素雰囲気下に移し、前記第 1 正孔輸送層上に、47 mg の HT-3 と 3 mg の HT-4 とを 10 ml のトルエンに溶解した溶液を用いて 1500 rpm、30 秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した。120 °C、90 秒間紫外光を照射し、光重合・架橋を行い、更に 60 °C で 1 時間真空乾燥し、層厚約 20 nm の第 2 正孔輸送層を形成した。

この第 2 正孔輸送層上に、100 mg の比較化合物 1 と 20 mg の DP-4、0.5 mg の D-1、0.2 mg の D-2 を 10 ml の酢酸ブチルに溶解した溶液を用いて 600 rpm、30 秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した。更に 60 °C で 1 時間真空乾燥し、層厚約 70 nm の発光層とした。

次に、この発光層上に、50 mg の ET-4 を 10 ml のヘキサフルオロイソプロパノール (HFIP) に溶解した溶液を用いて 1500 rpm、30 秒の条件下、スピコート法により薄膜を形成した。更に 60 °C で 1 時間真空乾燥し、層厚約 20 nm の電子輸送層とした。

続いて、この基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、真空槽を 4×10^{-4} Pa まで減圧した後、電子注入層としてフッ化カリウム 0.4 nm を蒸着し、更にアルミニウム

△ 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 4 - 1 を作製した。

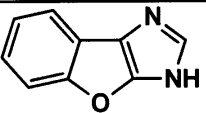
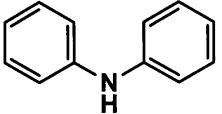

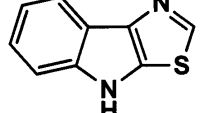
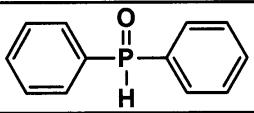
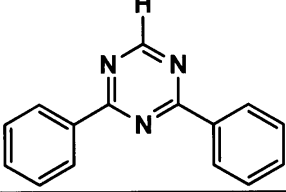
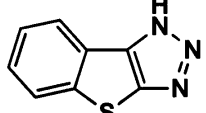

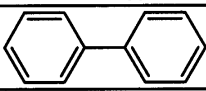
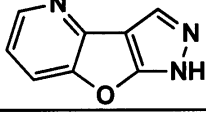
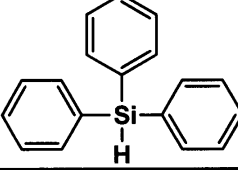

【 0 2 3 3 】

有機 EL 素子 4 - 2 ~ 4 - 11 の作製

有機 EL 素子 4 - 1 の作製において、比較化合物 1 を表 2、表 9 - 1 及び表 9 - 2 に記載の化合物に変えた以外は同様にして有機 EL 素子 4 - 2 ~ 4 - 11 を作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表 9 - 1 及び表 9 - 2 に示す。

【 0 2 3 4 】

【 表 9 - 1 】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H4-1	B-H		-5.506	-0.195
	A ₁ -H		-5.080	-0.120
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H4-2	B-H		-5.519	-0.424
	A ₁ -H		-6.943	-0.886
	A ₂ -H		-6.719	-1.902
H4-3	B-H		-6.180	-1.276
	A ₁ -H		-8.830	2.613
	A ₁ -H		-6.044	-0.674
H4-5	B-H		-6.210	-0.909
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
	A ₂ -H		-6.699	0.098

10

20

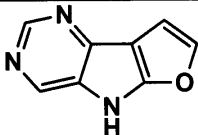
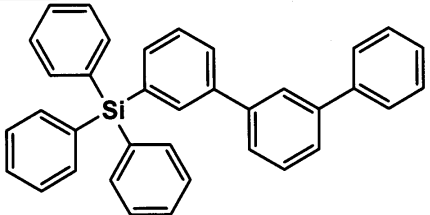

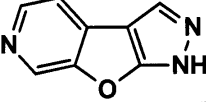
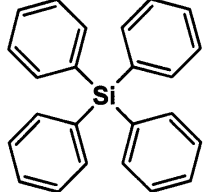

30

40

50

【 0 2 3 5 】

【 表 9 - 2 】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H4-6	B-H		-5.903	-0.919
	A ₁ -H		-5.917	-0.849
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H4-7	B-H		-6.436	-0.906
	A ₁ -H		-6.577	-0.527
	A ₁ -H		-6.699	0.098

10

20

【 0 2 3 6 】

有機EL素子4-1～4-11の評価

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1～1-10と同様に封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結果を表10に示す。なお、表10における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子4-1の測定値を100とする相対値で表した。

【 0 2 3 7 】

30

【表 10】

有機EL 素子 番号	ホスト化合物	外部取り出し 量子効率 (相対値)	半減 寿命 (相対値)	駆動 電圧 (相対値)	駆動時の 電圧上昇 (相対値)	経時 安定性 [%]	備考
4-1	比較化合物 1	100	100	100	100	39	比較例
4-2	比較化合物 2	103	111	99	118	34	比較例
4-3	比較化合物 3	109	135	98	103	38	比較例
4-4	比較化合物 4	112	145	99	121	35	比較例
4-5	H4-1	132	212	85	89	48	本発明
4-6	H4-2	141	256	84	84	51	本発明
4-7	H4-3	159	321	75	78	60	本発明
4-8	H4-4	165	365	71	76	65	本発明
4-9	H4-5	172	395	65	65	76	本発明
4-10	H4-6	185	410	62	57	80	本発明
4-11	H4-7	198	458	55	51	86	本発明

10

【0238】

表 10 から明らかとなお、本発明に係る一般式(1)で表される構造を有する化合物を用いた有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

20

【0239】

[実施例 5]

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

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートにHT-6を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにHT-5を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較化合物1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDP-5を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにD-3を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにD-4を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにET-5を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

30

【0240】

次いで真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、HT-6の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で、透明支持基板に蒸着し10nmの正孔注入層を設けた。

更にHT-5の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で、前記正孔注入層上に蒸着し20nmの正孔輸送層を設けた。

40

【0241】

更に比較化合物1とDP-5とD-3とD-4の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.1nm/秒、0.025nm/秒、0.0007nm/秒、0.0002nm/秒で、前記正孔輸送層上に共蒸着し60nmの発光層を設けた。

更にET-5の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒で、前記発光層上に蒸着し20nmの電子輸送層を設けた。

引き続き、電子注入層としてフッ化カリウム0.5nmを蒸着し、更にアルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子5-1を作製した。

【0242】

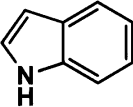
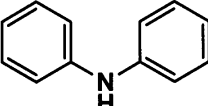

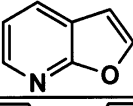
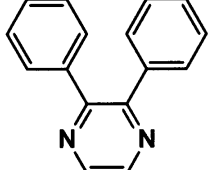
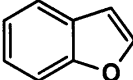
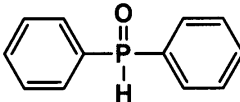
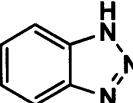
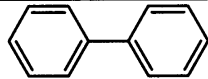

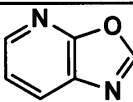

有機EL素子5-2~5-14の作製

50

有機EL素子5-1の作製において、比較化合物1を表2、表11-1及び表11-2に記載の化合物に変えた以外は同様にして有機EL素子5-2~5-14を作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表11-1及び表11-2に示す。

【0243】

【表11-1】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H5-1	B-H		-5.398	-0.066
	A ₁ -H		-5.080	-0.120
	A ₂ -H		-6.699	0.098
	A ₂ -H	CH ₄	-10.579	3.207
H5-2	B-H		-6.485	-0.571
	A ₁ -H		-6.053	-1.373
H5-3	B-H		-5.968	-0.443
	A ₁ -H		-6.943	-0.886
H5-4	B-H		-6.585	-1.197
	A ₁ -H		-6.044	-0.674
	A ₂ -H		-7.605	-1.578
H5-5	B-H		-6.964	-1.317
	A ₁ -H		-8.830	2.613

10

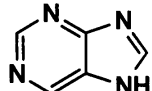
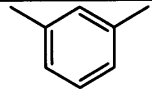

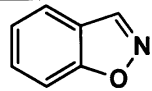


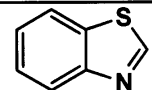
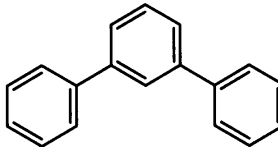
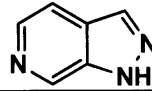
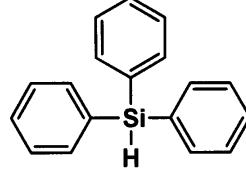

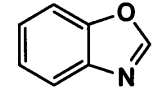
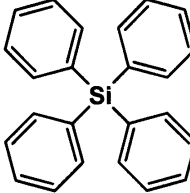

20

30

40

【0244】

【表 1 1 - 2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H5-6	B-H		-6.838	-1.377
	A ₁ -H		-6.274	0.103
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H5-7	B-H		-6.758	-1.247
	A ₁ -H		-7.941	2.387
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H5-8	B-H		-6.459	-1.000
	A ₁ -H		-5.962	-0.828
H5-9	B-H		-6.373	-1.239
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H5-10	B-H		-6.564	-0.765
	A ₁ -H		-6.577	-0.527
	A ₂ -H		-6.699	0.098

【0245】

有機EL素子5-1~5-14の評価

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1~1-10と同様に封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結

10

20

30

40

50

果を表12に示す。なお、表12における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子5-1の測定値を100とする相対値で表した。

【0246】

【表12】

有機EL素子番号	ホスト化合物	外部取り出し量子効率(相対値)	半減寿命(相対値)	駆動電圧(相対値)	駆動時の電圧上昇(相対値)	経時安定性[%]	備考
5-1	比較化合物1	100	100	100	100	50	比較例
5-2	比較化合物2	109	121	97	118	45	比較例
5-3	比較化合物3	111	134	96	103	49	比較例
5-4	比較化合物4	119	151	94	121	46	比較例
5-5	H5-1	131	220	89	89	65	本発明
5-6	H5-2	136	256	87	84	68	本発明
5-7	H5-3	141	278	85	80	70	本発明
5-8	H5-4	149	320	80	75	75	本発明
5-9	H5-5	153	336	78	71	78	本発明
5-10	H5-6	155	351	75	69	80	本発明
5-11	H5-7	165	378	70	65	83	本発明
5-12	H5-8	160	391	73	61	85	本発明
5-13	H5-9	171	410	69	53	89	本発明
5-14	H5-10	179	451	65	49	91	本発明

【0247】

表12から明らかとなっており、本発明のドーパント化合物とホスト化合物を併用した有機EL素子は、比較例の有機EL素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

【0248】

[実施例6]

50mm×50mm、厚さ0.7mmのガラス基板上に、陽極としてITO(インジウム・スズ酸化物)を120nmの厚さで成膜し、パターニングを行った後、このITO透明電極を付けた透明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分間行った後、この透明基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定した。

真空蒸着装置内の抵抗加熱ボートの各々に、各層の構成材料を、各々素子作製に最適の量を充填した。抵抗加熱ボートはモリブデン製又はタングステン製の抵抗加熱用材料で作製されたものを用いた。

真空度 1×10^{-4} Paまで減圧した後、化合物HT-1の入った蒸着用つばに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/秒でITO透明電極上に蒸着し、層厚10nmの正孔注入層を形成した。

【0249】

次いで、化合物HT-2を同様にして蒸着し、層厚30nmの正孔輸送層を形成した。

次いで、比較化合物1、DP-6が、それぞれ90%、10%の体積%になるように蒸着速度0.1nm/秒で共蒸着し、層厚30nmの発光層を形成した。

次いで、ET-1を蒸着速度0.1nm/秒で蒸着し、層厚10nmの第1電子輸送層を形成し、さらにその上に、ET-2を蒸着速度0.1nm/秒で蒸着し、層厚45nmの第2電子輸送層を形成した。

さらに、フッ化リチウムを膜厚1.0nmで形成した後に、アルミニウム100nmを

蒸着して陰極を形成した。

上記素子に電極取り出し配線を設置して、1 ppm以下の水及び酸素雰囲気窒素グローブボックス内において、エポキシ樹脂で満たした缶状ガラスケースで覆い、吸湿剤をパッケージ内に組みこんで、有機EL素子6-1を作製した。

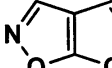
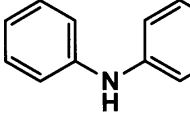

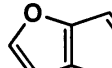
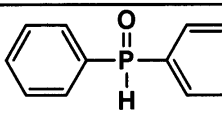
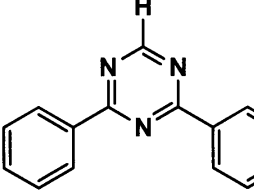

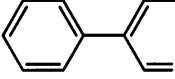

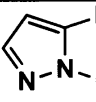
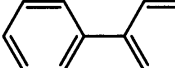

【0250】

《有機EL素子6-2～6-12の作製》

有機EL素子6-1の作製において、発光層における比較化合物1を表2、表13-1及び表13-2に示す化合物に変更した。それ以外は同様にして、有機EL素子6-2～6-12を各々作製した。比較化合物以外の各化合物の分子計算結果を表13-1及び表13-2に示す。

【0251】

【表13-1】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H6-1	B-H		-6.483	-0.465
	A ₁ -H		-5.080	-0.120
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H6-2	B-H		-5.563	-0.087
	A ₁ -H		-6.943	-0.886
	A ₂ -H		-6.719	-1.902
H6-3	B-H		-5.759	-0.888
	A ₁ -H		-6.149	-1.079
	A ₂ -H		-6.699	0.098
H6-4	B-H		-6.051	-0.546
	A ₁ -H		-6.044	-0.674
	A ₂ -H		-6.699	0.098

【0252】

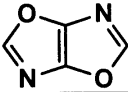
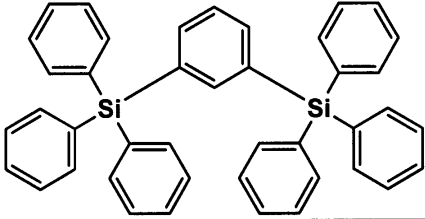

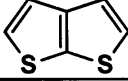

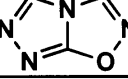
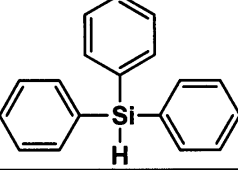

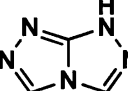
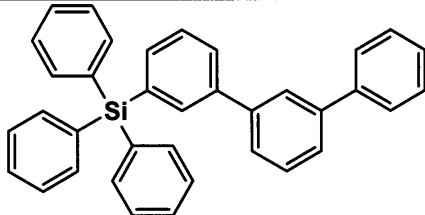

10

20

30

40

【表 1 3 - 2】

化合物名	パーツ	パーツ構造式	HOMO [eV]	LUMO [eV]
H6-5	B-H		-6.626	-1.035
	A ₁ -H		-6.508	-0.614
	A ₁ -H		-8.640	2.339
H6-6	B-H		-6.026	-0.411
	A ₁ -H		-7.941	2.387
	A ₂ -H	HCN	-8.879	0.997
H6-7	B-H		-7.357	-1.537
	A ₁ -H		-6.585	-0.486
	A ₁ -H		-6.932	-1.157
H6-8	B-H		-6.415	-0.683
	A ₁ -H		-5.917	-0.849
	A ₂ -H		-6.699	0.098

【0253】

《有機EL素子6-2～6-12の評価》

得られた有機EL素子を評価するに際しては、実施例1の有機EL素子1-1～1-10と同様に封止し、図6及び図7に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例1と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結果を表14に示す。なお、表14における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機EL素子6-1の測定値を100とする相対値で表した。

10

20

30

40

50

【 0 2 5 4 】

【表 1 4】

有機EL 素子 番号	ホスト化合物	外部取り出し 量子効率 (相対値)	半減 寿命 (相対値)	駆動 電圧 (相対値)	駆動時の 電圧上昇 (相対値)	経時 安定性 [%]	備考
6-1	比較化合物 1	100	100	100	100	51	比較例
6-2	比較化合物 2	109	121	97	109	46	比較例
6-3	比較化合物 3	115	131	96	102	50	比較例
6-4	比較化合物 4	120	139	95	111	47	比較例
6-5	H6-1	129	229	89	90	62	本発明
6-6	H6-2	134	256	86	87	65	本発明
6-7	H6-3	140	289	81	82	69	本発明
6-8	H6-4	159	321	75	76	75	本発明
6-9	H6-5	169	398	69	65	81	本発明
6-10	H6-6	175	422	63	69	79	本発明
6-11	H6-7	181	456	60	60	83	本発明
6-12	H6-8	189	487	56	56	89	本発明

10

【 0 2 5 5 】

表 1 4 から明らかとなり、本発明のドーパント化合物とホスト化合物を併用した有機 EL 素子は、比較例の有機 EL 素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

20

【 0 2 5 6 】

[実施例 7]

《 有機 EL フルカラー表示装置の作製 》

図 8 は、有機 EL フルカラー表示装置の概略構成図を示す。

ガラス基板 2 0 1 上に、陽極として I T O 透明電極 2 0 2 を 1 0 0 n m 成膜した基板 (N H テクノガラス社製 N A 4 5) に 1 0 0 μ m のピッチでパターンニングを行った後 (図 8 A 参照)、このガラス基板 2 0 1 上であって I T O 透明電極 2 0 2 の間に非感光性ポリイミドの隔壁 2 0 3 (幅 2 0 μ m、厚さ 2 . 0 μ m) をフォトリソグラフィーで形成した (図 8 B 参照)。

30

I T O 電極 2 0 2 上であって隔壁 2 0 3 同士の間には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 ; M J 8 0 0 C) を用いて吐出注入し、紫外光を 2 0 0 秒間照射し、6 0 、 1 0 分間の乾燥処理により、層厚 4 0 n m の正孔注入層 2 0 4 を設けた (図 8 C 参照)。

【 0 2 5 7 】

この正孔注入層 2 0 4 上に、各々下記組成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、6 0 、 1 0 分間乾燥処理し、各色の発光層 2 0 5 B , 2 0 5 G , 2 0 5 R を設けた (図 8 D 参照)。 (正孔注入層組成物)

40

H T - 3 : 2 0 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 : 5 0 質量部

(青色発光層組成物)

例示化合物 H 5 - 1 0 : 0 . 7 質量部

D P - 7 : 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 : 5 0 質量部

(緑色発光層組成物)

50

例示化合物 H 4 - 7 : 0 . 7 質量部
 D - 3 : 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 : 5 0 質量部

(赤色発光層組成物)

例示化合物 H 3 - 1 0 : 0 . 7 質量部
 D - 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 : 5 0 質量部

【 0 2 5 8 】

次に、各発光層 2 0 5 B , 2 0 5 G , 2 0 5 R を覆うように電子輸送材料を蒸着して層厚 2 0 n m の電子輸送層 (図示略) を設け、更にフッ化リチウムを蒸着して層厚 0 . 6 n m の電子注入層 (図示略) を設け、A 1 を蒸着して膜厚 1 3 0 n m の陰極 2 0 6 を設けて有機 E L 素子を作製した (図 8 E 参照) 。

作製した有機 E L 素子はそれぞれ電極に電圧を印加することにより青色、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。

【 0 2 5 9 】

[実施例 8]

《 有機 E L 素子 8 - 1 の作製 》

陽極として 1 0 0 m m × 1 0 0 m m × 1 . 1 m m のガラス基板上に I T O (インジウム・スズ酸化物) を 1 0 0 n m 成膜した基板 (N H テクノグラス社製 N A 4 5) にパターンニングを行った後、この I T O 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、U V オゾン洗浄を 5 分間行った。

この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方モリブデン製抵抗加熱ポートに H T - 1 を 2 0 0 m g 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに H T - 2 を 2 0 0 m g 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに比較化合物 4 を 2 0 0 m g 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに D P - 6 を 2 0 0 m g 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに E T - 1 を 2 0 0 m g 入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートに E T - 2 を 2 0 0 m g 入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

【 0 2 6 0 】

次いで真空槽を 4×10^{-4} P a まで減圧した後、H T - 1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0 . 1 n m / 秒で、透明支持基板に蒸着し 1 0 n m の正孔注入層を設けた。

更に H T - 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0 . 1 n m / 秒で、前記正孔注入層上に蒸着し 3 0 n m の正孔輸送層を設けた。

更に比較化合物 4 と D P - 6 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0 . 1 n m / 秒、0 . 0 1 0 n m / 秒で、前記正孔輸送層上に共蒸着し 4 0 n m の発光層を設けた。

【 0 2 6 1 】

更に E T - 1 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0 . 1 n m / 秒で、前記発光層上に蒸着し 1 0 n m の正孔阻止層を設けた。

更に E T - 2 の入った前記加熱ポートに通電して加熱し、蒸着速度 0 . 1 n m / 秒で、前記正孔阻止層上に蒸着し 3 0 n m の電子輸送層を設けた。

引き続き、電子注入層 (陰極バッファ層) としてフッ化リチウム 0 . 5 n m を蒸着し、更にアルミニウム 1 1 0 n m を蒸着して陰極を形成し、有機 E L 素子 1 - 1 を作製した。

【 0 2 6 2 】

有機 E L 素子 8 - 2 の作製

有機 E L 素子 8 - 1 の作製において、下記の手順で発光層を設けること以外は同様にし、有機 E L 素子 8 - 2 を作製した。

10

20

30

40

50

モリブデン製抵抗加熱ポートに例示化合物 H 2 - 1 を 2 0 0 m g 入れた。比較化合物 4 と例示化合物 H 2 - 1 と D P - 6 との入った前記加熱ポートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0 . 1 n m / 秒、0 . 0 1 0 n m / 秒、0 . 0 1 0 n m / 秒で、前記正孔輸送層上に共蒸着し 4 0 n m の発光層を設けた。

【 0 2 6 3 】

有機 E L 素子 8 - 3 ~ 8 - 9 の作製

有機 E L 素子 8 - 2 の作製において、例示化合物 H 2 - 1 を表 1 5 に記載の化合物に変えた以外は同様にして有機 E L 素子 8 - 3 ~ 8 - 9 を作製した。

【 0 2 6 4 】

有機 E L 素子 8 - 1 ~ 8 - 9 の評価

得られた有機 E L 素子を評価するに際しては、実施例 1 の有機 E L 素子 1 - 1 ~ 1 - 1 0 と同様に封止し、図 6 及び図 7 に示すような照明装置を形成して評価した。

このようにして作製した各サンプルに対し、実施例 1 と同様に、外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧、駆動時の電圧上昇及び経時安定性について評価を行った。評価結果を表 1 5 に示す。なお、表 1 5 における外部取り出し量子効率、半減寿命、駆動電圧及び駆動時の電圧上昇の測定結果は、有機 E L 素子 8 - 1 の測定値を 1 0 0 とする相対値で表した。

【 0 2 6 5 】

【表 1 5】

有機EL素子番号	ホスト化合物		外部取り出し量子効率(相対値)	半減寿命(相対値)	駆動電圧(相対値)	駆動時の電圧上昇(相対値)	経時安定性[%]	備考
8-1	比較化合物4	なし	100	100	100	100	39	比較例
8-2	比較化合物4	H2-1	121	159	89	75	51	本発明
8-3	比較化合物4	H2-2	134	220	79	70	59	本発明
8-4	比較化合物4	H2-3	139	256	76	69	62	本発明
8-5	比較化合物4	H2-4	141	249	73	66	65	本発明
8-6	比較化合物4	H2-5	143	269	70	60	70	本発明
8-7	比較化合物4	H2-6	146	285	67	58	76	本発明
8-8	比較化合物4	H2-7	149	312	63	53	79	本発明
8-9	比較化合物4	H2-8	151	333	59	49	83	本発明

【 0 2 6 6 】

表 1 5 から明らかとなっており、本発明に係る一般式 (1) で表される構造を有する化合物を発光層に併用した有機 E L 素子は、比較例の有機 E L 素子に比べ、発光効率及び発光寿命に優れ、低電圧であることが明らかであり、また駆動時の電圧上昇も抑えられていることがわかった。さらに、経時安定性に優れていることもわかった。

【 0 2 6 7 】

以上のように、本発明によれば、発光効率が高く、低駆動電圧、長寿命であり、かつ駆動時の電圧上昇が小さく、さらに経時安定性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置を提供することができる。

また、ウェットプロセスによって製造した有機 E L 素子についても優れた効果を奏することがわかった。さらに、他のホスト化合物とともに発光層に併用することでも、上記効果を有する有機 E L 素子を製造することができる。

【産業上の利用可能性】

【 0 2 6 8 】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、有機 E L 素子を備えた表示デバイス、ディスプレイや、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源

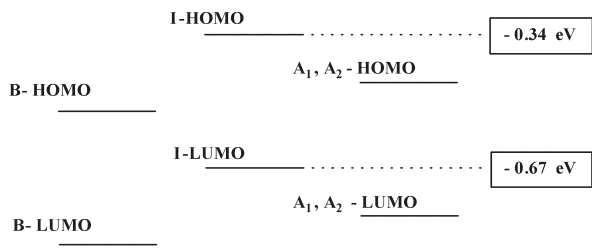
、さらには表示装置を必要とする一般の家庭用電気器具等の広い発光光源として好適に利用できる。

【符号の説明】

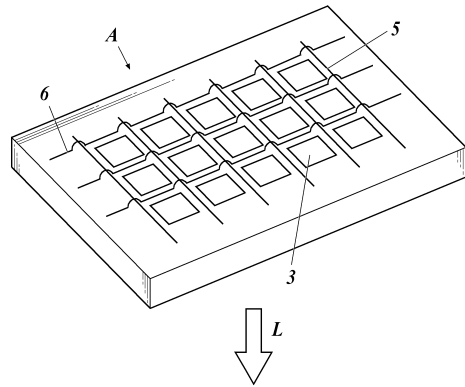
【 0 2 6 9 】

- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- 7 電源ライン
- 1 0 有機 E L 素子 10
- 1 1 スイッチングトランジスタ
- 1 2 駆動トランジスタ
- 1 3 コンデンサー
- 1 0 1 照明装置内の有機 E L 素子
- 1 0 2 ガラスカバー
- 1 0 5 陰極
- 1 0 6 有機 E L 層
- 1 0 7 透明電極付きガラス基板
- 1 0 8 窒素ガス
- 1 0 9 捕水剤 20
- 2 0 1 ガラス基板
- 2 0 2 透明電極
- 2 0 3 隔壁
- 2 0 4 正孔注入層
- 2 0 5 B、2 0 5 G、2 0 5 R 各色の発光層
- A 表示部
- B 制御部
- C 配線部
- L 発光光

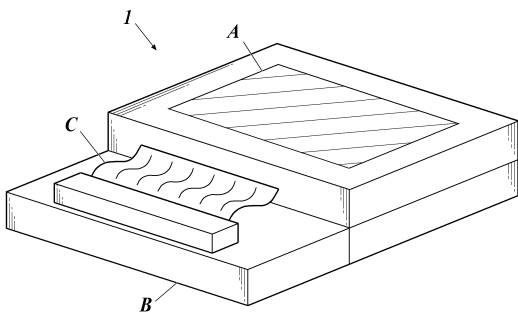
【 図 1 】



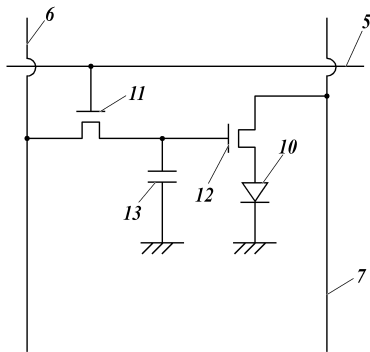
【 図 3 】



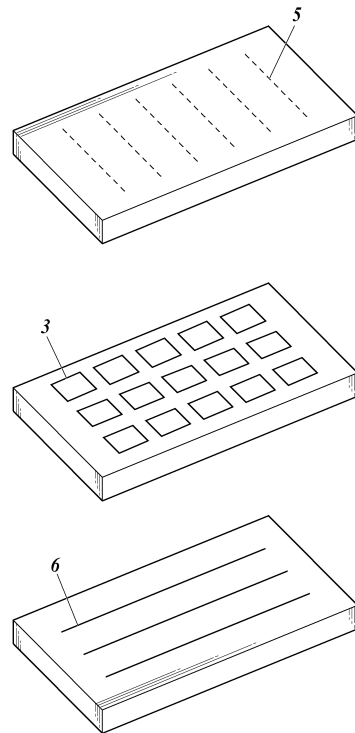
【 図 2 】



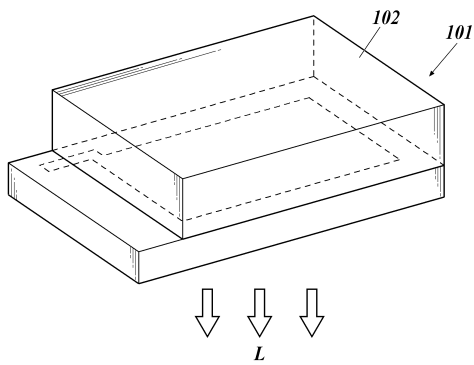
【 図 4 】



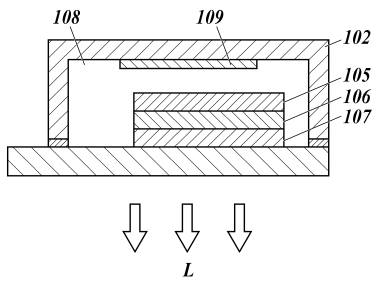
【 図 5 】



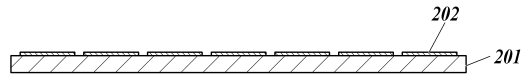
【図 6】



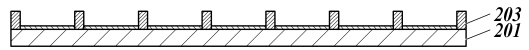
【図 7】



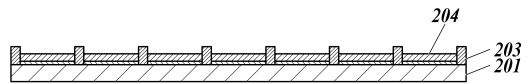
【図 8 A】



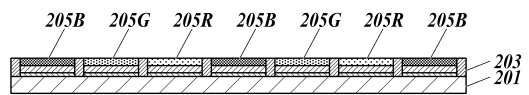
【図 8 B】



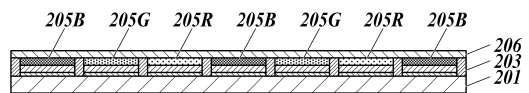
【図 8 C】



【図 8 D】



【図 8 E】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I	
C 0 7 D 471/04	(2006.01)	C 0 7 D 471/04	1 1 2 T
C 0 7 D 403/14	(2006.01)	C 0 7 D 403/14	
C 0 7 D 235/14	(2006.01)	C 0 7 D 235/14	
C 0 7 D 498/04	(2006.01)	C 0 7 D 498/04	1 0 1
C 0 7 D 495/22	(2006.01)	C 0 7 D 495/22	
C 0 7 D 495/14	(2006.01)	C 0 7 D 495/14	D
C 0 7 D 405/14	(2006.01)	C 0 7 D 405/14	
C 0 7 D 491/048	(2006.01)	C 0 7 D 491/048	
C 0 7 D 513/04	(2006.01)	C 0 7 D 513/04	3 0 1
C 0 7 D 471/14	(2006.01)	C 0 7 D 487/04	1 3 9
C 0 7 D 498/14	(2006.01)	C 0 7 D 471/14	1 0 2
C 0 7 D 495/04	(2006.01)	C 0 7 D 498/14	
C 0 7 D 491/147	(2006.01)	C 0 7 D 513/04	3 2 5
C 0 7 D 473/00	(2006.01)	C 0 7 D 495/04	1 0 3
C 0 7 D 413/14	(2006.01)	C 0 7 D 491/147	
C 0 7 D 417/14	(2006.01)	C 0 7 D 473/00	
		C 0 7 D 413/14	
		C 0 7 D 417/14	
		C 0 7 D 495/04	1 0 1
		C 0 7 D 498/04	1 0 3

審査官 岩井 好子

- (56)参考文献 国際公開第2013/118507(WO, A1)
 特開2014-152151(JP, A)
 国際公開第2013/168534(WO, A1)
 国際公開第2015/022835(WO, A1)
 特開2014-183226(JP, A)
 特開2011-213650(JP, A)
 特開平08-087123(JP, A)
 米国特許出願公開第2006/0024525(US, A1)
 韓国公開特許第10-2014-0013351(KR, A)
 韓国公開特許第10-2014-0028640(KR, A)
 特開2013-147497(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 51/50

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)

专利名称(译)	有机电致发光器件，有机电致发光器件的制造方法以及有机电致发光器件材料		
公开(公告)号	JP6642567B2	公开(公告)日	2020-02-05
申请号	JP2017504955	申请日	2016-02-23
[标]申请(专利权)人(译)	柯尼卡株式会社		
申请(专利权)人(译)	柯尼卡美能达有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	柯尼卡美能达有限公司		
[标]发明人	加羽澤麻由香 関根昇 中村優太		
发明人	加羽澤 麻由香 関根 昇 中村 優太		
IPC分类号	H01L51/50 H05B33/10 C07D493/04 C07D487/04 C07D401/14 C07D471/04 C07D403/14 C07D235/14 C07D498/04 C07D495/22 C07D495/14 C07D405/14 C07D491/048 C07D513/04 C07D471/14 C07D498/14 C07D495/04 C07D491/147 C07D473/00 C07D413/14 C07D417/14		
CPC分类号	C09K11/06 H01L51/50		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/10 C07D493/04.101.C C07D487/04.136 C07D401/14 C07D471/04.112.T C07D403/14 C07D235/14 C07D498/04.101 C07D495/22 C07D495/14.D C07D405/14 C07D491/048 C07D513/04.301 C07D487/04.139 C07D471/14.102 C07D498/14 C07D513/04.325 C07D495/04.103 C07D491/147 C07D473/00 C07D413/14 C07D417/14 C07D495/04.101 C07D498/04.103		
审查员(译)	岩井良子		
优先权	2015044648 2015-03-06 JP		
其他公开文献	JPWO2016143508A1		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明的目的是提供一种有机电致发光元件，该有机电致发光元件具有高的发光效率，低的驱动电压，长的使用寿命和优异的长期稳定性，同时在驱动时抑制了电压升高。根据本发明的有机电致发光元件包括有机层，该有机层至少在一对正电极和负电极之间包含发光层。该有机电致发光元件的特征在于，有机层包含具有通式(1)表示的结构的化合物。

(19) 日本国特許庁(JP)	(12) 特許公報(B2)	(11) 特許番号 特許第6642567号 (P6642567)
(45) 発行日 令和2年2月5日(2020.2.5)	(24) 登録日 令和2年1月8日(2020.1.8)	
(51) Int. Cl.	F I	
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14	B
H05B 33/10 (2006.01)	H05B 33/10	
C07D 483/04 (2006.01)	C07D 483/04	I O I C
C07D 487/04 (2006.01)	C07D 487/04	I 3 G
C07D 401/14 (2006.01)	C07D 401/14	
請求項の数 10 (全 92 頁) 最終頁に続く		
(21) 出願番号 特願2017-504955(P2017-504955)	(73) 特許権者 000001270 コニカミノルタ株式会社	
(86) (22) 出願日 平成28年2月23日(2016.2.23)	東京都千代田区丸の内二丁目7番2号	
(86) 国際出願番号 PCT/JP2016/055258	110001254	
(87) 国際公開番号 W02016/143508	特許業務法人光陽国際特許事務所	
(87) 国際公開日 平成28年9月15日(2016.9.15)	加羽澤 麻由香	
審査請求日 平成30年12月25日(2018.12.25)	東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
(31) 優先権主張番号 特願2015-44648(P2015-44648)	(72) 発明者 関根 昇	
(32) 優先日 平成27年3月6日(2015.3.6)	東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
(33) 優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)	(72) 発明者 中村 優太	
	東京都千代田区丸の内二丁目7番2号 コニカミノルタ株式会社内	
	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、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法及び有機エレクトロルミネッセンス素子材料		